

# SIMULAÇÃO, EM 3D, DE UM PROCESSO DE NUCLEAÇÃO E CRESCIMENTO A PARTIR DA TEORIA DO CONE CAUSAL<sup>1</sup>

Wesley Luiz da Silva Assis<sup>2</sup>  
Tatiana Caneda Salazar<sup>3</sup>  
Paulo Rangel Rios<sup>4</sup>

## Resumo

As equações analíticas que descrevem as transformações de fase são baseadas nas equações de Jmak. Essas transformações também são estudadas através de simulação computacional. um método muito utilizado é do Autômato Celular. No entanto apresenta uma restrição: a forma dos grãos diverge da forma esférica, sendo uma correção de  $S_V(t)$  por um fator de forma. Este trabalho propõe um modelo computacional que descreve transformações que ocorrem por nucleação e crescimento, obtendo  $S_V(t)$  diretamente. Esse modelo é baseado na teoria do cone causal. Para validação do programa os resultados obtidos pela simulação são comparados com os modelos analíticos de Jmak, DeHoff e Vandermeer.

**Palavra-chave:** Recristalização; Transformação de fase; Cone causal.

## SIMULATION IN 3D OF A NUCLEATION AND GROWTH PROCESSES FROM THE THEORY OF TIME CONE

## Abstract

The analytical equations that describe the phase transformations are based on equations of Jmak. These transformations are also studied by computer simulation. a widely used method is the cellular automata. It does however represent a constraint: the shape of the grains differs from the spherical shape, with a correction of  $S_V(t)$  by a form factor. This paper proposes a computational model that describes changes that occur by nucleation and growth, resulting  $S_V(t)$  directly. This model is based on the theory of causal cone. For validation of the results obtained by simulation are compared with analytical models Jmak, Dehoff and Vandermeer.

**Key-words** Recrystallization; Transformation of phase; Time cone.

<sup>1</sup> Contribuição técnica ao 65º Congresso Anual da ABM, 26 a 30 de julho de 2010, Rio de Janeiro, RJ, Brasil.

<sup>2</sup> Engenheiro Químico, Mestre em Engenharia Metalúrgica, aluno do curso de Doutorado em Engenharia Metalúrgica na Universidade Federal Fluminense – wesley@metal.eeimvr.uff.br

<sup>3</sup> Engenheira Metalúrgica; Mestre em Engenharia Metalúrgica; aluna do curso de Doutorado em Engenharia Metalúrgica na Universidade Federal Fluminense – tatiana@metal.eeimvr.uff.br.

<sup>4</sup> Professor Ph.D. em Engenharia Metalúrgica da PUVR/UFF. prrios@metal.eeimvr.uff.br.



## 1 INTRODUÇÃO

As transformações de fase ocorrem mediante a nucleação da nova fase e seu posterior crescimento. O fenômeno da recristalização, apesar de não nuclear uma fase diferente da existente, também ocorre por nucleação e crescimento. Transformações, deste tipo, no estado sólido são freqüentemente estudadas com suporte das teorias de cinética formal. Estes estudos também têm sido realizados com grande frequência para descrever a recristalização, e são geralmente embasados em modelos matematicamente exatos. Os modelos analíticos têm sido há anos uma das melhores maneiras de se representar as características geométricas e evolutivas de uma microestrutura. Todavia, tais modelos não fornecem informações em relação aos mecanismos de transformação que acontecem por nucleação e crescimento.

A base dos estudos de cinética formal é a união das teorias de Johnson-Mehl, Avrami e Kolmogorov (JMAK).<sup>(1-5)</sup> A teoria JMAK é fundamentada apenas em um parâmetro de descrição microestrutural, a fração volumétrica da fase transformada ( $V_V$ ).

$$V_V = 1 - \exp(-V_{VE}) \quad (1)$$

Subseqüentemente ao desenvolvimento desta teoria, DeHoff<sup>(6)</sup> criou uma extensão ao estudo de JMAK, no qual foi introduzido um novo parâmetro microestrutural, a área superficial por unidade de volume, ( $S_V$ ).

$$S_V = (1 - V_V)S_{VE} \quad (2)$$

Os modelos de JMAK e de DeHoff serviram como base para o desenvolvimento de uma nova teoria sugerida por Vandermeer e Bath,<sup>(7)</sup> o caminho microestrutural. no caso de nucleação por saturação de sítios, tem-se:

$$S_V = 3(36N_V)^{\frac{1}{3}}(1 - V_V) \left[ \ln\left(\frac{1}{1 - V_V}\right) \right]^{\frac{2}{3}} \quad (3)$$

onde  $V_{VE}$  e  $S_{VE}$  são respectivamente, a fração volumétrica e a área por unidade de volume no espaço estendido. No espaço estendido não se leva em consideração a ocorrência do *impingement*.

Recentemente, Rios e Villa<sup>(8,9)</sup> desenvolveram equações gerais para descrição da cinética de transformação utilizando os recursos da geometria estocástica e da metodologia do cone do causal.<sup>(10)</sup> Essas equações são válidas para os casos mais gerais de nucleação, quando ela é homogênea, e para casos mais específicos: de nucleação não homogênea e para nucleação em clusters.

Atualmente os estudos analíticos e experimentais têm sido auxiliados pelos modelos computacionais, com objetivo de se desvencilhar das limitações encontradas em cada método de estudo. Um modelo computacional muito utilizado para descrever a cinética de recristalização são os Autômatos Celulares. A comparação quantitativa dos resultados simulados com a teoria JMAK apresenta resultados semelhantes, quando se impõe à simulação as mesmas hipóteses definidas pela teoria.<sup>(11)</sup> Estudos recentes também mostram a eficiência desse modelo em uma comparação qualitativa. Salazar<sup>(12)</sup> reproduziu, pelo método dos Autômatos Celulares, os dados experimentais para a recristalização de um monocristal de ferro puro. No entanto, os resultados também apresentam limitações



no que diz respeito à forma do grão gerada por esse método e uma correção através de um fator de forma se faz necessária.

Através da teoria do cone causal, utilizada para calcular a fração transformada estendida, um modelo computacional capaz de descrever a cinética de recristalização é desenvolvido. Com esse modelo espera-se obter resultados da fração volumétrica por unidade de volume,  $V_V$ , e da área por unidade de volume,  $S_V$ , em função do tempo de reação. Para os resultados da área por unidade de volume espera-se obtê-los diretamente sem a necessidade de correção por um fator de forma. Esse modelo é desenvolvido em linguagem Fortran.

## 2 MATERIAL E METÓDOS

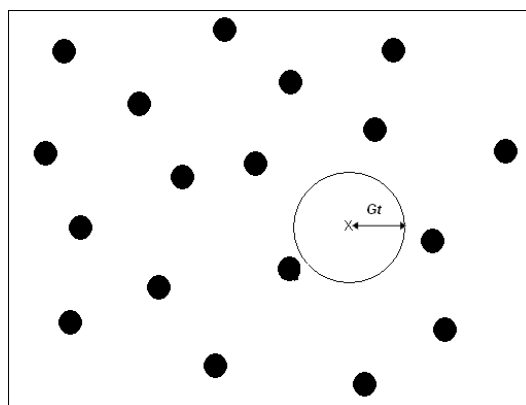
### 2.1 Cone Causal (*time cone*)

O termo "cone do tempo" ou "cone causal" de um ponto  $x$  em um tempo  $t$ ,  $C(t, x)$ , é utilizado para o estudo da densidade das médias de volume, e por consequência a fração de volume de um processo de nucleação e crescimento. O Cone Causal é definido como uma região no tempo e no espaço no qual pelo menos um evento da nucleação tem que ocorrer a fim cobrir o ponto  $x$  no tempo  $t$ .<sup>(10)</sup> Através dos conceitos de Cone Causal é possível obter relações entre as quantidades  $V_V$ ,  $V_{VE}$ ,  $S_V$ ,  $S_{VE}$ . Villa<sup>(15)</sup> mostra que o significado da densidade de volume no tempo  $t$  em um ponto  $x$  é a probabilidade do ponto  $x$  pertencer a região transformada no tempo  $t$  e que  $V_{VE}(t, x)$  é dada pela medida da intensidade do Cone Causal,  $\Lambda(C(t, x))$ , no ponto  $x$  e no tempo  $t$ .

$$V_{VE}(t, x) = \Lambda(C(t, x)) \quad (4)$$

A intensidade do cone causal significa o número de núcleos que estão dentro do Cone Causal do ponto  $x$  no tempo  $t$ .

Para o caso da nucleação homogênea e por saturação de sítios, o número de núcleos por unidade de volume,  $N_V$ , é igual à intensidade  $\lambda$ , e é independente do tempo e do espaço. Considerando as regiões crescendo como esferas com velocidade radial  $G$ , um ponto no espaço,  $x$ , se transformará se existe pelo menos um núcleo presente dentro da região esférica de raio  $R=Gt$ , centrada em  $x$ . A Figura 1 ilustra em 2D a situação descrita acima. Os pontos pretos representam os núcleos. Está representado o cone (em 2D, uma circunferência), para um ponto  $x$ . Como não há pelo menos um núcleo dentro do cone, este ponto  $x$  não se transforma neste tempo  $t$ .



**Figura 1:** Figura ilustrativa do Cone Causal em 2D. Os pontos pretos representam os núcleos e circunferência representa o cone do tempo do ponto  $x$  no tempo  $t$ .



## 2.2 Simulação Computacional

O programa foi desenvolvido em Fortran com o objetivo de simular um processo de nucleação e crescimento e obter a fração transformada,  $V_V$ , e a área por unidade de volume,  $S_V$ . O fluxograma, da Figura 2, representa a sequência de execução do programa.

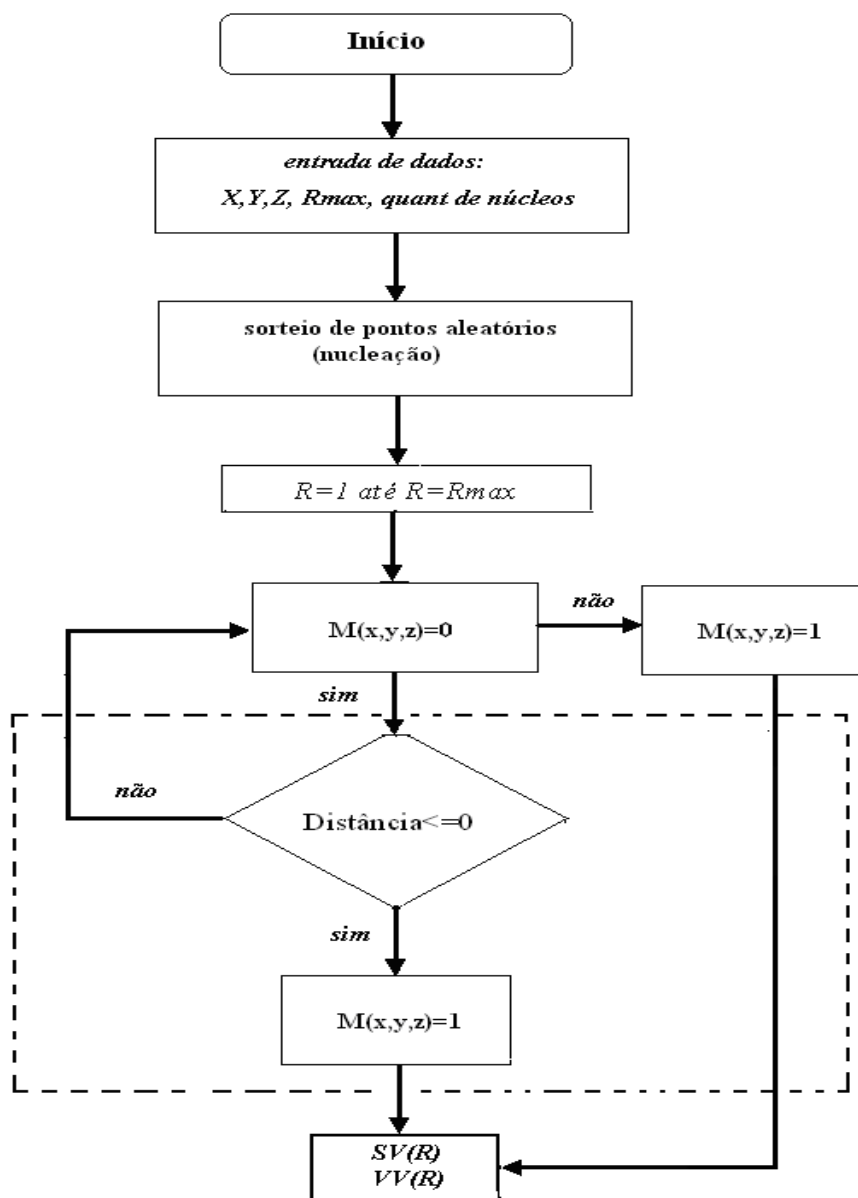


Figura 2: Fluxograma explicativo do programa desenvolvido em Fortran.

O programa se inicia com a entrada de dados como: coordenadas  $imax$ ,  $jmax$ ,  $kmax$  que delimitam o tamanho da matriz; o  $Rmax$  que se refere a quantidade de interações ou o raio máximo do cone causal; e a quantidade de núcleos iniciais. Em seguida há o sorteio aleatório de pontos, dentro da matriz, que representam a localização dos núcleos iniciais. Como a transformação será por saturação de sítios, não haverá a nucleação de novos grãos a partir do momento do início do crescimento. A transformação ocorrerá de  $R=1$  até  $R=Rmax$ . Para cada valor de  $R$ ,

uma sub-rotina calcula se cada ponto da matriz  $M(x, y, z)$  se transformará. Então é calculada a distância entre os núcleos e os cones causais de cada ponto da matriz. Para cada  $R$ , o cone de cada ponto equivale a uma esfera de raio  $R$ . Por exemplo, se a distância entre o núcleo, com coordenadas  $(Xn, Yn, Zn)$ , e o cone de raio  $R$  do ponto  $(Xp, Yp, Zp)$  for menor que zero, significa que esse núcleo se encontra dentro do cone do ponto. Então o ponto se transformará e receberá o valor de 1. Se a distância entre o ponto  $(Xp, Yp, Zp)$  e todos o núcleos for maior que zero, significa que ainda não existe pelo menos um núcleo dentro do cone deste ponto. Esse ponto continua com o valor de zero.

Para cada interação de  $R$ , é obtida a fração transformada,  $V_V$ , e a área interfacial por unidade de volume,  $S_V$ .

### 2.3 Cálculo da Distância, Fração Volumétrica e Área Interfacial

A distância é calculada utilizando a seguinte equação:

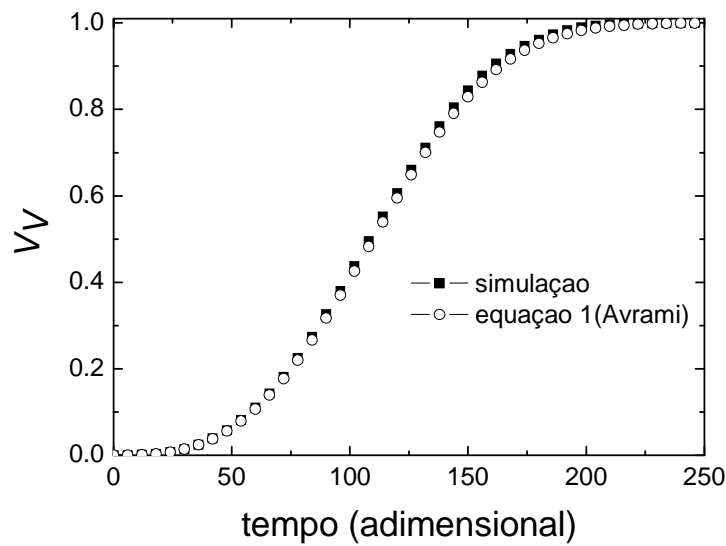
$$distância = \left( (in - i)^2 + (jn - j)^2 + (kn - k)^2 \right) - raio^2 \quad (8)$$

onde  $in, jn, kn$  é a coordenada dos núcleos e  $i, j, k$  é a coordenada de todos os pontos da matriz.

Na sub-rotina onde é calculada essas distâncias foi utilizado o OpenMP. Cada processador é responsável pelo cálculo da distância de um ponto da matriz em relação a todos os núcleos. Para cada interação, utilizando oito processadores, o programa calcula a intensidade do cone causal (através das distâncias entre os pontos) de oito pontos simultaneamente tornando o programa de mais rápida execução.

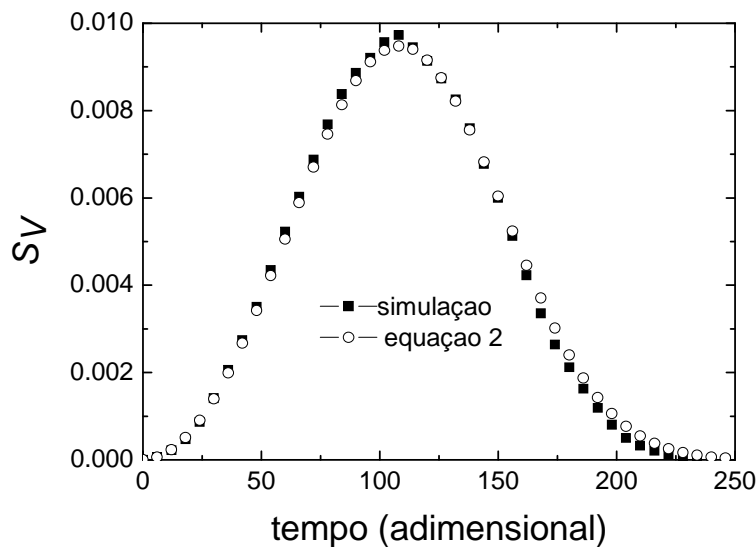
## 3 RESULTADOS E DISCUSSÕES

A simulação fornece todos os resultados em função do raio do cone causal. Considerando que cada interação do raio do cone do tempo equivale a uma interação do tempo, Os resultados obtidos da simulação são comparados com as equações exatas de JMAK. O gráfico da Figura 3 é da fração transformada em função do. Todos os resultados são adimensionais.



**Figura 3:** Fração transformada,  $V_v$ , em função do tempo comparado com a equação de Avrami.

A Figura 4 mostra a área interfacial entre as regiões transformadas e não transformadas,  $S_v$ , simulada em comparação com a equação 2. Diferentemente do Autômato Celular, essa simulação não precisa de um fator de forma para correção da área. Os resultados são diretos.



**Figura 4:** Resultados analíticos x resultados simulados – área interfacial,  $S_v$ , em função do tempo.

O gráfico da Figura 5 refere-se a área interfacial,  $S_v$ , em função da fração transformada,  $V_v$ , conhecido como o caminho microestrutural.



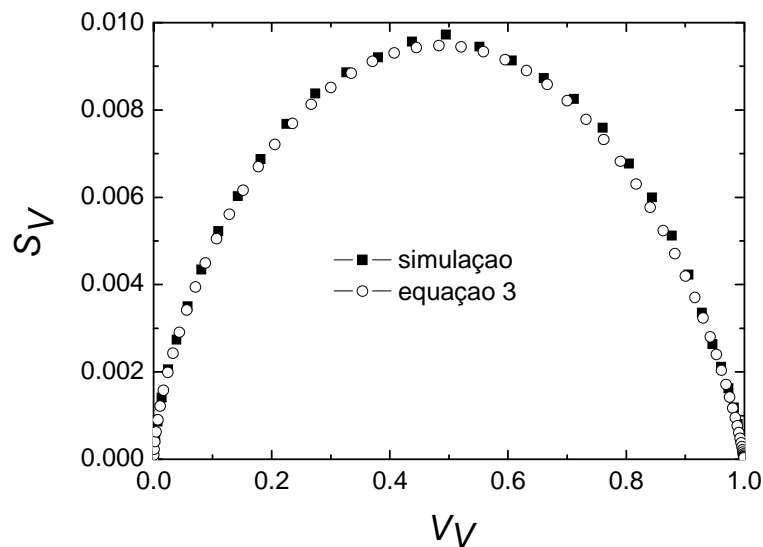


Figura 5: Resultados analíticos x resultados simulados – Caminho microestrutural

## 5 CONCLUSÕES

Os resultados mostram que o método proposto para simular a cinética de transformação é eficiente e descreve o comportamento das equações exatas de JMAK. Sabe-se que essas equações são exatas para hipóteses de nucleação bem específicas. Portanto, os resultados apresentados neste trabalho são válidos apenas para nucleação homogênea.

Para a comparação desse método de simulação com situações de nucleação mais específicas como clusters ou não homogênea, é necessário uma modificação no código do programa.

## REFERÊNCIAS

- 1 A. N. KOLMOGOROV, IZV.. The statistics of crystal growth in the metals. **Investiia Akademii Nauk. USSR-Ser-Matematica**, vol.1(3), p.355, 1937.
- 2 W. A. JOHNSON E R. F. MEHL, Reaction Kinetics in process of nucleation and growth. **Transactions Metallurgical Society of A.I.M.E.**, vol. 135, p.416–441, 1939.
- 3 M. AVRAMI, Kinetics of phase I general theory. **Journal of Chemical Physics**, vol. 7, p.1103-1112, 1939.
- 4 AVRAMI, M. Kinetics of fase change II. Transformation-time relations for random distribution of nuclei. **The Journal of Chemical Physics**, volume 8, nº2, p.212-224, 1940.
- 5 M .AVRAMI, Kinetics of fase change III. **The Journal of Chemical Physics**, volume 9, p.177-184, 1941.
- 6 R.T. DEHOFF, Annealing processes recovery, recrystallization and grain growth (edited by N. Hansen, D. Juul-Jensen, T. Leffers e B. Ralph), **Risø National Laboratory**, Roskilde, Dinmark, p. 35–52. 1986.
- 7 R.A. VANDERMEER; B.B. RATH, Modeling recrystallization kinetics in deformed iron single crystal. **Metallurgical and Materials Transactions A**, volume 20, p.391-401,1989.
- 8 P.R.RIOS; E. VILLA, Transformation kinetics for inhomogeneous nucleation. **Acta Materialia**, volume 57, nº4, p. 1199-1208, 2009.
- 9 P.R.RIOS; E. VILLA, Transformation kinetics for nucleus clusters. **Acta Materialia**,
- 10 J.W. CAHN, The time cone method for nucleation and growth kinetics on a finite domain. **Materials Research Society Symposium Proceedings**, volume 398, p. 425-438, 1996.



- 11 P.R. RIOS; V.T. OLIVEIRA; L.O. PEEIRA; M.R. PEREIRA; J.A. CASTRO, Cellular Automata simulation of site-saturated and constant nucleation rate transformation in three dimensions. **Materials Research**, volume 9, nº 2, p. 223-230, 2006.
- 12 T.C. SALAZAR, Comparação do modelamento da recristalização 3D pelo método do Autômato Celular com resultados experimentais. **Dissertação de mestrado**, Pós-graduação em Engenharia Metalúrgica, UFF, Volta Redonda, 2007.