

MODELO HÍBRIDO PARA EL CRECIMIENTO DE GRANO APLICANDO AUTÓMATAS CELULARES Y MÉTODO DE MONTE CARLO

Carlos A. Cattaneo¹, Silvia P. Silveti²

¹ *Facultad de Agronomía y Agroindustrias, Universidad Nacional de Santiago del Estero, Av. Belgrano Sur 1912; G4200ABT Santiago del Estero, cacatta@unse.edu.ar*

<http://faa.unse.edu.ar>

² *Facultad de Matemáticas Astronomía y Física, Universidad Nacional de Córdoba, silveti@famaf.unc.edu.ar <http://famaf.unc.edu.ar>*

Palabras clave: crecimiento de grano, autómatas celulares, Monte Carlo.

Resumen: Se presenta un modelo híbrido para analizar el crecimiento de grano bajo tratamiento térmico en materiales sólidos. El modelo se construyó utilizando el método determinista de autómatas celulares y el método probabilístico de Monte Carlo.

El autómata celular permite realizar actualizaciones de la estructura de granos del sistema a intervalos de tiempo fijo, y las reglas de actualización utilizadas por éste están dadas por el método de Monte Carlo, el cual se adapta perfectamente a sistemas con un gran número de grados de libertad.

El modelo permite estudiar el crecimiento normal y anormal de grano, tanto para sistemas monofásicos como bifásicos, teniendo en cuenta la temperatura del sistema, la energía y la movilidad del borde de grano y la fracción y el tamaño de la partícula de segunda fase.

Los valores obtenidos, del exponente de crecimiento de grano n , para el sistema monofásico son próximos a 0,4 obteniéndose valores inferiores para sistemas bifásicos. Estos resultados concuerdan con los datos experimentales reportados en la bibliografía.

1 INTRODUCCION

El conocimiento de los granos y sus contornos en metales no es reciente. Ya en 1899 Ewing y Rosenhain (1899, 1900a) mencionan que cada uno de los granos que aparecen en una superficie pulida y atacada son en realidad, un monocristal.

Rosenhain (Ewing y Rosenhain, 1899, 1900a, 1900b) propuso una de las primeras teorías que procuró explicar el crecimiento de grano, mientras que Burke (Burke y Turnbull, 1952), Beck (1954) y Pande (1987) fueron los precursores de la explicación del potencial termodinámico para el crecimiento de grano, tal como se acepta en la actualidad: una disminución de la energía asociada con la presencia de bordes de grano. En realidad, fue Jeffries (Jeffries y Archer, 1924) quien afirmó que la presencia de bordes de grano era una condición de mayor energía y que, por lo tanto, debería llevar a una condición de menor energía a la de un monocristal.

Una estructura de granos es un resultado del compromiso entre los requisitos que operan entre las partes individuales, y los que justifican la ocupación del espacio (Smith, 1981).

La representación algebraica del perfil de equilibrio entre los granos se puede encontrar a partir de la suposición de que tres bordes se encuentren en un punto, una unión triple (Figura 1). En el equilibrio, la variación de energía libre es cero y por lo tanto, la ecuación que representa el sistema es: (ecuación 1)

$$\gamma_1 - \gamma_2 \cos \alpha_2 - \gamma_3 \cos \alpha_3 + (d\gamma_2/d\alpha_2) \operatorname{sen} \alpha_2 + (d\gamma_3/d\alpha_3) \operatorname{sen} \alpha_3 = 0 \quad (1)$$

donde los términos $[(d\gamma_2/d\alpha_2) \operatorname{sen} \alpha_2]$ y $[(d\gamma_3/d\alpha_3) \operatorname{sen} \alpha_3]$ son llamados de torque. Cuando estos términos de torque son cero, la ecuación se reduce a: (ecuación 2)

$$\gamma_1 - \gamma_2 \cos \alpha_2 - \gamma_3 \cos \alpha_3 = 0 \quad (2)$$

Suponiendo que la energía libre de superficie de los bordes es constante, $\gamma_1 = \gamma_2 = \gamma_3$, se puede llegar a ángulos de equilibrio de 120° . Por lo tanto, en dos dimensiones, una estructura de equilibrio será aquella formada por hexágonos, que poseen contornos rectos (radios de curvatura tendiendo a infinito) y ángulos de equilibrio de 120° en sus vértices.

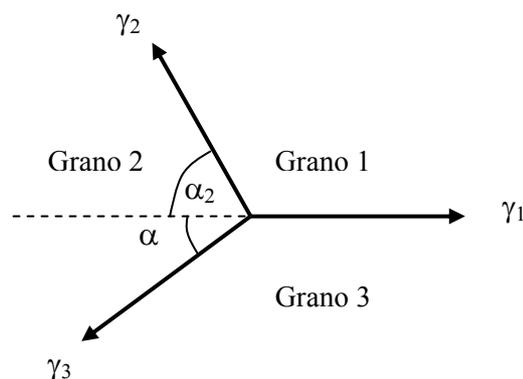


Figura 1. Encuentro de granos en una unión triple

Bidimensionalmente, una estructura formada completamente por hexágonos es difícil de encontrar (Hu, 1981) por causa de la naturaleza estocástica de los granos. Así, en una

estructura granular, es muy común encontrar granos cuyo número de lados sea diferente de seis. Éstos, por lo tanto, tenderán a curvarse para que se consiga el ángulo de equilibrio de 120° .

La consideración meramente mecánica para que una superficie curvada de un borde de grano esté en equilibrio, requiere que las fuerzas que actúan sobre ella se deban anular, es decir, que debe existir una presión del lado opuesto para balancear dichas fuerzas superficiales. Esta presión representa el potencial termodinámico para el crecimiento de grano. Llamándola ΔP , se tiene (ecuación 3):

$$\Delta P = 2\gamma / \rho \quad (3)$$

donde: ΔP : potencial termodinámico para el crecimiento de grano

γ : energía libre de superficie de borde

ρ : radio de curvatura

De esta ecuación atribuida a Gibbs-Thomson ([Shewmon, 1969](#)), se puede concluir que:

La curvatura de los bordes de grano promueve la migración preferencial de átomos de un lado para otro del contorno

Los átomos del lado cóncavo del borde se mueven preferencialmente hacia el lado convexo.

De esa forma, los bordes se mueven en el sentido de su centro de curvatura hasta que forme un arreglo estable en el cual no exista tendencia para su migración. Tal situación debe ser aquella en que el radio de curvatura tiende al infinito, o sea, cuando los contornos se vuelven rectos.

Históricamente, se han utilizado dos caminos para estudiar los mecanismos que llevan al crecimiento de grano. Uno está relacionado con los mecanismos de migración de bordes de grano a escala atómica (mecanismo atomístico), mientras que el otro está relacionado con los aspectos físicos y topológicos de una estructura de granos (mecanismo no-atomístico). Las dos visiones no son totalmente separadas, sino que por el contrario, ambos planteos se pueden unir.

Las teorías cinéticas de crecimiento de grano se pueden resumir ([Higgins, 1974](#)) como se observa en la ecuación 4:

$$V = M \Delta P \quad (4)$$

donde: V : velocidad de migración de los bordes de grano

M : movilidad del contorno granular, definido como la variación de la velocidad de migración con el potencial termodinámico

ΔP : potencial termodinámico para el crecimiento de grano

Los principales factores que influyen en la movilidad de los bordes de grano son la diferencia de orientación entre los granos ([Gleiter y Chalmers, 1972](#)), la presencia de átomos soluto (o impurezas) ([Aust y Rutter, 1959](#)), la presencia de partículas de segunda fase y la temperatura ([Porter y Easterling, 1981](#)).

2 MODELO

El método de autómatas celulares (AC) describe la evolución discreta temporal y espacial en un sistema físico mediante la aplicación de una regla de transformación que

puede ser determinística o probabilística (Raabe, 1998). Mientras que el método de Monte Carlo (MC) permite simular el crecimiento de grano teniendo en cuenta los factores termodinámicos que influyen en sistema (Miodownik, 2002; Bigerelle e Iost, 2002; Ivasishin et al., 2004; Cattaneo y Silveti, 2007).

La principal ventaja del modelo de AC, comparado con el modelo MC, es su característica de ser determinístico en la simulación. Es decir que las celdas del sistema se revisan una por una para determinar si ocurrirá o no una transformación. El estado de una celda en el paso t del AC está determinado por el estado de las celdas vecinas y su propio estado en el paso $t-1$. El método ya ha sido usado exitosamente en la simulación de varios procesos de evolución de microestructuras (Marx et al., 1999; Ding y Guo, 2001).

En este trabajo se presenta un modelo basado en un AC donde la selección de las reglas de transformación para cada celda están basadas en el método de MC.

El sistema está representado por una matriz cuadrada de tamaño $N \times N$. En cada sitio de la matriz se colocan valores entre 0 y 19, representando esos valores las distintas orientaciones de los granos.

El algoritmo sigue los siguientes pasos:

Se recorre cada sitio del sistema.

Se intercambia el valor de la orientación del sitio seleccionado por el valor de la de uno de sus vecinos elegido al azar

Se evalúa el cambio total de la energía asociada con el intercambio.

Se calcula la probabilidad p de transición de orientaciones.

Se genera un número aleatorio ξ tal que $0 \leq \xi < 1$

Se toma la decisión de intercambio, el cual es aceptado si ξ es menor o igual que la probabilidad de intercambio p . Para otro caso, el intercambio se desecha y la configuración inicial permanece inalterada.

El cálculo de la energía libre del sistema se realiza mediante el uso del Hamiltoniano, que describe la interacción entre vecinos más próximos (ecuación 5):

$$H = -J \sum_{i,j} (\delta_{S_i S_j} - 1) \quad (5)$$

donde J es una constante positiva específica que mide la interacción del sitio de red con los sitios vecinos, en nuestro caso la energía de borde de grano; S_i es una de las Q_i orientaciones posibles del elemento i de la matriz y $\delta_{S_i S_j}$ es el delta de Kronecker, que vale 1 cuando lo que se compara (el vecino) es igual y 0 cuando es diferente (Figura 2). La suma se realiza sobre los n primeros vecinos, donde n es igual a 8 para una red cuadrada.

La probabilidad de intercambio p , para un sistema gran canónico como el que se analiza en este caso, se basa en el método de Metrópolis (Beichi y Sullivan, 2000). Ecuación 6.

$$p = \begin{cases} \exp(-\Delta U / k_b T) & \text{si } \Delta U > 0 \\ 1 & \text{si } \Delta U \leq 0 \end{cases} \quad (6)$$

donde: ΔU es la variación de la energía ocasionada por el cambio de orientación ($\Delta U = \Delta H$), k_b es la constante de Boltzmann y T es la temperatura absoluta a la que se realiza el ensayo.

Si asumimos que la migración de borde de grano ocurre por la transferencia de un átomo de un grano a otro (Gleiter y Chalmers, 1972), debemos considerar que la difusión de borde de grano, es uno de los mecanismos atómicos involucrado en el crecimiento de grano.

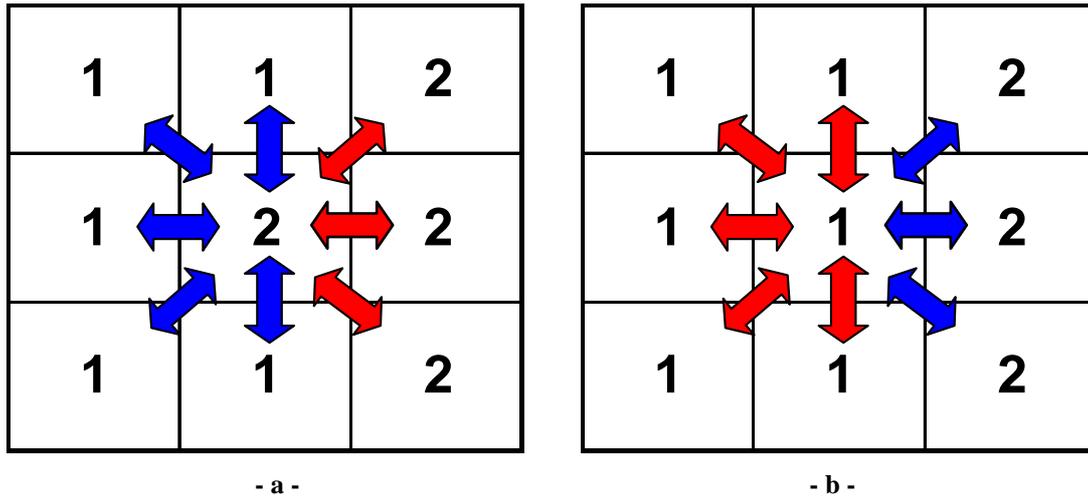


Figura 2: Cálculo de la energía libre de un elemento de la matriz ($Q_i = 2$).

a- En este ejemplo, $G_i = 5$ (cinco vecinos cercanos diferentes)

b- Luego de un intento de reorientación a $Q_f = 1$, la energía libre se reduce a $G_f = 3$, y por lo tanto, la nueva orientación será mantenida.

La probabilidad que un átomo a una temperatura T de ensayo difunda, respecto de la probabilidad de difundir a la temperatura del cambio de fase del sistema se indica en la ecuación 7:

$$\frac{\exp(-Q/k_B T)}{\exp(-Q/k_B T_f)} \tag{7}$$

donde Q es la energía de activación para la difusión de borde de grano, y T_f la temperatura de cambio de fase del sistema.

La inclusión de la difusión de borde de grano, puede ser considerada en el cálculo de la probabilidad de transición, en una forma similar al factor de movilidad de los sistemas texturados (Mehnert y Klimanek, 1996; Rollet et al., 1989; Cattaneo y Silveti, 2007), multiplicando la probabilidad de Metrópolis por la probabilidad que un átomo a una temperatura T difunda, respecto de la probabilidad de difundir a la temperatura del cambio de fase del sistema, obteniéndose (ecuación 8)

$$p = \begin{cases} \frac{\exp(-Q/k_B T)}{\exp(-Q/k_B T_f)} * \exp(-\Delta U/k_b T) & \text{si } \Delta U > 0 \\ \frac{\exp(-Q/k_B T)}{\exp(-Q/k_B T_f)} * 1 & \text{si } \Delta U \leq 0 \end{cases} \quad (8)$$

Con lo cual la probabilidad p de transición de orientaciones no sólo tiene en cuenta la energía de borde de grano, sino también la difusión de borde grano y la temperatura de cambio de fase del sistema.

3 RESULTADOS

3.1 Sistema Monofásico

Para evaluar el funcionamiento del algoritmo propuesto, se simuló el crecimiento de grano, para distintos sistemas monofásicos y bifásicos a diferentes temperaturas.

Los sistemas monofásicos estudiados son plomo, cobre y hierro en la fase ferrita (hierro α), los parámetros utilizados para estos materiales son

Plomo: $\gamma = 0,2 \text{ J/m}^2$, $Q = 10 \text{ kcal/mol}^{-1}$, $T_f = 600^\circ\text{K}$

Cobre: $\gamma = 0,53 \text{ J/m}^2$, $Q = 17 \text{ kcal/mol}^{-1}$, $T_f = 1357^\circ\text{K}$

Hierro α : $\gamma = 0,8 \text{ J/m}^2$, $Q = 33 \text{ kcal/mol}^{-1}$, $T_f = 1173^\circ\text{K}$

los valores de energía de borde de grano se tomaron de [Martin y Doherty \(1976\)](#) y los de la energía de activación para la difusión en borde de grano de [Gleiter y Chalmers \(1972\)](#).

En la [figura 3](#) se muestra cómo varía la probabilidad de difusión en borde de grano en función de la temperatura, para los tres materiales estudiados.

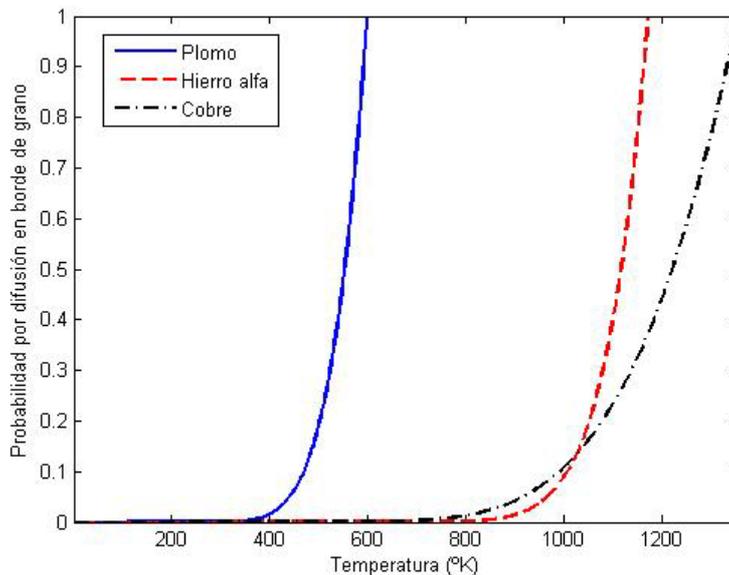


Figura 3. Probabilidad de difusión en borde de grano en función de la temperatura para el plomo, cobre y hierro α

Del análisis de la gráfica de la [figura 3](#) y la ecuación [8](#), vemos que la probabilidad de difusión en borde de grano tiene una importante influencia en la probabilidad p de transición de orientaciones, ya que permite diferenciar con claridad tanto el material que se está estudiando, como la temperatura a la que se realiza el ensayo.

En las [figuras 4, 5 y 6](#) se muestra la evolución de la microestructura para distintas temperaturas, para el plomo, cobre y hierro respectivamente. En ellas se grafica el cuadrado del diámetro medio de los granos en función del tiempo (ciclos de autómatas celulares). Se observa que la evolución de la microestructura es diferente para cada material y para cada temperatura de ensayo, lo que concuerda con lo reportado por datos experimentales ([Martin y Doherty, 1976](#)); además, se observa que el crecimiento de grano para un sistema monofásico responde a la relación expresada en la ecuación [9](#):

$$D^2 = D_0^2 + kt \quad (9)$$

donde D es el diámetro medio de grano al tiempo t y D_0 es el diámetro medio inicial.

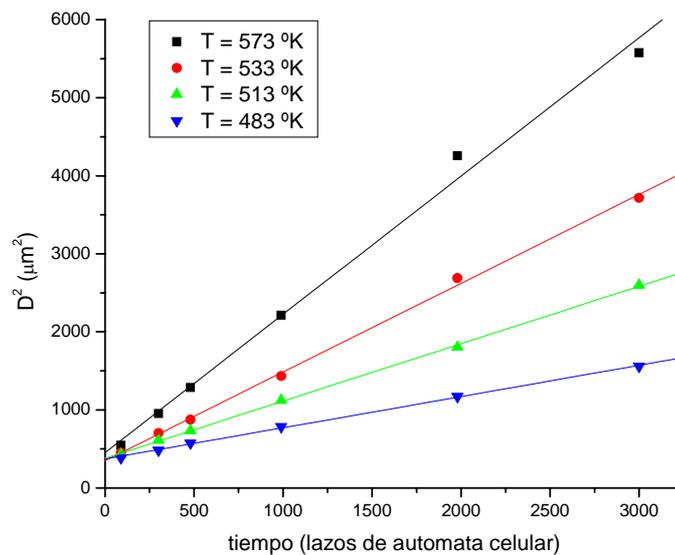


Figura 4. Crecimiento de grano isotérmico para el plomo monofásico

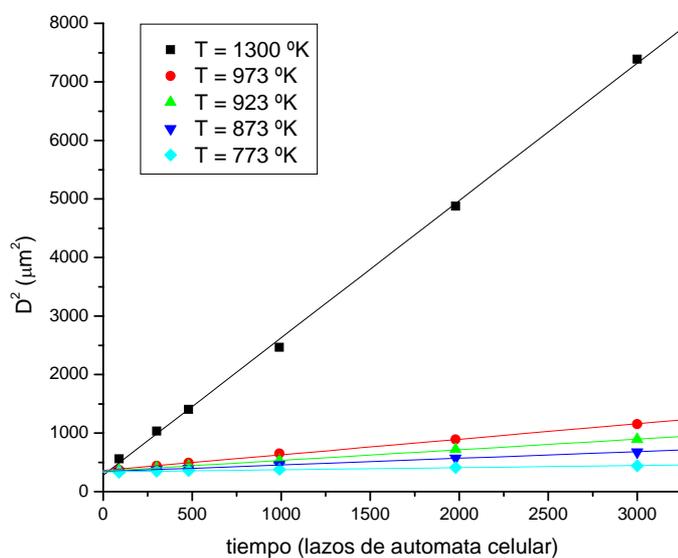


Figura 5. Crecimiento de grano isotérmico para el cobre monofásico

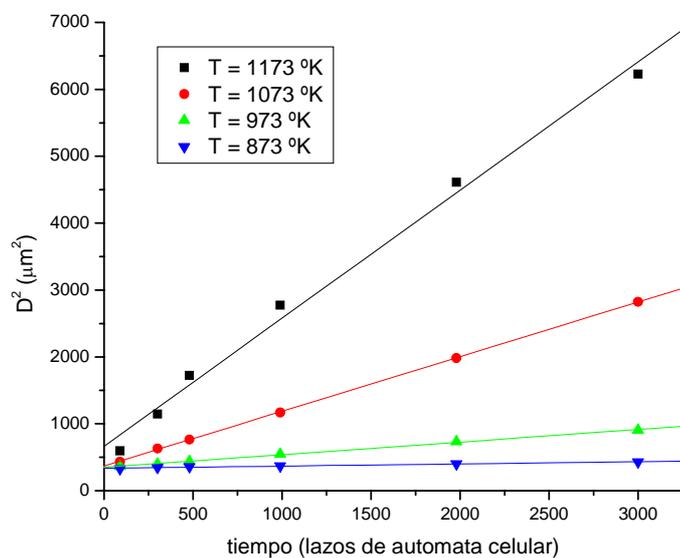


Figura 6. Crecimiento de grano isotérmico para el hierro alfa monofásico

3.2 Sistema Bifásico

Los sistemas bifásicos considerados en este estudio son el plomo a 483°K y el hierro a 1073°K; en estos sistemas se consideró la insolubilidad total de las partículas de segunda fase. Se varió la fracción volumétrica de partículas de segunda fase pero manteniendo el tamaño de partícula fijo en 2 micrones.

En las figuras 7 y 8 se muestra la evolución del tamaño de grano para estos sistemas.

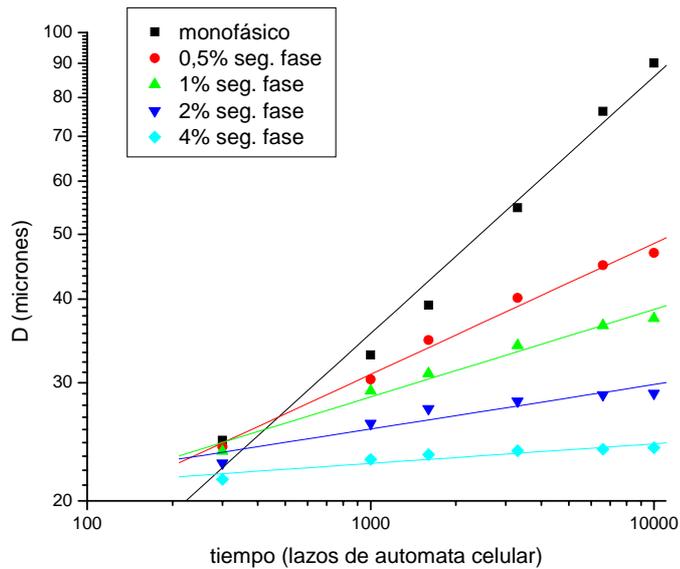


Figura 7. Crecimiento de grano isotérmico para el plomo bifásico

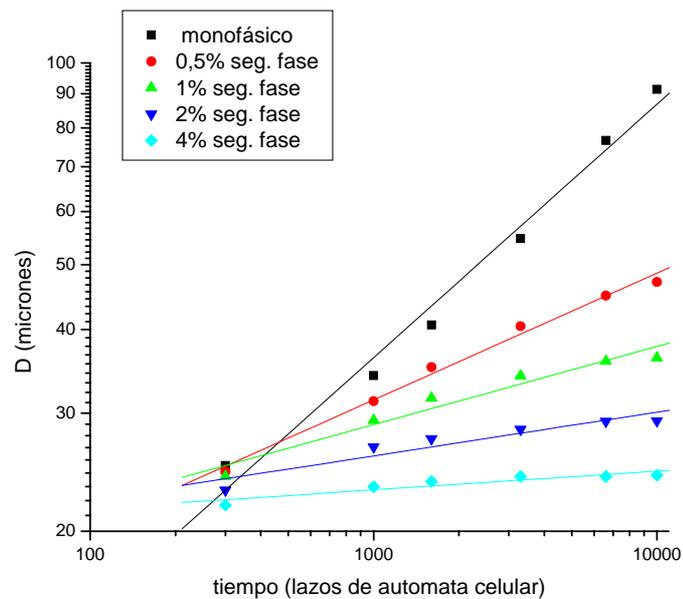


Figura 8. Crecimiento de grano isotérmico para el hierro alfa bifásico

Se observa que el tamaño de grano responde a la ley (ecuación 10)

$$D = Kt^n \quad (10)$$

donde n es el exponente de crecimiento de grano, que disminuye a medida que aumenta la fracción de partícula de segunda fase, lo cual está de acuerdo con los datos experimentales (Martin y Doherty, 1976).

4 CONCLUSIONES

En este trabajo se desarrolla un modelo híbrido, que utiliza el método determinista de autómatas celulares y el método probabilístico de Monte Carlo, para analizar el crecimiento de grano de sistemas monofásicos y bifásicos.

En los tres sistemas monofásicos estudiados, esto es plomo, cobre y hierro en la fase ferrita, encontramos que la probabilidad de difusión en borde de grano tiene una importante influencia en la probabilidad p de transición de orientaciones. Ambas probabilidades se complementan y permiten identificar el material que se está estudiando, y la temperatura a la que se realiza el ensayo. Además, para cada material y para cada temperatura de ensayo, el modelo desarrollado indica que el cuadrado del tamaño de grano depende linealmente con el tiempo, lo que concuerda con lo reportado experimentalmente en sistemas monofásicos.

Al analizar cómo influye la presencia de partículas de segunda fase sobre el crecimiento de grano en el plomo, se advierte que a medida que se incrementa la fracción de partículas de segunda fase el exponente de crecimiento de grano disminuye. Esto coincide con el comportamiento experimental que indica que los bordes de grano se hayan fuertemente anclado cuando no hay disolución de precipitados. Este comportamiento que también se observa en el hierro α bifásico, indicaría que el modelo desarrollado en este trabajo representa en forma acabada la evolución del tamaño de grano en materiales bifásicos.

5 REFERENCIAS

- K. T. Aust y J. W. Rutter. Grain boundary migration in high-purity lead and dilute tin alloys. *Transaction AIME*, 215:119-127. 1959.
- P. A. Beck. Annealing of Cold Worked Metals. *Advances in Physics. A Quarterly Supplement of the Philosophical Magazine*. Vol. 3, 11, : 245-324. 1954.
- I. Beichi y F. Sullivan. The Metropolis algorithm, *Computing Science & Engineering*, 65-69. 2000.
- M. Biggerelle y A. Iost. A new method to calculate the fractal dimension of an interface application to a Monte Carlo diffusion process. *Computational Material Science*. 24:122-127. 2002.
- J. E. Burke y D. Turnbull. *Recrystallization and Grain Growth, Progress in Metal Physics*, ed. B. Chalmers. London Pergamon Press. Ltd., 220-292. 1952
- C. Cattaneo y S. Silveti. Análisis de crecimiento anormal de grano aplicando el método de Monte Carlo. *Mecánica Computacional XXVI*: 1597-1610. 2007.
- R. Ding y Z. X. Guo. Coupled quantitative simulation of microstructural evolution and plastic flow during dynamic recrystallization. *Acta Mater*. 49: 1363-1375. 2001

- A. Ewing y W. Rosenhain. The Crystalline Structure of Metals. *Proceedings of the Royal Society*. 90:65-85, 1899.
- J. A. Ewing y W. Rosenhain. The Crystalline Structure of Metals. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A*. 193: 353-372. 1900a
- J. A. Ewing y W. Rosenhain. The Crystalline Structure of Metals. (Second Paper). *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A*. 195: 279-301. 1900b
- H. Gleiter y B. Chalmers. *High-Angle Grain Boundaries*. Pergamon Press. 1972.
- G. T. Higgins. *Metal Science* 8: 143-150. 1974.
- H. Hu. USA-China Bilateral Conference. *The Metallurgical Society of AIME*, 385-407. 1981.
- O. M. Ivasishin, S. V. Schevchenko, S. L. Semiatin. Modeling of abnormal grain growth in textured materials. *Scripta Materialia*. 50:1241-1245. 2004.
- Z. Jeffries y R. S. Archer. *The Science of Metals*. McGraw-Hill Book Company Inc., 1924.
- Y. Liu, T. Baudin y R. Penelle. Simulation of normal grain growth by cellular automata. *Scripta Materialia*. 11: 1679-1683. 1996.
- J. W. Martin y R. D. Doherty. *Stability of Microstructure in Metallic Systems*, Cambridge University Press. 1976.
- V. Marx, F. R. Reher y G. Gottstein. Simulation of primary recrystallization using a modified three-dimensional cellular automaton. *Acta Materialia*. 47: 1219-1230. 1999
- K. Mehnert y P. Klimanek. Monte Carlo simulation of grain growth in textured metals using anisotropic grain boundary mobilities. *Computational Materials Science*. 7:103-108. 1996
- M. A. Miodownik. A review of microstructural computer models used to simulate grain growth and recrystallisation in aluminium alloys. *Journal of Light Metals*. 2:125-135. 2002
- C. S. Pande. On the Stochastic Theory of Grain Growth. *Acta Metallurgica*. vol.35, 11:2671-2678, 1987.
- D. A. Porter y K. E. Easterling. *Phase Transformations in Metals and Alloys*, Van Nostrand Reinhold, Berkshire, U.K. 1981.
- D. Raabe. *Computational Materials Science - The Simulation of Materials Microstructures and Properties*. Wiley-VCH. 1998
- A. D. Rollett, D. J. Srolovitz y M. P. Anderson. Simulation and theory of abnormal grain growth—anisotropic grain boundary energies and mobilities. *Acta Metallurgica*. 37:1227-1240. 1989.
- P.G. Shewmon. *Transformations in Metals*, McGraw Hill Inc. 69-137. 1969.
- C. S. Smith. *A Search for Structure*, Cambridge, MIT Press, 1-32. 1981.