

EVOLUCION DEL CRECIMIENTO DE GRANO RECRISTALIZADO EN METALES

Carlos A. Cattaneo^a, Pablo S. Togo^b, Silvia P. Silvetti^{c,d}

^a Facultad de Agronomía y Agroindustrias, Universidad Nacional de Santiago del Estero, Av. Belgrano Sur 1912; G4200ABT Santiago del Estero, Argentina, cacatta@unse.edu.ar
<http://faa.unse.edu.ar>

^b Facultad de Agronomía y Agroindustrias, Universidad Nacional de Santiago del Estero, Av. Belgrano Sur 1912; G4200ABT Santiago del Estero, Argentina, psebastian_togo@yahoo.com.ar

^c Facultad de Matemática, Astronomía y Física, Universidad Nacional de Córdoba. Ciudad Universitaria, 5000 Córdoba, Argentina, silvetti@famaf.unc.edu.ar

^d Facultad de Ingeniería, Instituto Universitario Aeronáutico, Avda. Fuerza Aérea 6500. 5000 Córdoba, Argentina.
<http://www.famaf.unc.edu.ar>

Palabras clave: Recristalización, Crecimiento de grano, Aleaciones bifásicas, Autómata celular.

Resumen. En este trabajo se simula el proceso de recristalización con crecimiento de grano en materiales metálicos. El algoritmo desarrollado se basa en un autómata celular cuyas reglas de selección utilizan el método de Monte Carlo. Dicho algoritmo permite variar: el tamaño y la fracción de partículas de segunda fase, la temperatura del tratamiento térmico, el porcentaje de deformación en frío de la probeta y la distribución de densidad de dislocaciones, la energía de borde de grano y la auto difusión del material.

A partir de las simulaciones se determinan el porcentaje de recristalización y el tamaño del grano recristalizado en función del tiempo, los cuales se utilizan para estudiar las cinéticas de los procesos involucrados.

La cinética del proceso de recristalización es analizada mediante la ecuación Kolmogorov-Johnson-Mehl-Avrami (KJMA) la cual describe las transformaciones de fase a temperatura constante y muestra cómo varía la constante de Avrami (β) y el exponente de Avrami (n), con la temperatura del tratamiento térmico, el porcentaje de trabajo en frío y la densidad de dislocaciones. La cinética de crecimiento del grano recristalizado se analiza estudiando la velocidad de crecimiento de grano.

Para los sistemas bifásicos estudiados en este trabajo se observa que, a una temperatura de recocido dada, la velocidad de recristalización parte de cero, se incrementa hasta alcanzar un valor máximo y posteriormente disminuye en forma exponencial hasta anularse, momento en el cual se detiene el crecimiento de grano.

1 INTRODUCCION

Luego de que un metal ha sido trabajado en frío y posteriormente recocido experimenta cambios microestructurales, a fin de disminuir la energía acumulada en forma de dislocaciones producidas durante la deformación (Burke and Turnbull 1952). Esa disminución de la energía se logra a través de mecanismos de reducción y distribución de los defectos en la red cristalina. Entre los mecanismos que producen esos cambios microestructurales se encuentran:

- la absorción de defectos puntuales y migración de dislocaciones de alto ángulo.
- la reducción de la superficie total del límite de grano.

El primer cambio microestructural corresponde a la formación de nuevos granos, es decir a la recrystalización, y el segundo al crecimiento de grano (Totten and Mackenzie 2003). De esa forma se logra la eliminación de las tensiones internas del metal a medida que disminuye la densidad de dislocaciones (Burke and Turnbull 1952).

La fuerza impulsora de la recrystalización proviene de la energía almacenada durante el trabajado en frío. La deformación acumulada debe ser suficiente para proporcionar núcleos para la recrystalización y para proporcionar la fuerza motriz necesaria para sostener su crecimiento, durante el tratamiento térmico.

El proceso de recrystalización presenta características específicas relacionadas con el tamaño y la fracción de partículas de segunda fase, la temperatura de recocido, el porcentaje de trabajo en frío de la probeta y la distribución de densidad de dislocaciones, la energía de borde de grano y la auto difusión del material.

La temperatura a la cual se produce recrystalización disminuye a medida que el tiempo de los tratamientos térmicos aumenta. La relación entre el porcentaje de material recrystalizado y la temperatura está dada por la ecuación de Arrhenius

La temperatura a la cual se inicia la recrystalización disminuye a medida que aumentan la energía almacenada. La nucleación y el crecimiento ocurren más rápido o se producen a menor temperatura, cuando un material se encuentra altamente deformado.

El tamaño de grano recrystalizado depende principalmente de la cantidad de deformación, siendo más pequeño para grandes cantidades, dado que una mayor cantidad de energía acumulada, proporciona más núcleos por unidad de volumen

Los límites de grano son sitios privilegiados para la nucleación, por lo tanto para un tamaño inicial de grano más grande, se dispone de un menor número de puntos de nucleación, con lo cual se obtiene una tasa de nucleación baja, y el porcentaje de recrystalización es más lento.

Las partículas de segunda fase juegan un papel muy importante en las aleaciones, tanto en el proceso de la nucleación como durante el crecimiento del grano recrystalizado. El tamaño de las partículas, y en menor medida su distribución, determinan si éstas inducen a la nucleación o si, por el contrario, pueden llegar a inhibir la migración de bordes de grano por pinzamiento de los mismos. Numerosos estudios (Humphreys y Hatherly 2004) han demostrado que la estimulación de la nucleación por las partículas de segunda fase ocurre cuando ellas son de gran tamaño, mientras que el pinzamiento de los bordes de grano (conocido como el efecto de Zener) es un efecto de las partículas pequeñas.

Una vez completada la recrystalización, la microestructura de los granos recrystalizados no es estable todavía. La energía límite de grano actúa ahora como una fuerza motriz para el crecimiento de los granos con el fin de disminuir el número de granos por unidad de volumen, en otras palabras, disminuye el área total de estos límites. Esto puede ocurrir de dos maneras:

1. de forma continua, es decir, con el crecimiento continuo del tamaño de grano medio, lo que se conoce como crecimiento normal de grano.
2. de forma discontinua, con el crecimiento acelerado de sólo algunos granos, lo que se denomina crecimiento anormal de grano

Al igual que en la recristalización, el crecimiento del grano es un proceso activado térmicamente. Sin embargo, la fuerza motriz para el crecimiento del grano es de aproximadamente dos órdenes de magnitud más pequeña que la fuerza motriz de la recristalización (Burke and Turnbull 1952).

Aunque existe mucha bibliografía, tanto de resultados experimentales como de simulación que estudian solamente el crecimiento de grano o sólo la recristalización de los metales, son escasos los estudios de crecimiento de los nuevos granos recristalizados desde su nucleación. El objeto de este trabajo es el de estudiar la cinética de crecimiento de los nuevos granos recristalizados a través de los datos obtenidos por simulaciones del proceso de recristalización, a la vez que se estudia la cinética de recristalización de sistemas bifásicos.

2 TRATAMIENTO REALIZADO A LOS RESULTADOS DE LAS SIMULACIONES

Durante el proceso de recristalización, los nuevos granos primero nuclean y luego crecen. En el presente trabajo se analiza la cinética de recristalización y la cinética del crecimiento del nuevo grano recristalizado.

Las simulaciones de recristalización se realizaron aplicando un algoritmo previamente desarrollado que se basa en Autómatas Celulares con reglas de selección basadas en el método de Monte Carlo.

Para el sistema monofásico, las simulaciones se realizaron utilizando los algoritmos presentados por Cattaneo y Silveti en 2011 y 2010, y para el sistema bifásico mediante el algoritmo presentado por Cattaneo y Silveti en 2012.

La cinética del proceso de recristalización se analiza utilizando el modelo de Johnson-Mehl-Avrami-Kolmogorov (JMAK) (Humphreys y Hatherly 2004). Este modelo asume que los núcleos se forman con una velocidad N y que van consumiendo la matriz deformada con una velocidad G . En el caso general se puede describir la evolución de la fracción recristalizada, F , como se indica en la ecuación 1:

$$F = 1 - \exp(-\beta t^n) \quad (1)$$

donde n es el coeficiente de Avrami, t el tiempo de recocido y β es una constante que depende de la temperatura según la ley :

$$\beta = \beta_0 \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \quad (2)$$

donde β_0 es una constante que es función de otros parámetros, como la composición química, el tamaño de grano o la reducción en frío, Q es la energía aparente de activación para la recristalización, R la constante de los gases perfectos y T es la temperatura absoluta.

La cinética de crecimiento de grano del sistema bifásico se analiza mediante la ecuación 3, propuesta por Cattaneo et al. en 2011

$$D = D_L + A e^{-\frac{t}{\tau}} \quad (3)$$

Donde D_L representa el tamaño de grano límite, A es igual a la diferencia entre el tamaño inicial de grano y el tamaño de grano límite y τ es una constante de tiempo

3 RESULTADOS

Los datos obtenidos de las simulaciones son:

- La fracción recristalizada o porcentaje de recristalización en función del tiempo de simulación (lazos de autómatas celulares).
- El tamaño de grano recristalizado en función del tiempo de simulación.

Con el primer conjunto de datos analizamos la cinética de recristalización, para ello construimos las gráficas de Avrami linealizando la [ecuación 1](#), con lo que se obtiene la constante β y el coeficiente n , que permiten calcular la energía aparente de activación mediante la ley expresada en la [ecuación 2](#).

Con el segundo conjunto de datos se analiza la cinética de crecimiento del grano recristalizado, mediante la [ecuación 3](#).

Las simulaciones se realizaron para Aluminio bifásico con partículas de segunda fase insolubles.

Los parámetros de aluminio utilizados son:

- Calor de difusión en borde de grano $Q = 15000$ Cal/mol
- Energía de borde de grano $\gamma = 0,6$ J/m²
- Temperatura de fusión $T_f = 933$ K
- Módulo de corte $G = 26 \cdot 10^9$ N/m²
- Módulo del vector de Burgers $b = 0,286 \cdot 10^{-9}$ m.

Se definió un microcristal de $0,8 \times 10^{-6}$ m de lado, y una matriz inicial de grano con un tamaño medio de grano de $10,97$ μ m.

Las temperaturas seleccionadas para realizar las simulaciones fueron: 573K, 673K, 773K y 873K.

Los sistemas de segunda fase analizados fueron:

- para partículas de radio $0,4$ μ m se usaron fracciones de partícula de segunda fase de 0,02; 0,04 y 0,06
- para la fracción de partículas de segunda fase de 0,06 se usaron partículas de $0,4$ μ m, $1,2$ μ m y $2,0$ μ m de radio.

3.1 Cinética de recristalización

En la [figura 1](#) se muestra el gráfico de Avrami para el sistema de 0,02 de fracción de partículas de segunda fase con tamaño de $0,4$ μ m. En ella se observa que el modelo JKMA ajusta a los datos de las simulaciones.

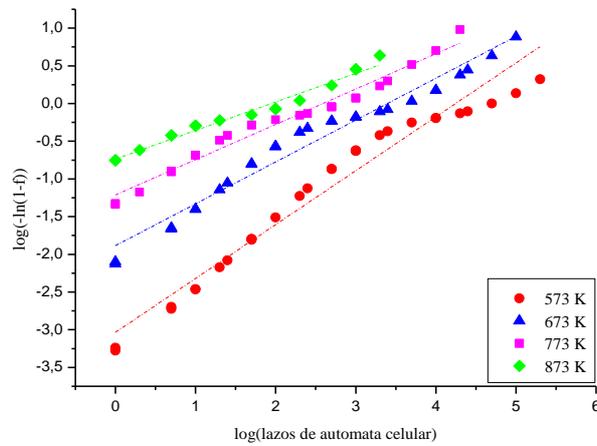


Figura 1: Gráfico de Avrami para el sistema de 0,02 de fracción de partículas de segunda fase con tamaño de 0,4 μm

Con los resultados del ajuste de Avrami se reconstituyeron las curvas S de recristalización, en la figura 2 se muestran las curvas de recristalización de los datos de las simulaciones y las reconstituidas a partir de los parámetros de Avrami para el sistema de 0,04 de fracción de partículas de segunda fase con tamaño de 0,4 μm . Se puede observar que a medida que se incrementa la temperatura del ensayo, las curvas reconstituidas tiene una mejor aproximación a los datos simulados.

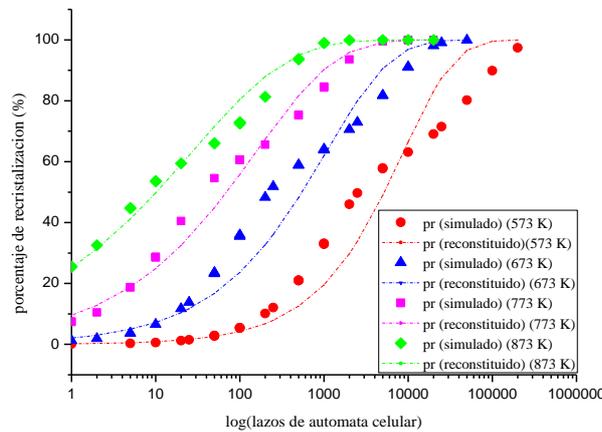


Figura 2: Curvas de recristalización para el sistema de 0,04 de fracción de partículas de segunda fase con tamaño de 0,4 μm

En la tabla 1 se muestran parámetros de Avrami determinados, y la energía aparente de activación para la recristalización calculada, para cada sistema simulado.

Sistema	Condiciones de simulación	Temp (K)	β	n	Q (KJ/mol)
$F_{sf}=0,02$ $R_p=0,4\mu\text{m}$ $\lambda=2,38\ \mu\text{m}$	$\%wc=73\%$ $\delta=3,37 \cdot 10^{15} (1/\text{m}^2)$	573	0,0009	0,71	74
		673	0,013	0,55	
		773	0,061	0,47	

		873	0,18	0,38	
$F_{sf}=0,04$ $R_p=0,4\mu\text{m}$ $\lambda=1,89\mu\text{m}$	% $\omega c=75\%$ $\delta=5,08.10^{15} (1/\text{m}^2)$	573	0,002	0,70	72
		673	0,02	0,55	
		773	0,10	0,45	
		873	0,29	0,37	
$F_{sf}=0,06$ $R_p=0,4\mu\text{m}$ $\lambda=1,65\mu\text{m}$	% $\omega c=75\%$ $\delta=6,8.10^{15} (1/\text{m}^2)$	573	0,002	0,71	72
		673	0,03	0,56	
		773	0,14	0,45	
		873	0,41	0,37	
$F_{sf}=0,06$ $R_p=1,2\mu\text{m}$ $\lambda=4,94\mu\text{m}$	% $\omega c=71\%$ $\delta=2,27.10^{15} (1/\text{m}^2)$	573	0,0005	0,75	78
		673	0,009	0,56	
		773	0,05	0,46	
		873	0,14	0,39	
$F_{sf}=0,06$ $R_p=2\mu\text{m}$ $\lambda=8,24\mu\text{m}$	% $\omega c=71\%$ $\delta=2,02.10^{15} (1/\text{m}^2)$	573	0,0002	0,81	84
		673	0,004	0,62	
		773	0,02	0,52	
		873	0,08	0,44	

Tabla 1: Parámetros de Avrami y energía aparente de activación para todos los sistemas

La figura 3 muestra como varía el exponente de Avrami para todos los sistemas bifásicos estudiados en función de la temperatura de recocido.

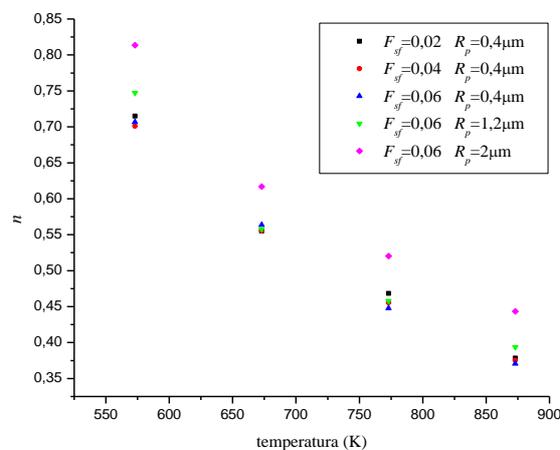


Figura 3: Exponente de Avrami para todos los sistemas bifásicos.

En la figura 3 y en la tabla 1, se puede observar que a medida que la temperatura de recocido aumenta, la constante de Avrami (β) se incrementa mientras que el coeficiente de Avrami (n) disminuye.

La figura 4 muestra el ajuste de la expresión logarítmica de la ecuación 2 para los sistemas bifásicos simulados. A partir del ajuste de las pendientes obtenidas se obtiene la energía aparente de activación del proceso de recristalización. Los resultados para los distintos sistemas estudiados se expresan en la tabla 1. Se observa que la energía aparente de activación de recristalización es mayor para los sistemas con menor densidad de dislocaciones, lo que es razonable ya que una menor densidad de dislocaciones indica menor

cantidad de energía de deformación en el estado inicial, por lo cual el sistema tiene una mayor energía de activación para el proceso de recristalización.

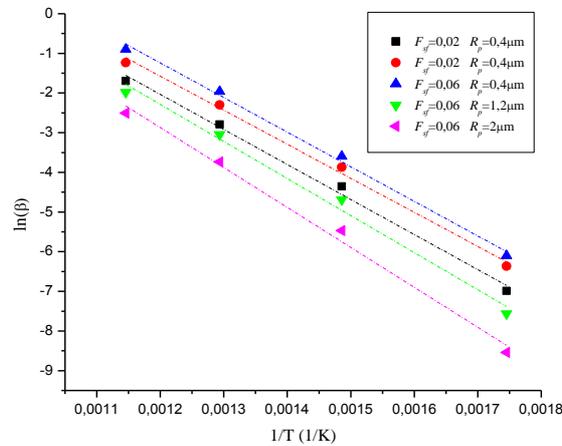


Figura 4: Gráfica de Arrhenius para los sistemas bifásico

3.2 Cinética de crecimiento de grano recristalizado

En la figura 5 se muestra el crecimiento de grano para el sistema simulado de 0,06 de fracción de partículas de segunda fase con tamaño de partícula de $0,4 \mu\text{m}$.

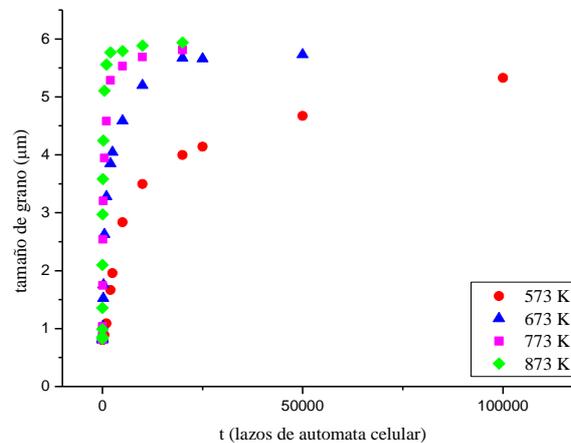


Figura 5: Curvas de crecimiento de grano para el sistema de 0,06 de fracción de partículas de segunda fase con tamaño de $0,4 \mu\text{m}$

A partir de los datos de tamaño de grano obtenidos en la simulación, se calcula la velocidad de crecimiento de grano. En la figura 6 se puede observar cómo inicialmente la velocidad crece linealmente hasta alcanzar un valor máximo, a partir del cual decrece en forma exponencial tendiendo a cero a tiempos de simulación altos.

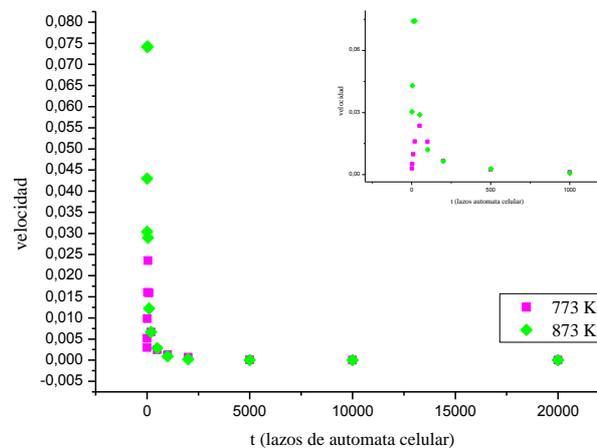


Figura 6: velocidad de crecimiento de grano para sistema de 0,06 de fracción de partículas de segunda fase con tamaño de 0,4 μm

Una vez determinados los tiempos a los cuales se alcanza la máxima velocidad de crecimiento, se procedió a aplicar la [ecuación 3](#) para ajustar los tamaños de grano recrystalizados; este ajuste se aplica para los tiempos iguales o mayores que al instante en que se logra la máxima velocidad.

En la [tabla 2](#) se muestran los valores de: tamaño de grano recrystalizado, porcentaje de recrystalización y tiempo de ensayo alcanzados por cada sistema bifásico al lograr la velocidad máxima, además se muestran los parámetros de ajuste para el crecimiento de grano recrystalizado empleando la [ecuación 3](#).

Sistema	Condiciones de simulación	Temp (K)	Valores para velocidad máxima alcanzada			Parámetros de ajuste		
			t	pr %	D (μm)	D_L (μm)	A (μm)	τ
$F_{sf}=0,02$ $R_p=0,4\mu\text{m}$ $\lambda=2,38\ \mu\text{m}$	% $\omega c=73\%$ $\delta=3,37 \cdot 10^{15} (1/\text{m}^2)$	573	2500	35	1,76	7,70	-5,30	72090
		673	250	37	1,63	9,76	-7,24	15594
		773	50	40	1,63	9,90	-7,43	3016
		873	20	45	2,01	10,22	-7,63	936
$F_{sf}=0,04$ $R_p=0,4\mu\text{m}$ $\lambda=1,89\ \mu\text{m}$	% $\omega c=75\%$ $\delta=5,08 \cdot 10^{15} (1/\text{m}^2)$	573	2000	46	1,61	6,51	-4,43	37654
		673	250	52	1,71	6,89	-4,56	5699
		773	50	55	1,67	7,05	-4,83	1228
		873	20	59	2,05	7,24	-4,80	397
$F_{sf}=0,06$ $R_p=0,4\mu\text{m}$ $\lambda=1,65\ \mu\text{m}$	% $\omega c=75\%$ $\delta=6,8 \cdot 10^{15} (1/\text{m}^2)$	573	2500	61	1,96	5,49	-3,14	25574
		673	200	60	1,52	5,53	-3,66	2466
		773	50	66	1,74	5,61	-3,47	648
		873	20	72	2,10	5,77	-3,40	226
$F_{sf}=0,06$ $R_p=1,2\mu\text{m}$ $\lambda=4,94\ \mu\text{m}$	% $\omega c=71\%$ $\delta=2,27 \cdot 10^{15} (1/\text{m}^2)$	573	2500	28	1,56	7,06	-4,96	78564
		673	250	31	1,50	11,20	-8,76	26357
		773	50	35	1,52	11,79	-9,31	5668
		873	20	39	1,88	12,11	-9,54	1521
$F_{sf}=0,06$	% $\omega c=71\%$	573	2500	20	1,53	7,476	-5,32	82734

$R_p=2\mu\text{m}$ $\lambda=8,24\ \mu\text{m}$	$\delta=2,02.10^{15}(1/\text{m}^2)$	673	250	23	1,48	17,34	-14,53	62416
		773	50	27	1,52	16,77	-13,95	10867
		873	20	32	1,93	17,94	-15,05	3280

Tabla 2: Parámetros de ajuste para el crecimiento de grano recrystalizado

En la [figura 7](#) se muestran las curvas de ajuste para el crecimiento de grano recrystalizado para el sistema de 0,06 de fracción de partículas de segunda fase con tamaño de 1,2 μm , aplicando el ajuste propuesto en la [ecuación 3](#), tomando como t_0 y D_0 los valores correspondientes al de la máxima velocidad alcanzada para cada simulación.

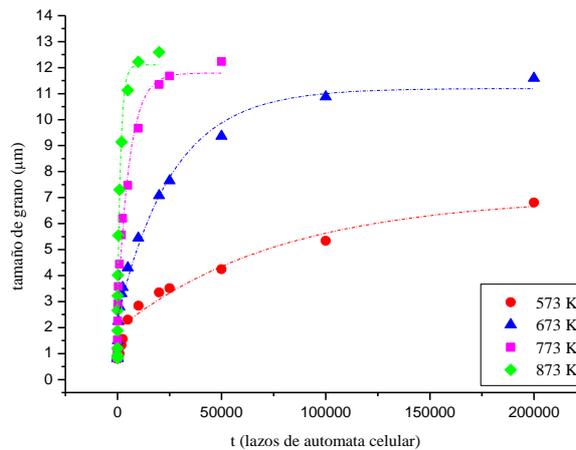


Figura 7: Curvas de ajuste de crecimiento de grano a distintas temperaturas, para el sistema de 0,06 de fracción de partículas de segunda fase con tamaño de 1,2 μm

Derivando la [ecuación 3](#) respecto del tiempo, se obtiene la velocidad de crecimiento de grano:

$$V = -\frac{A}{\tau} e^{-t/\tau} \tag{4}$$

Esta expresión es no negativa (recordemos que A es menor que cero), y para tiempos muy grandes se hace cero, lo cual indica que el grano no crece, que alcanzó su tamaño límite.

A partir de los valores de los parámetros de ajuste obtenidos de la [ecuación 3](#) y aplicando la [ecuación 4](#), se construye la [figura 8](#), en la que se superponen la velocidad determinada a partir de los resultados de las simulaciones, y la velocidad obtenida mediante la derivada de la [ecuación 3](#) ([ecuación 4](#)). En la misma se observa que la [ecuación 4](#) reproduce los resultados de las simulaciones, lo que indica que el ajuste utilizado es válido para el crecimiento de grano recrystalizado.

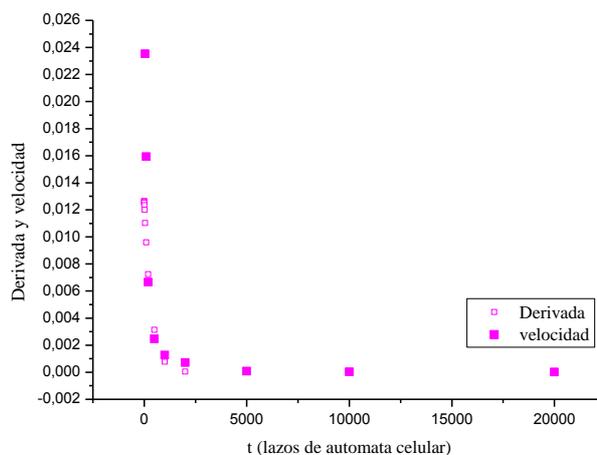


Figura 8: Curva de decaimiento exponencial de la velocidad y derivada de ecuación 3 para el sistema 0,06 de fracción de partículas de segunda fase con tamaño de $0,4\mu\text{m}$ a 773 K

4 CONCLUSIONES

Las figuras 1 y 2 nos indican que el modelo de Johnson-Mehl-Avrami-Kolmogorov, permite analizar la cinética de recristalización de los resultados de las simulaciones, estudiando como varían los parámetros de Avrami con la temperatura.

- El coeficiente de Avrami n , disminuye con el aumento de la temperatura como se puede observar en la figura 3 y tabla 1, y los valores disminuyen a medida que aumenta la densidad de dislocaciones, hasta alcanzar valores constante para densidades de dislocaciones iguales o mayores a $\delta=3,37 \cdot 10^{15} \text{ (1/m}^2\text{)}$.
- La constante β aumenta de valor a medida que aumenta la temperatura de ensayo y aumenta su valor con el aumento de la densidad de dislocaciones.
- La energía aparente de activación de recristalización, obtenida mediante el gráfico de Arrhenius (figura 4) correspondiente a la constante β , disminuye a medida que aumenta la densidad de dislocaciones del sistema, lo que indica que sistemas con menor cantidad de energía almacenada por deformación necesitan una mayor energía de activación de recristalización.

El grano recristalizado, presenta una velocidad máxima de crecimiento (figura 6). Antes de ese máximo, el grano crece en forma lineal, y posteriormente, el tamaño de grano se puede ajustar con el modelo propuesto por Cattaneo et al. en 2011 (ecuación 3). Este ajuste reproduce las curvas de crecimiento de grano recristalizado (figura 7), y también reproduce las curvas de velocidad de crecimiento de grano recristalizado (figura 8)

REFERENCIAS

- Burke J.E. and Turnbull D. *Recrystallization and grain growth, Progress in Metal Physics*, London: Pergamon Press, 220-292, 1952.
- Cattaneo, C.A. y Silvetti, S.P. Modelo de recristalización considerando densidad de dislocaciones – Simulación para aluminio. *Mecánica Computacional Vol XXIX*: 2125-2139. 2010

- Cattaneo, C.A. y Silvetti, S.P. Influencia de la densidad de dislocaciones en la recristalización de materiales. *Mecánica Computacional Vol XXX: 2819-2830*. 2011
- Cattaneo, C.A. y Silvetti, S.P. Cinética de recristalización en aleaciones bifásicas. *Mecánica Computacional Vol XXXI: 3309-3317*. 2012
- Cattaneo, C.A., Manuel A. Ledesma. y Silvetti, S.P. Modelo de ajuste curvas de crecimiento de grano en sistemas monofásicos y bifásicos. *Mecánica Computacional Vol XXX: 2807-2818*. 2011
- Humphreys F.J. y Hatherly M. *Recrystallization and related Annealing Phenomena*. Elsevier, Second Edition. 285-320, 2004.
- Humphreys F.J. y Hatherly M. *Recrystallization and related Annealing Phenomena*. Elsevier, Second Edition. 232, 2004.
- Totten and D. Scott Mackenzie. *Handbook of Aluminum 2, Alloy Production and Materials manufacturing*. Marcel Dekker, Inc. 201, 2003.