

Análise numérica bidimensional da morfologia dendrítica do níquel e do ferro utilizando o método de campo de fase

(Two dimensional numerical analysis of nickel and iron dendritic morphologies using phase-field method)

Henrique Silva Furtado

*Engenheiro Metalurgista, MSc, Especialista de desenvolvimento de processos de aciaria e lingotamento contínuo, Arcelor Mittal Tubarão e Aluno de Doutorado do programa REDEMAT/UFOP
E-mail: henrique.furtado@arcelormittal.com.br*

Américo Tristão Bernardes

*Professor Associado, MSc, Dr, ICEB, Departamento de Física, UFOP e REDEMAT/UFOP
E-mail: atb@iceb.ufop.br*

Romuel Figueiredo Machado

Professor Adjunto, MSc, Dr, ICEB, Departamento de Física, UFOP. E-mail: romuelm@yahoo.com

Carlos Antônio da Silva

Professor Associado, MSc, PhD, Departamento de Engenharia Metalúrgica e de Materiais Escola de Minas/UFOP e REDEMAT/UFOP. E-mail: casilva@demet.em.ufop.br

Resumo

Nesse trabalho, são apresentados os resultados de simulações bidimensionais da formação de dendritas durante a solidificação do níquel e do ferro puros, utilizando um modelo de campo de fase. A morfologia obtida mostrou-se qualitativamente semelhante à forma dendrítica, com braços primários e secundários bem desenvolvidos. Além disso, as velocidades de crescimento em regime permanente, calculadas no presente trabalho, apresentaram boa conformidade com os dados experimentais em uma grande faixa de super-resfriamentos.

Foi observado que a espessura da interface apresenta um forte efeito sobre a morfologia e a velocidade de solidificação. Interfaces espessas reduzem o tempo computacional; entretanto podem gerar resultados inconsistentes. A espessura que apresentou os melhores resultados sem aumento acentuado do tempo de processamento foi $4 \times 10^{-8} \text{m}$.

Palavras-chave: Modelagem numérica, solidificação, campo de fase; dendrita.

Abstract

Numerical results for the solidification morphologies of pure Nickel and Iron, obtained by a two dimensional Phase Field model, conformed qualitatively well with the dendritic form, clearly depicting developed primary and secondary branches. Additionally, the steady state solidification velocity obtained in the present simulations fitted the experimental data over a wide range of undercoolings.

It has been observed that the solid-liquid interface thickness has a strong effect on both the morphology and steady state solidification velocity. A thicker interface which might reduce computation time may produce inconsistent results. The best results were obtained using an interface $4 \times 10^{-8} \text{m}$ thick.

Keywords: Numerical modeling, solidification, phase-field, dendrite.

1. Introdução

A compreensão de como as formas são geradas espontaneamente na natureza ainda é uma das questões fundamentais da física. Existe uma infinidade de padrões em sistemas inanimados (solidificação, hidrodinâmica, reações químicas, etc.), assim como em sistemas vivos, cujos mecanismos de formação têm impulsionado pesquisas experimentais e numéricas.

O fenômeno de seleção da forma durante a solidificação, que afeta, significativamente, as propriedades dos materiais, tem sido atribuído a uma complexa interação entre processos de difusão, curvatura da interface, anisotropia e amplificação de ruídos, ocorrendo em diferentes escalas dimensionais, o que torna a sua previsão um problema de difícil solução [Stefanescu, 2002].

O propósito do presente trabalho é o de apresentar uma análise crítica dos resultados da modelagem das dendritas de níquel e de ferro, utilizando o modelo de campo de fase.

2. Materiais e métodos

A modelagem da solidificação pelo método de campo de fase se baseia no conceito de que a ordenação atômica ocorre de maneira progressiva ao longo de uma interface de espessura finita [Boettinger, 2002], conforme ilustrado na Figura 1. Nesse caso, utiliza-se uma variável escalar que é constante nas fases líquida ($\varphi=0$) e sólida ($\varphi=1$) e cuja variação temporal define a localização ($\varphi=0,5$) e a velocidade da frente de solidificação.

A evolução temporal da variável de campo de fase (φ) é determinada a partir do postulado de que ela é proporcional à variação da energia livre (G) do sistema (sólido, líquido e interface) em relação a essa variável [Emmerich, 2003], ou seja:

$$\frac{\partial \varphi}{\partial t} = -M \frac{\partial G}{\partial \varphi} \quad (1)$$

onde M é um termo de mobilidade.

Esse modelo requer que a energia livre do sistema seja definida em função de φ e T e que considere o efeito da presença da interface sólido-líquido.

A partir de abordagens diferentes, Cahn e Hilliard [1958] e Landau-Ginzburg [Emmerich, 2003] propuseram modelos semelhantes para a energia livre de um sistema puro contendo uma interface, ou seja:

$$G\{\varphi, T\} = \int_V \left\{ \frac{\xi^2}{2} \cdot (\nabla \varphi)^2 + g(\varphi, T) \right\} dV \quad (2)$$

onde ξ é um termo de energia proporcional à espessura da interface e g é a energia livre por unidade de volume (V).

A incorporação do efeito da anisotropia na taxa com a qual a frente de solidificação evolui pode ser realizada através do parâmetro ξ , considerando que o mesmo varia com a direção do vetor normal externo à interface sólido-líquido [Kobayashi, 1993] (ex: $\xi(-\nabla\varphi)$). Nesse caso, aplicando-se a derivada funcional à equação 2 e adicionando-se um termo de ruído, obtém-se, para o caso bidimensional, a seguinte expressão final da equação dinâmica do campo de fase [Boettinger, 2002]:

$$\frac{\partial \varphi}{\partial t} = -M(\theta) \left(g'(\varphi, T) - \xi \nabla^2 \varphi + \frac{\partial}{\partial x} \left(\xi \xi' \frac{\partial \varphi}{\partial y} \right) - \frac{\partial}{\partial y} \left(\xi \xi' \frac{\partial \varphi}{\partial x} \right) + \text{ruído} \right) \quad (3)$$

sendo: $\xi(\theta) = \xi_0 \cdot \tau_\xi(\theta)$ e $M(\theta) = M_0 \cdot \tau_M(\theta)$. O termo $g'(\varphi, T)$ representa a derivada de $g(\varphi, T)$ em relação a φ ; ξ' é a derivada de ξ em relação a θ ; e “ruído” é uma variável estocástica dada pela seguinte formulação:

$$\text{ruído} = 16 \cdot a \cdot r \cdot \varphi^2 (1-\varphi)^2 \quad (4)$$

onde “a” é um fator de amplificação de ruído e “r” é uma variável estocástica com distribuição uniforme no intervalo entre -1 e +1. Nesse caso, ξ_0 e M_0 representam valores médios; $\tau_\xi(\theta)$ e $\tau_M(\theta)$ representam a anisotropia sobre ξ e M , e θ é o ângulo do vetor normal à interface em relação ao eixo x [Kim, 1999].

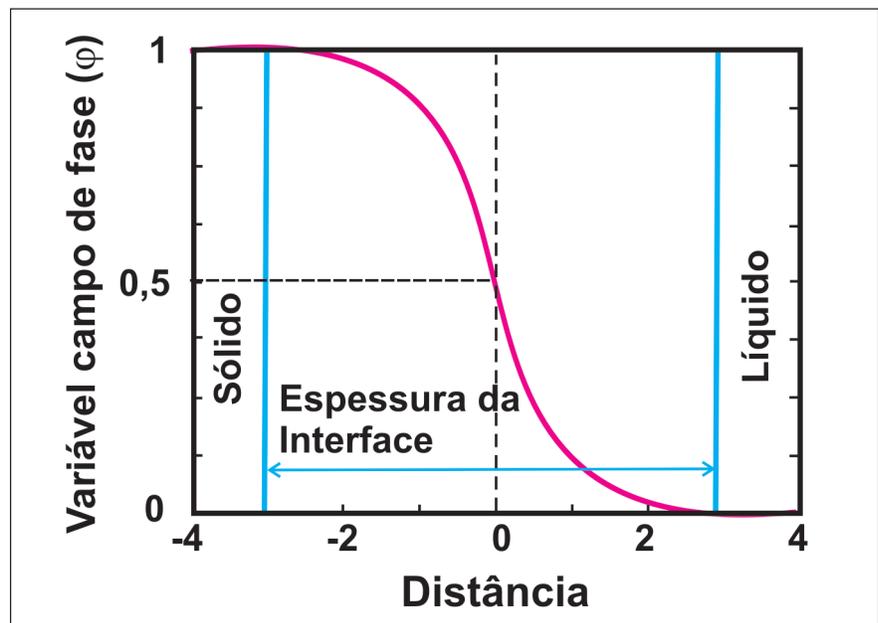


Figura 1 - Representação esquemática do modelo de campo de fase.

A energia livre por unidade de volume (g) função de φ e de T foi obtida a partir da teoria de Landau para a transição ordem desordem [Oliveira, 2005]. A equação resultante é como se segue [Boettinger, 2002]:

$$g(\varphi, T) = W(T_e)\varphi^2(1-\varphi)^2 + g_L(T) + \frac{(T-T_e)}{T_e}\Delta H_f P(\varphi) \quad (5)$$

onde W é uma barreira de energia, que tem a função de incorporar a energia livre da interface no funcional da energia livre (equação 2), T_e é a temperatura de equilíbrio sólido-líquido, g_L é a energia livre da fase líquida em função da temperatura e $P(\varphi)$ é uma função com as seguintes propriedades:

$$dP(\varphi)/d\varphi|_{\varphi=0,1} = 0; \quad P(\varphi=0) = 0; \quad P(\varphi=1) = 1$$

No caso de substâncias puras, onde a solidificação é impulsionada pelo gradiente térmico, o modelo de campo de fase incorpora a equação de difusão da temperatura, ou seja [Kobayashi, 1993]:

$$\rho c \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla(K\nabla T) + \rho\Delta H_f P' \frac{\partial \varphi}{\partial t} \quad (6)$$

onde ρ é a densidade, c é a capacidade calorífica, K é a condutividade térmica e ΔH_f é a variação da entalpia de fusão.

Os parâmetros do modelo (W , M_0 e ξ_0) podem ser obtidos a partir de propriedades físicas dos materiais e da espessura adotada para a interface sólido líquido (λ) através das seguintes equações [Boettinger, 2002]:

$$W = 3 \frac{\sigma}{\lambda} \quad (7)$$

$$\xi = \sqrt{\frac{6\lambda\sigma}{\omega}} \quad (8)$$

onde σ é a tensão interfacial e ω é uma constante, que pode assumir o valor 2,2, no caso dos limites de φ variarem de 0,1 a 0,90, ou 2,94, no caso dessa variação estar entre 0,05 e 0,095.

Para a determinação da mobilidade M , existem duas abordagens [Boettinger, 2002]: aproximação à interface abrupta e a aproximação à interface fina. Ambos os casos são equivalentes, quando a espessura da interface tende a zero [Boettinger, 2002]. Assim tem-se para o primeiro caso:

$$M_0 = \frac{\omega \cdot \mu_0^k \cdot T_e}{6 \cdot \lambda \cdot \Delta H_f} \quad (9)$$

onde μ_0^k é o coeficiente cinético interfacial.

O sistema de equações diferenciais parciais composto pelas expressões 3 e 6 foi discretizado, utilizando-se o método de volumes finitos [Fortuna, 2000]. Para a equação do campo de fase, por apresentar variação de φ somente na interface, ou seja, por não haver necessidade de solucionar o domínio completo, foi utilizado o método explícito para determinar a sua evolução temporal. Por outro lado, para o campo de temperatura, optou-se por um método semi-implícito (“Alternating-Direction Implicit-ADI”) [Fortuna, 2000].

3. Resultados

Na Figura 2, pode-se observar uma comparação da dendrita de níquel calculada pelo presente trabalho com outra disponível na literatura [Kim, 1999]. As propriedades utilizadas, em ambos os casos, foram iguais. Verifica-se uma forte semelhança entre elas, com braços primários e secundários bem desenvolvidos.

O comportamento da velocidade de solidificação da dendrita de níquel medido experimentalmente [Galenko, 2004; Bassler, 2003; Lum, 1996; Bragard, 2002; Nestler, 2005] e calculado com modelos bi (2D) e tridimensionais (3D) [Galenko, 2004; Bragard, 2002; Nestler, 2005; Ferreira, 2005; Kim, 1999] é apresentado na Figura 3. Pode-se observar que, apesar da grande dispersão de resultados, o presente trabalho apresenta uma boa conformidade com os dados experimentais, diferentemente de alguns modelos 2D, que ora subestimam [Nestler, 2005] ou superestimam a velocidade de solidificação [Ferreira, 2005].

O desvio observado no resultado 2D de Nestler et al. [2005] pode ser devido ao valor mais elevado do calor latente de solidificação utilizado (em torno de 3,5 vezes superior ao do presente trabalho), associado a um menor coeficiente cinético interfacial (em torno de 4 vezes inferior ao do presente trabalho). Um calor latente de fusão mais elevado provoca um aumento na temperatura da interface, com conseqüente redução do super-resfriamento, que é a força motriz do avanço da frente de solidificação. Da mesma forma, uma redução do coeficiente cinético interfacial provoca uma diminuição no valor do parâmetro de mobilidade (M), o que resulta, também, na redução da velocidade de solidificação.

No caso dos resultados de Ferreira [2005], sistematicamente superiores aos dados experimentais, as propriedades utilizadas foram semelhantes à do presente trabalho; entretanto a espessura da interface utilizada pelo referido autor foi o dobro ($2\lambda=8 \times 10^{-8}$ m). Essa diferença é significativa e pode resultar em velocidades de solidificação mais elevada.

A velocidade da solidificação, em regime permanente da dendrita de ferro, comparada ao resultado do presente trabalho pode ser observada na Figura 4. Novamente, apesar da grande dispersão dos resultados, o presente modelo parece estimar, adequadamente, o comportamento dos dados experimentais. Observa-se, também, que, em elevados super-resfriamentos, esse modelo aproxima-se melhor do resultado tridimensional apresentado na literatura [Oguschi, 2007].

4. Discussão

Pequenas diferenças podem ser observadas nos braços secundários das dendritas apresentadas na Figura 2. Isto pode ser devido à influência da forma adotada para o termo ruído da equação 3. De fato, como pode ser observada na Figura 5, a utilização de sementes diferentes, no gerador de números aleatórios desse termo, resultou em diferenças significativas na formação dos braços secundários.

A espessura da interface é um parâmetro de modelo de livre escolha e afeta os valores de ξ , W e M (equações 7 a 9). A sua influência na convergência dos cálculos a valores consistentes pode ser observada nas Figuras 6 e 7. De fato, valores elevados desse parâmetro podem induzir a erros acentuados, tanto na velocidade de solidificação, quanto na forma do sólido formado. Um valor de $4 \times 10^{-8} \text{m}$ (2λ) parece bem adequado, portanto foi utilizado para os cálculos apresentados anteriormente.

A vantagem da utilização do modelo de interface fina para cálculo do parâmetro M , em relação ao de interface aguda, está na possibilidade do uso de interfaces mais espessas [Karma, 1996], o que viabiliza o uso de malhas mais grossas, reduzindo tempo de processamento. De fato, como observado na Figura 8, essa tendência também foi observada no presente trabalho, evidenciada pela convergência da velocidade de solidificação do níquel em regime permanente a um

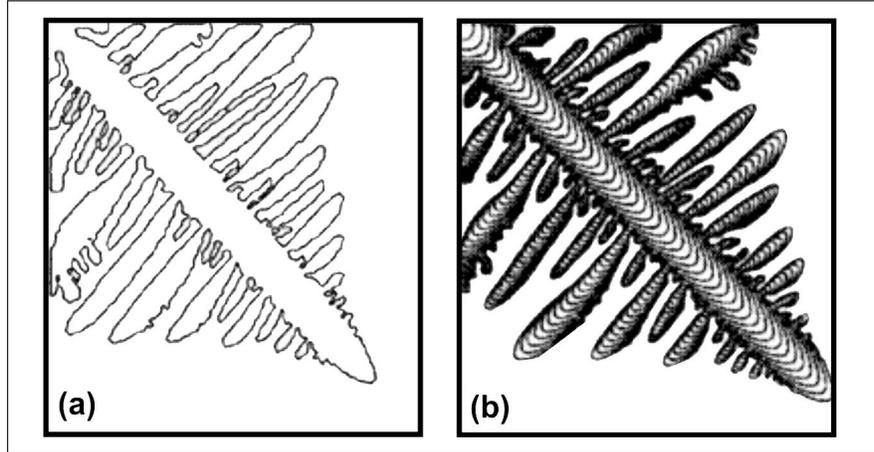


Figura 2 - Resultados comparativos da dendrita de níquel, nucleada em líquido super-resfriado em 260K, após transcorridos $6,3 \times 10^{-7} \text{s}$ (domínio de 20 micra): (a) presente trabalho; (b) literatura [Kim, 1999].

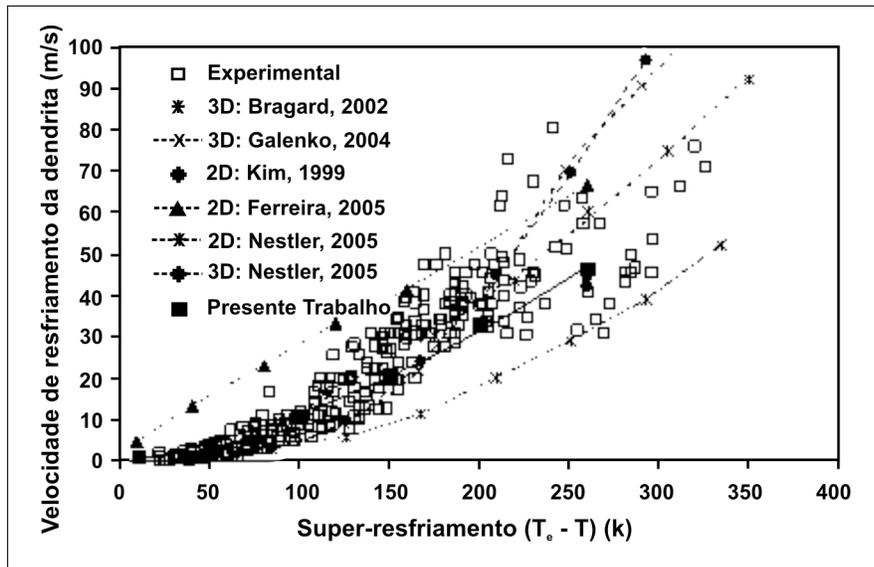


Figura 3 - Resultado da velocidade de solidificação em regime permanente da dendrita de níquel.

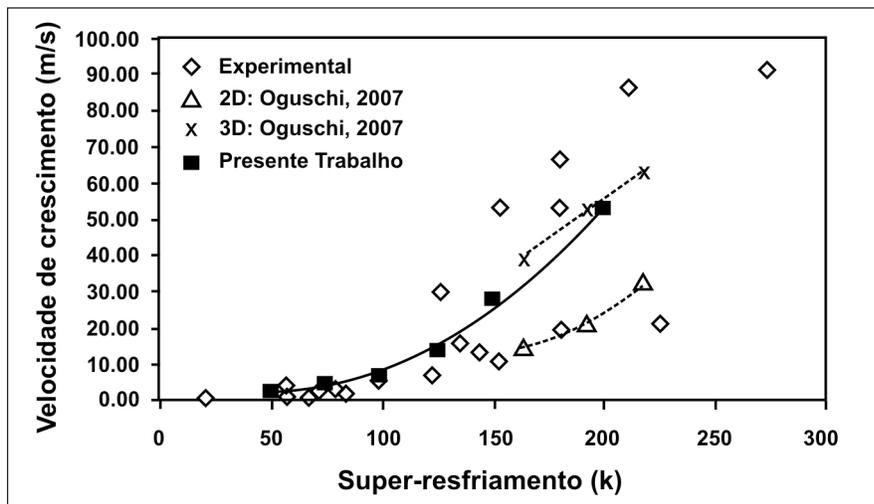


Figura 4 - Resultado da velocidade de solidificação em regime permanente da dendrita de ferro.

valor constante. Esse resultado sugere que é possível a utilização de interfaces com espessuras significativamente superiores as previstas por Karma e Rappel [1996] (em torno de uma ordem de grandeza maior).

Apesar do benefício do uso do modelo de interface fina no cálculo do parâmetro de mobilidade (M), um aumento excessivo da espessura da interface pode resultar em desvios acentuados nos resultados da simulação morfológica microestrutural. Isto é decorrente da perda de resolução das escalas dimensionais inerentes da dendrita (braços e raios). Além do exposto, interfaces muito espessas motivam o uso de malhas grossas, como forma de reduzir o tempo de processamento; entretanto tal procedimento induz, na frente de solidificação, ruídos, decorrentes de erros de aproximação das derivadas parciais, os quais também afetam a morfologia prevista pelo modelo.

Apesar da limitação de simular somente estruturas microscópicas nos instantes iniciais de solidificação, esse modelo constitui em uma plataforma para análise dos fatores que afetam a seleção da forma da fase sólida de substâncias puras. A partir dele, pode-se expandir para modelagens tridimensionais, incluir efeitos da adição de soluto e, também, a presença de efeitos convectivos.

5. Conclusões

Os resultados do presente modelo parecem se ajustarem melhor aos dados experimentais de velocidade de solidificação em regime permanente do que outros bi-dimensionais, que subestimam ou superestimam esses valores. Esse resultado pode ser devido a diferenças nas propriedades dos materiais ou à definição da espessura da interface.

As formas geradas, no presente trabalho, assemelham-se a estrutura dendrítica com braços primários e secundários bem desenvolvidos.

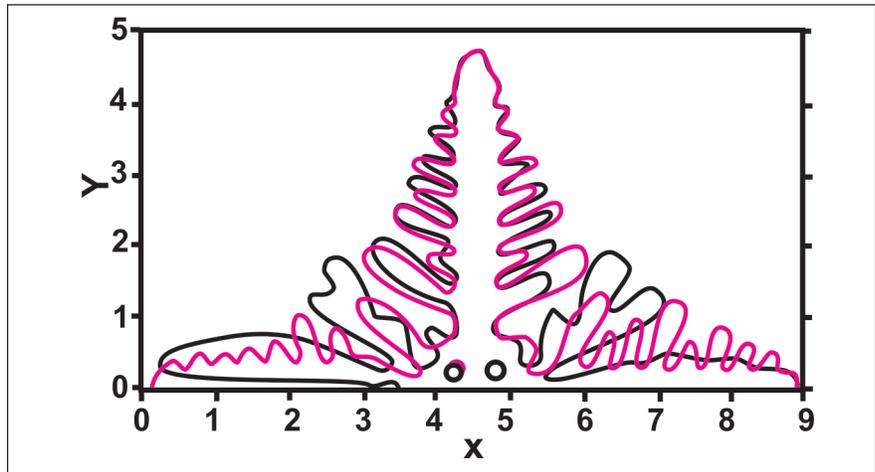


Figura 5 - Resultado da simulação anisotrópica, com ruído a partir de duas sementes diferentes utilizadas no gerador de números aleatórios do termo ruído da equação 3.

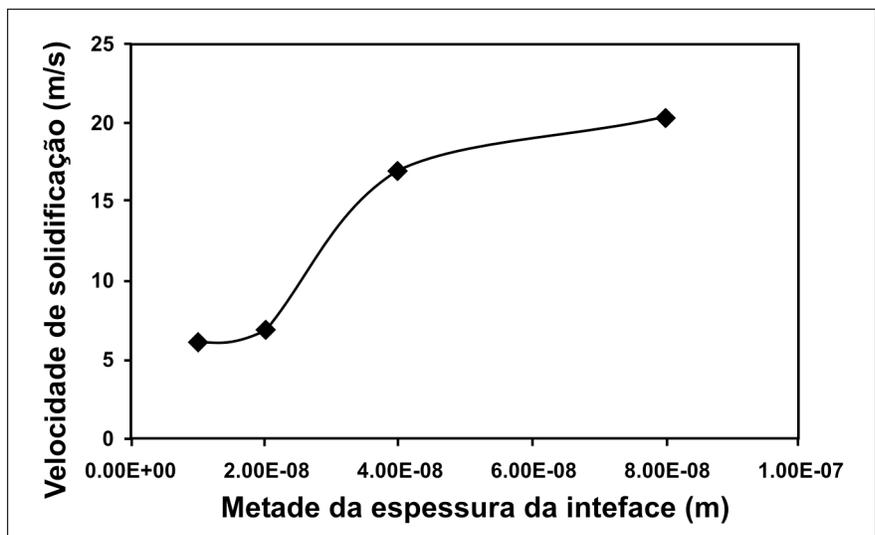


Figura 6 - Efeito da espessura da interface na convergência da velocidade de solidificação em regime permanente em um super-resfriamento de 100K.

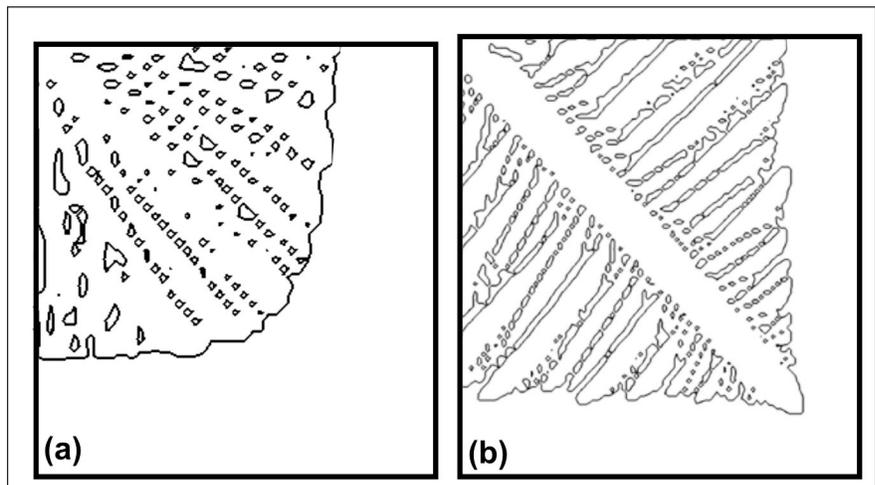


Figura 7 - Efeito da espessura da interface na morfologia do ferro calculada no presente trabalho para um super-resfriamento de 260K e um tempo de $2,08 \times 10^{-7}$ s: (a) $2\lambda=8 \times 10^{-6}$ m; (b) $2\lambda=4 \times 10^{-6}$ m (domínio de 12 micra).

A espessura da interface afeta, significativamente, a forma da microestrutura e a velocidade de solidificação em regime permanente. No presente trabalho, um valor de $4 \times 10^{-8} \text{m}$, para o níquel e para o ferro, forneceu resultados consistentes.

A utilização do parâmetro M determinado pela abordagem de interface fina apresentou convergência da velocidade de solidificação em regime permanente a um valor constante, para um dado super-resfriamento, em uma espessura da interface maior do que o modelo de interface abrupta. Esta espessura foi uma ordem de grandeza maior do que as previsões de Karma e Rappel [1996].

Utilizando-se malha uniforme e recursos computacionais correntes, o modelo de campo de fase é limitado a simular formas microscópicas nos seus instantes iniciais da solidificação. Para análises em domínio e tempos maiores, são necessários a utilização de métodos mais sofisticados (ex.: malha adaptativa; processamento paralelo) e máquinas especiais (supercomputadores).

6. Agradecimento

Os autores agradecem a Arcelor-Mittal Tubarão pelo seu incentivo ao programa de pós graduação dos seus especialistas. Esse trabalho foi, parcialmente, financiado com o apoio das agências Fapemig, CNPq e CAPES.

7. Referências bibliográficas

BASSLER, B. T. et alii. The solidification velocity of pure nickel. *Materials Science and Engineering*, v. A342, p.80-92, 2003.

BOETTINGER, W. J. et alii. Phase-field simulation of solidification. *Annu. Rev. Mater. Res.*, v.32, p.163-194, 2002.

BRAGARD, J. et alii. Linking phase-field and atomistic simulations to model dendritic solidification in highly undercooled melts. *Interface Science*, v.10, p. 121-136, 2002.

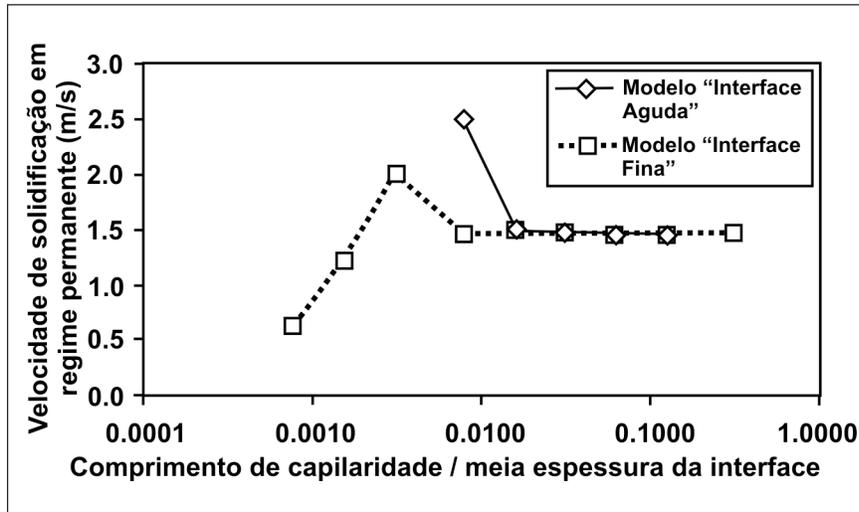


Figura 8 - Efeito da espessura da interface na convergência da velocidade de solidificação em regime permanente do níquel puro super-resfriado a 100K (comprimento de capilaridade do níquel puro = $6,27 \times 10^{-10} \text{m}$.)

CAHN, J. W., HILLIARD, J. E. Free energy of a nonuniform system: I- interfacial free energy. *The Journal of Chemical Physics*, v. 28; n. 2; p. 258-267, 1958.

EMMERICH, H. *The diffusive interface approach in materials science: thermodynamic concepts and applications of phase-field models*. Berlin Heidelberg, New York: Springer-Verlag, 2003, 178p.

FERREIRA, A. F. *Modelamento do processo de solidificação de microestruturas pelo método do campo de fase*. Niterói: EEIMVR, Universidade Federal Fluminense, 2005, 128p. (Tese de Doutorado).

FORTUNA, A. O. *Técnicas computacionais para dinâmica dos fluidos, conceitos básicos e aplicações*. Edusp - Editora da Universidade de São Paulo, 2000. 412p.

GALENKO, P. K. et alii. Kinetics of dendritic growth under the influence of convective flow in solidification of undercooled droplets. *Materials Science and Engineering*, v. A375-377, p.488-492, 2004.

KARMA, A., RAPPEL, W.J. Phase-Field method for computationally efficient modeling of solidification with arbitrary interface kinetics. *Physical Review E*, v.53, n.4, p.3017-3020, 1996.

KIM, S. G. et alii. Large Scale Simulation of Dendrite Growth in pure Undercooled Melt by Phase-Field Model. *ISIJ International*, v. 39, n. 4, p. 335-340, 1999.

KOBAYASHI, R. Modeling and numerical simulations of dendritic crystal growth. *Physica D*, v.63, p.410-423, 1993.

LUM, J. W. *High speed imaging and analysis of the solidification of undercooled alloy melts*. Massachusetts: Dept. of Materials Science and Engineering, Massachusetts Institute of Technology, June, 1996, 100p. (Master of Science thesis).

NESTLER, B. et alii. Crystal growth of pure substances: phase-field simulations in comparison with analytical and experimental results. *Journal of Computational Physics*, v. 207, p.221-239, 2005.

OGUSCHI, K., SUZUKI, T. Three-dimensional phase-field simulation of free dendrite growth of iron. *ISIJ International*, v. 47, n. 2, p. 277-281, 2007.

OLIVEIRA, M. J. *Termodinâmica*. São Paulo: Editora Livraria da Física, 2005. 365p.

STEFANESCU, D. M. *Science and engineering of casting solidification*. Kluwer, New York: Academic/Plenum Publisher, 2002. 342p.

Artigo recebido em 12/12/2008 e aprovado em 24/03/2009.