

- Techn., 18 [2] 284–291 (2009)
- [9] *Devi, M. U.*: On the nature of phases in Al_2O_3 and $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiC}$ thermal spray coatings. *Ceram. Int.* 30 [4] 545–553 (2004)
- [10] *Thiele, S. – Heimann, R. B. – Herrmann, M. – Nebelung, M. – Schnick, T. – Wielage, B. – Vuoristo, P.*: Microstructure and Properties of Thermally Sprayed Silicon Nitride-Based Coatings. *J. Thermal Spray Tech.*, 11 [2] 218–225 (2002)
- [11] *Ghafari-Azar, R. – Mostaghimi, J. – Chandra, S.*: A stochastic model of plasma sprayed coating formation. Proceedings of the 15th International Symposium on Plasma Chemistry, Orleans, France, July 9–13, 2001
- [12] *Wesch, W.*: Silicon carbide: Synthesis and Processing. *Nucl. Instrum. Meth. B* 116 305–321 (1996)
- [13] *Li, L. – Tang, Z. J. – Sun, W. Y. – Wang, P. L.*: *J. Mater. Sci. Technol.* (Shenyang, People's Repub. China), 15 439–443 (1999)
- [14] *Ihle, J. – Herrmann, M. – Adler, J.*: Phase formation in porous liquid phase sintered silicon carbide: Part I: Interaction between Al_2O_3 and SiC ., *J. Eur. Ceram. Soc.* 25 987–995 (2005)
- [15] *Károly, Z. – Szépvölgyi, J.*: Plasma Spheroidization of Ceramic Particles. *Chem. Eng. Proc.*, 44 221–224 (2005)
- [16] *Yin, Z. – Tao, S. – Zhou, X. – Ding, C.*: Microstructure and mechanical properties of $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Al}$ composite coatings deposited by plasma spraying. *Appl. Surf. Sci.*, 254 1636–1643 (2008)
- [17] *Lin, I. – Navrotsky, A. – Richard Weber, J. K. – Nordine, P. C.*: Thermodynamics of glass formation and metastable solidification of molten $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$. *J. Non-Cryst. Solids* 243 273–276 (1999).
- [18] *Ravi B. G. – Gandhi, A. S. – Guo, X. Z. – Margolies, J. – Sampath, S.*: Liquid precursor plasma spraying of functional materials: A case study for yttrium aluminum garnet (YAG)., *J. Thermal Spray Tech.*, 17 [1] 82–90 (2008)
- [19] *Suzuki, M. – Sodeoka, S. – Inoue, T.*: Control of structure and properties on $\text{Al}_2\text{O}_3\text{/YAG}$ composite coating prepared by plasma spray process. *J. Jpn Inst. Met.*, 69 1 23–30 (2005)
- [20] *Lavrenko, V. A. – Pikuza, P. P. – Lugovskaya, E. S. – Shvaiko, V. V.*: High-temperature oxidation of silicon nitride powders. *Powder Met. Metal Ceram.* 24, 5390–5393 (1985)

BARKÓCZY PÉTER – GYÖNGYÖSI SZILVIA

Rövidtávú diffúziós folyamatok szimulációja sejtautomata módszerrel

A rövidtávú diffúziós folyamatok (újrakristályosodás, allotrop átalakulás, szemcsedurulás) közös jellemzője, hogy a határ mozgása, legyen szó akár szemcse-, akár fázishatárról, az atomok határon történő átugrásával valósul meg. Ezen átugrás valószínűsége csak az atomok közvetlen környezetének, az energiaállapotának a függvénye. A sejtautomata működése során a vizsgált rendszert minden szempontból azonos elemekre, sejtekre osztjuk. Az automata működése során a sejtek új állapotának meghatározásához szintén csak a közvetlen szomszédjait vesszük figyelembe a számítások elvégzésénél. Ez a hasonlóság teszi lehetővé, hogy az említett fázisátalakulási folyamatok hatékonyan szimulálhatók sejtautomata módszerrel. Bemutatunk egy olyan határmozgási feltételrendszert, amely lehetővé teszi számunkra, hogy a különböző folyamatok ugyanazzal az automatával szimulálhatók legyenek.

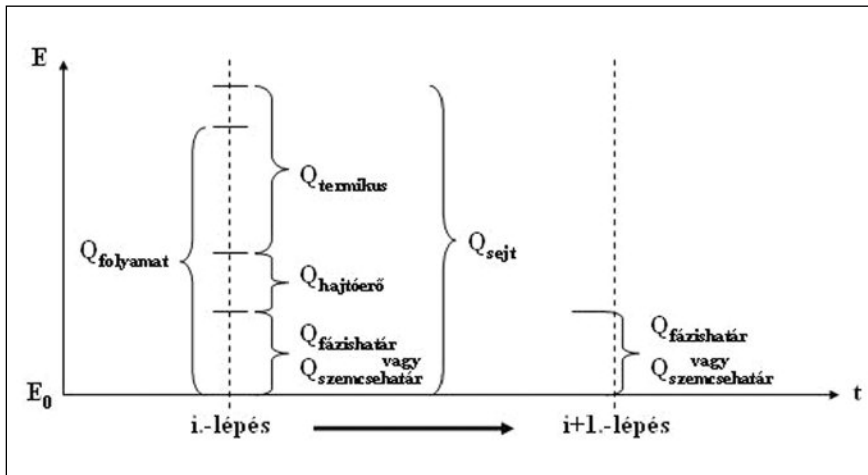
Bevezetés

A rövidtávú diffúziós folyamatok közös jellemzője, hogy a szemcse- vagy fázishatár mozgása az atomok határon történő átlépésével megy végbe. Ezen atomok a mozgásuk során maximum néhány rácsparaméternek megfelelő távolságot tesznek meg. Ilyen rövidtávú diffúziós folyamat például az újrakristályosodás, az allotrop átalakulás, a szemcsedurulás. A határon történő átugrás valószínűsége csak az atomok közvetlen szomszédjainak, az energiaállapotának a függvénye.

A sejtautomata egy diszkrét modell, amelyet gyakran alkalmaznak többek között a matematikában, a fizikában, a számításméletben, az elméleti biológiában, továbbá igen jól alkalmazható az anyagtudományban átalakulási folyamatok mikroszerkezeti modellezésére. A sejtautomata egy térben és időben dinamikus rendszer. A működéséhez létre kell hoznunk

Barkóczy Péter a Miskolci Egyetem Műszaki Anyagtudományi Kar, Anyagtudományi Intézet docense. 2000-ben szerzett diplomát az Anyag- és Kohómérnöki Kar Anyagmérnök szakán, majd 2004-ben PhD-fokozatot az egyfázisú anyagok újrakristályosodás szimulációja sejtautomata módszerrel témában. Oktatott tárgyak: fémötvözetek hőkezelése, számítógépi képelemzés, hőkezelési folyamatok szimulációja, optikai mikroszkópia. Kutatási területe az újrakristályosodás vizsgálata, szimulációja.

Gyöngyösi Szilvia a Miskolci Egyetem Műszaki Anyagmérnöki Karán, a Kerpely Antal Anyagtudományok és Technológiák Doktori Iskolájának 3. évfolyamos PhD-hallgatója. Doktoranduszi témája: anyagtudományi sejtautomaták skálázási stratégiáinak kidolgozása. 2008-ban és 2009-ben az ME Tanulmányi Emlékérem arany fokozatát nyerte el. 2009-ben az Országos Tudományos Diákköri Konferencia műszaki tudományi szekciójában pályamunkája 2. helyezést ért el.



■ 1. ábra. Az energiatétel működésének vázlata

egy szabályos rácsszerkezetet, amelyben minden rácselem teljesen azonos. A felosztott rendszert univerzumnak, a rácselemeket sejteknek nevezzük. Elméletben beszélhetünk egy-, két-, illetve háromdimenziós rácsszerkezetekről, habár a gyakorlatban a kétdimenziós rácsszerkezetek használata terjedt el leginkább. Két dimenzióban különböző sejtgeometriák alkalmazására van lehetőség (háromszög, négyszög, hatszög), de az egyszerűbb kezelhetőség miatt a négyzet alakú sejt használata a leggyakoribb [2]. Az előre definiált véges számú állapotok közül a sejteknek minden egyes lépésben rendelkezniük kell az előre meghatározott állapotok valamelyikével.

A sejtautomata egymást követő lépések folyamata. Működése során minden egyes lépésben megvizsgálja minden sejt állapotát. A sejt új lépésbeli állapota a sejt előző lépésben lévő állapotának és a sejt szomszédjai állapotának a függvénye. Mivel a sejtek kölcsönhatásban vannak egymással, ezért az új állapot meghatározásához szükséges definiálni az úgynevezett szomszédságokat. Kétdimenziós négyzet alakú sejtekkel működő automatáknál a leggyakrabban elterjedt szomszédságok: a Neumann-féle (négy szomszédság: az adott sejtnél négy szomszédja van az oldalélei mentén), a Moore-féle (nyolc szomszédság: a sejt nyolc szomszédja annak oldalélei mentén, illetve sarokpontjaiban helyezkedik el) és az alternáló szomszédság (lépésenként változtatjuk a Neumann és a Moore szomszédságot) [3].

Ezek a szomszédságok az úgynevezett közvetlen szomszédságok.

A fent vázolt hasonlóság teszi lehetővé számunkra az említett fázisátalakulási folyamatok sejtautomata elven megvalósított szimulációját. Az irodalomban számos példát találhatunk az említett folyamatok sejtautomata szimulációjára [7, 8, 9, 10]. A szemcsehatár-, illetve fázisátalakulás különböző feltétele megnehezíti a folyamatok összekapcsolását [4]. Bemutatunk egy olyan határmozgási feltételt, amely lehetővé teszi, hogy mindhárom folyamat ugyanazzal az automatával szimulálható legyen.

A rácsszerkezet szélein elhelyezkedő sejtek kezelésénél a fenti leírás szerint problémába ütközünk. Ennek a problémának a kiküszöbölésére alkalmazzuk az úgynevezett periodikus határfeltételeket. Ezt vizuálisan úgy lehet elképzelni, hogy a síkban „kiterített” rácsszerkezetből először a jobb és bal oldalát összehajtva egy csövet formálunk, majd a csőből egy tóruszt képezünk. Ezzel a megoldással az említett probléma kiküszöbölhető, mert a sejtek hiányzó szomszédjainak szerepét az átellenes oldalon elhelyezkedő sejtek veszik át. A szakirodalomban az univerzum végtelenbe történő kiterjesztésének is nevezik ezt a határfeltételt.

A sejtek állapotváltozását az állapotváltozási szabályrendszer adja meg, amelynek független változója a sejt és a szomszédságában lévő sejtek állapota, függő változója a sejt következő lépésben érvényes állapota. Ha az állapotváltozási szabályrendszer által előírt állapotváltozás

mindenképpen bekövetkezik, akkor a felépített automata determinisztikus. Ha az állapotváltozás egy valószínűségi változó értéktartományához kötött, akkor sztochasztikus automatáról beszélünk.

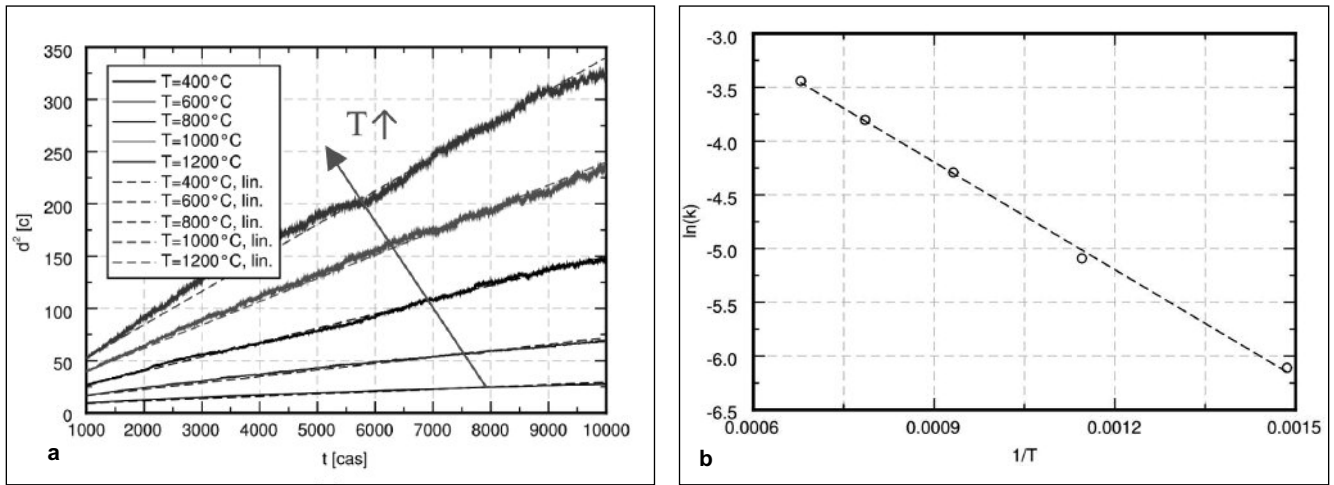
A szinkron automaták az univerzum egyik sarkából indulva szisztematikusan sorra veszik a sejteket és minden egyes sejtre alkalmazzák az állapotváltozási szabályrendszert. Egy lépés akkor ér véget, amikor az utolsó sejt vizsgálata is megtörtént. Aszinkron automaták esetén is az univerzumban lévő sejtekkel azonos számú vizsgálatot végzünk el egy lépés alatt, de véletlenszerűen választjuk ki a vizsgált sejteket.

Az automata működése

A tanulmányunkban bemutatott szinkron, sztochasztikus automata 512x512 négyzet alakú sejtet tartalmaz, amely sejtek egy négyzetes rácsszerkezetet alkotnak [2]. A sejtek szomszédjainak meghatározása a Neumann-féle szomszédság szerint történik, a rácsszerkezet szélein elhelyezkedő sejtekre a periodikus határfeltételt alkalmazzuk.

Három állapotjelölőt definiáltunk a sejtek állapotára vonatkozóan: fázisváltozó, tárolt energia és kristálytani orientáció. Az átalakulási hőmérséklet (911 °C) két fázist választ el: α és γ fázisokat (színvas allotrop átalakulása), a sejtek ezt a két állapotot vehetik fel. Amennyiben a sejt tárolt energiájának értéke meghalad egy kritikus értéket, akkor az anyag alakított térfogatrészéhez tartozik, egyébként az újrakristályosodott térrészét jelenti. Ha a kristálytani orientációban vagy fázisváltozóban eltérés van két szomszédos sejt között, akkor mindkét sejt rendelkezik többlet szemcse- vagy fázisátalakulási energiával. A szemcsehatár energiát a Read-Shockley egyenlet szerint számítjuk.

A sejt energiája a termikus energia, a tárolt energia és a határenergia összegeként adódik. A termikus energia a hőmérsékletből az (1) egyenlet szerint számítható, ahol T a hőmérséklet, p egy véletlen szám a $[0...1]$ intervallumban, R gázállandó és $Q_{thermal}$ a termikus energia. A határmozgás hajtóereje vagy a tárolt ener-



■ 2. ábra. Szemcsedurulás szimulációs eredményei. Szemcseterület változása az idő (automatalépés) függvényében (a), szemcseméret változása $1/T$ függvényében (b)

gia (Q_{stored}), vagy a sejtek Gibbs-energiájának különbsége (Q_{Gibbs}). A tárolt energia az alakítás függvényében (q) a (2) egyenlet szerint számítható, ahol E_{max} és K állandók. A Gibbs-energiakülönbség meghatározása a hőmérséklet függvényében a (3) egyenlet szerint történik. Az egyenletben G_{max} és C konstansok, ΔT a hőmérsékletkülönbség $911\text{ }^\circ\text{C}$ átalakulási hőmérséklet és az adott hőmérséklet között.

$$Q_{thermal} = -RT \ln(p) \quad (1)$$

$$Q_{stored} = E_{max}(1 - \exp(-Kq)) \quad (2)$$

$$Q_{Gibbs} = G_{max}(1 - \exp(-C|\Delta T|)) \quad (3)$$

Az automata működése során megvizsgálja az adott sejt szomszédjainak állapotát (konfigurációs feltétel) és a sejt energiáját (energiafeltétel, 1. ábra), és ez alapján határozza meg a sejt új állapotát. Állapotváltozás akkor következik be, ha a sejt, illetve annak szomszédjainak konfigurációja azt lehetővé teszi.

Példaként említhető az újrakristályosodás, amely folyamat csak teljesen alakított térfogatrészben megy végbe, azaz csírák csak alakított térfogatrészben fognak képződni. Ez azt jelenti, hogy ott indul el a csíráképződés folyamata, azaz az automatában az a sejt fog újrakristályosodni, amelyiknél teljesül az a feltétel, hogy mind az adott sejt, mind annak szomszédjainak a tárolt energiája egy kritikus értéket meghalad.

Ez azt jelenti, hogy amikor a vizsgált

sejt aktiválási energiájának értéke meghaladja a csíráképződés aktiválási energiájának értékét, akkor a sejt állapota megváltozik. A sejtől csíra lesz, elveszti tárolt energiáját, és véletlenszerű kristálytani orientációt kap.

Abban az esetben, amikor a sejt alakított – újrakristályosodott határon helyezkedik el, és a tárolt energia nagyobb, mint a csíranövekedés aktiválási energiája, akkor az újrakristályosodott csírák növekedésnek indulhatnak. Az állapotváltozás során a sejt elveszti tárolt energiáját, és az újrakristályosodott szomszédjával meg egyező kristálytani orientációt kap.

A szabály allotrop átalakulás esetén is ugyanaz, de a csíráképződés az instabil fázisban indul meg, a stabil fázis növekedése a fázishatáron történik. Az aktiválási energiák is eltérnek.

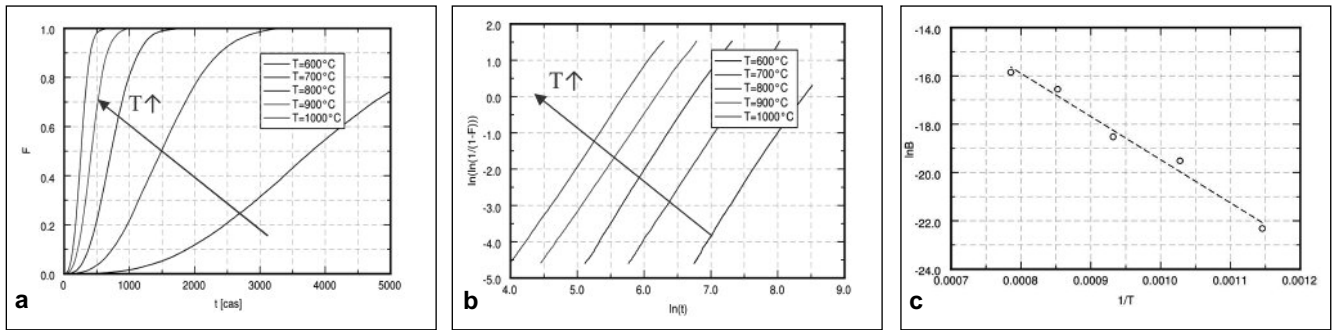
Abban az esetben, ha az újrakristályosodott sejt energiája – amelynek környezetében csak újrakristályosodott sejtek vannak – meghaladja a csíranövekedés aktiválási energiáját, akkor a legkisebb energiával rendelkező szomszédjának a kristálytani orientációját veszi fel, és megindul a határmozgás. Ez a folyamat a szemcsedurulás.

Ezek alapján belátható, hogy minden folyamat esetén az energiafeltétel megegyezik. Általánosságban elmondható, hogy állapotváltozás be következik egyrészt ha azt a sejt konfigurációja lehetővé teszi, másrészt ha a sejt állapota – amely a szemcse ($Q_{grainboundary}$) vagy fázishatár ($Q_{phaseboundary}$) energia, a tárolt ener-

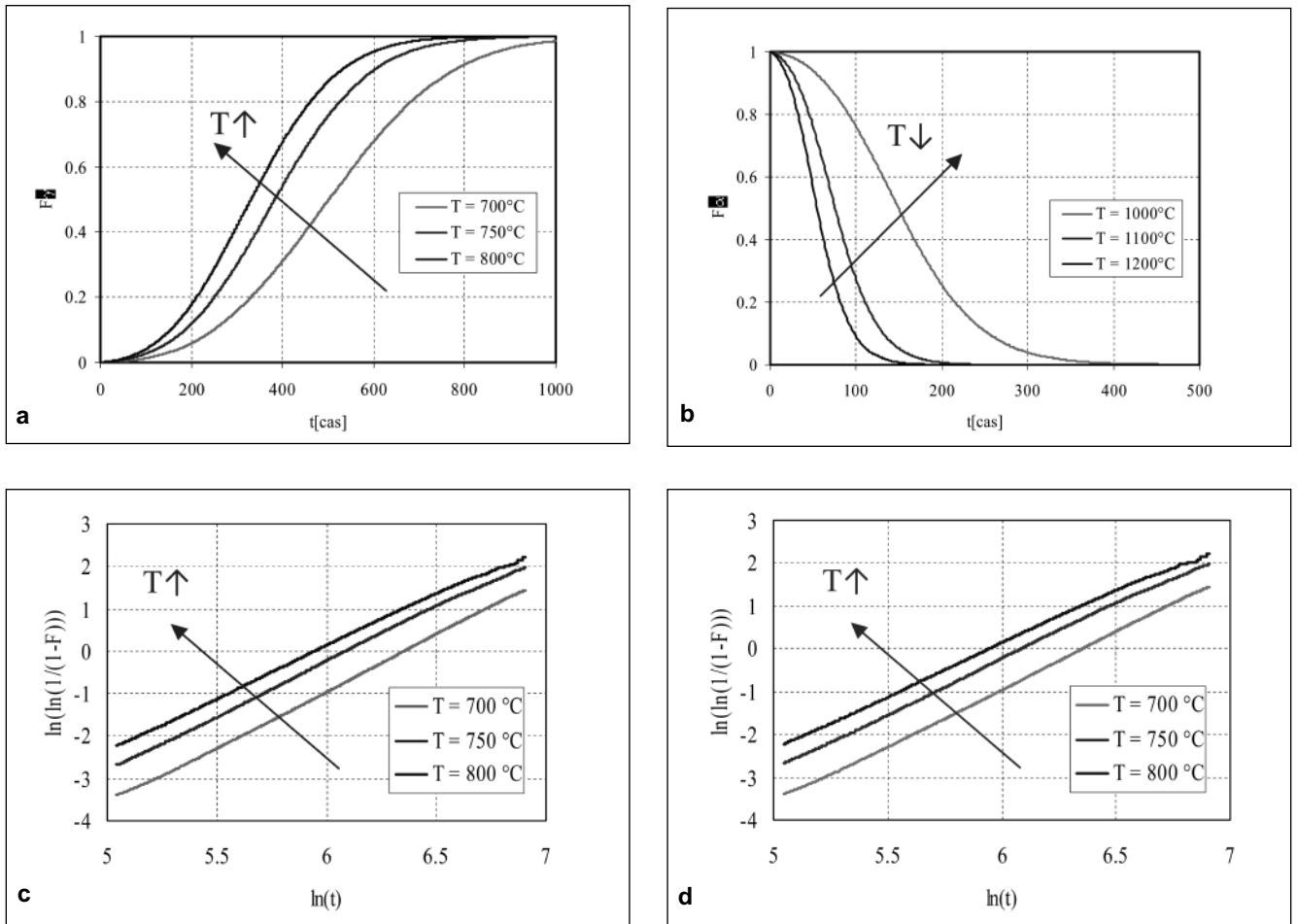
gia ($Q_{drivingforce}$) és a termikus energia ($Q_{thermal}$) összegeként adódik – nagyobb mint a szóban forgó folyamat aktiválási energiája ($Q_{process}$). Ez esetben a sejt elveszti hajtóerejét, és a kristálytani orientáció megváltozik az adott folyamatnak megfelelően. Ha a hajtóerő a tárolt energia, akkor elindul az újrakristályosodás folyamata. Ha a hajtóerő a stabil, illetve nem stabil fázis szabadentalpiájának (Gibbs-energia) különbsége, akkor az allotrop átalakulási folyamat megy végbe. Ha a hajtóerő nulla, akkor a szemcsék növekedésnek indulnak, ami a szemcsedurulási folyamathoz vezet.

Eredmények

A szemcsedurulásban azok a sejtek vesznek részt, amelyek egyrészt alakíthatatlanok és emellett szemcséhatáron helyezkednek el. Azon sejtek, amelyek energiája meghaladja a szemcsedurulás aktiválási energiáját, felveszik a szomszédos sejtek energiáját – így biztosítva számukra a kisebb határeneget –, és ezzel megkezdődik a durulás folyamata. Az átlagos szemcseméret idő (t) és hőmérséklet (T) függését írja le, ahol k_0 és Q_c állandók, d_0 a kiinduló szemcseméret és R a gázállandó. Az átlagos szemcseterületet ábrázolva az idő (automatalépés) függvényében (2a ábra) látható, hogy a kapott eredmények megfelelnek a valóságban ta-



■ 3. ábra. Statikus újrakristályosodás szimulációja. Újrakristályosodott hányad különböző hőmérsékletek függvényében (a), számított Avrami-egyenese (b) és kinetikai egyenes (c)



■ 4. ábra. Allotrop átalakulás szimulációja. Átalakult hányad változása $\gamma \rightarrow \alpha$ (a) és $\alpha \rightarrow \gamma$ (b) átalakulás során. Avrami-egyenese $\gamma \rightarrow \alpha$ (c) és $\alpha \rightarrow \gamma$ (d) átalakulás során

pasztaltaknak. A kinetikai elemzés kimutatja, hogy a szimulációban is termikusan aktivált folyamat a szemcsedurulás.

$$d^2 = d_0^2 + k_0 \exp\left(-\frac{Q_c}{RT}\right)t \quad (4)$$

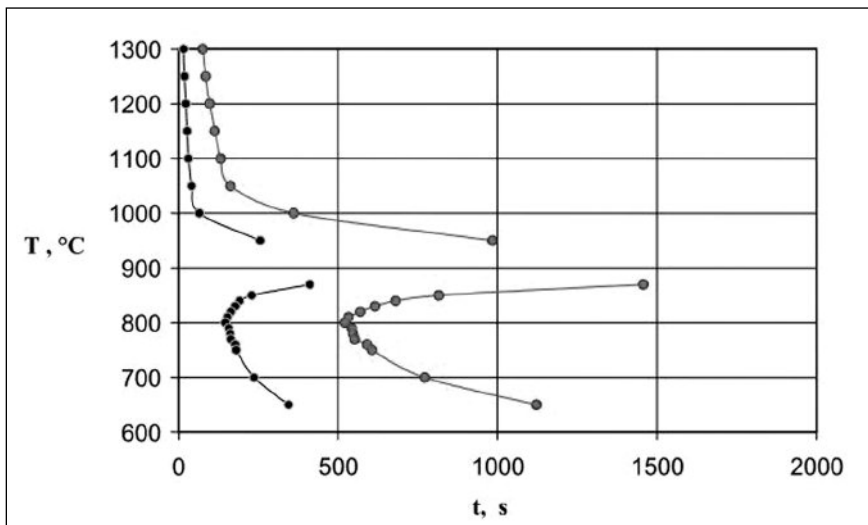
Az újrakristályosodási folyamat csíráképződéssel és csíranövekedéssel megy végbe. Egy sejtből abban az esetben lesz csíra, ha a szóban forgó sejt alakított állapotú, összes energiája nagyobb, mint a

csíráképződés aktiválási energiája, és az a feltétel is teljesül, hogy minden szomszédja alakított állapotban van. A csíranövekedési folyamat akkor indul meg, ha az adott sejtnek van legalább egy olyan szomszédja, amely újrakristályosodott állapotban van. Ebben az esetben a vizsgált sejt felveszi ezt az állapotot, amelylyel kisebb energiaállapotba kerül. Az újrakristályosodás kinetikáját a JMAK (Johnson–Mehl–Avrami–Kolmogorov) egyenlet írja le (5). Az

egyenletben az F jelöli az újrakristályosodott, átalakult hányadot, továbbá B_0 , Q_R , n konstansok.

$$F = 1 - \exp\left(-B_0 \exp\left(\frac{Q_R}{RT}\right)t^n\right) \quad (5)$$

Statikus újrakristályosodás szimulációs eredményei láthatók az 3. ábrán. Átalakult hányad az idő (automatalépés) függvényében (3a ábra) és Avrami-egyenese (3b és 3c ábra). Az eredményekből látható, hogy az automata valóban a JMAK



■ 5. ábra. Átalakulási diagram allotrop átalakulás esetén

kinetikát követi, és a kinetikai analízis kimutatta, hogy az automata újrakristályosodás szimulációja valóban termikusan aktivált. Az $\alpha \rightarrow \gamma$ és a $\gamma \rightarrow \alpha$ átalakulás izoterm körülményeket vizsgáló szimulációjának eredményeit a 4. ábra mutatja. A 4a és 4b ábrán az átalakult hányad látható az idő függvényében, illetve látható, hogy a szimuláció által számított eredmények ugyancsak leírhatók az Avrami kinetikával (4c és 4d ábra).

Több hőmérsékleten elvégezve a fenti számításokat, az átalakult hányad időbeli változásából a vizsgált allotrop átalakulásra vonatkozó izoterm átalakulási diagram megszerkeszthető. Az 5. ábra az 5% kezdeti és a 95% befejező átalakuláshoz tartozó görbepárt mutatja.

Következtetések

A szemcsedurulás kinetikáját a (4) egyenlet írja le. Az átlagos szemcseméret (2. ábra) lineárisan változik az idővel izoterm körülmények mellett. A kapott eredmények megfelelnek a (4) egyenletnek.

Az újrakristályosodott hányad idő- és hőmérséklet-függését a JMAK egyenlet írja le. A szimuláció által számított átalakult hányad görbéket, izoterm körülmények mellett a 3a ábra mutatja be. Az eredmények azt

mutatják, hogy a szimuláció számítási követik a JMAK egyenletet.

Az allotrop átalakulás kinetikáját szintén a JMAK egyenlet írja le. Az $\alpha \rightarrow \gamma$ és $\gamma \rightarrow \alpha$ átalakulás szimulációs eredményei szintén követik a JMAK kinetikát (4. ábra), és a kapott eredményekkel az átalakulási diagram allotrop átalakulás esetén izoterm körülmények között felvehető (5. ábra).

Összefoglalás

Kutatásunk célja sejtautomata fejlesztése fémekben végbemenő rövidtávú diffúziós folyamatok szimulációjához. Bemutattuk, hogy az újrakristályosodás, az allotrop átalakulás és a szemcsedurulás folyamata az automatában milyen szabályok szerint működik. Ezen szabályok konfigurációs, illetve energiatételből állnak. Láthattuk, hogy az energiatétel szabálya mind a három folyamat esetén megegyezik, csupán a folyamat hajtóereje változik az adott folyamatra vonatkozóan. A szimuláció eredményei mindhárom folyamat esetén ugyanazokkal az egyenletekkel írhatók le, mint amelyeket mérési eredmények leírására javasol a szakirodalom. Az automata alkalmazása lehetővé teszi számunkra bonyolult hőkezelési problémák megoldását.

Köszönetnyilvánítás

A cikkben szereplő kutatómunka a TÁMOP 4.2.1.B/2/KONV-0001-2010 pályázat támogatásával készült.

Irodalom

- [1] Porter, D. A. – Easterling, K. E.: Phase Transformation in Metals and Alloys, Chapman & Hall, London, 1996.
- [2] Chopard, B. – Droz, M.: Cellular Automata Modeling of Physical Systems, Cambridge University Press, 2005
- [3] Davies, C. H. J.: Scripta Mater., Vol. 36, No. 1, (1997), pp. 35–40.
- [4] Rollett, A. D. – Raabe, D.: Comp. Mater. Sci., Vol. 21, (2001), pp. 69–78.
- [5] Tian, B. – Lind, C. – Schafner, E. – Paris, O.: Materials Science and Engineering, A 367 (2004) 198–204.
- [6] Wolf, D. – Yip, S.: Materials Interfaces, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, 1992.
- [7] Kugler, R. Turk: Study of the influence of initial microstructure topology on the kinetics of static recrystallization using a cellular automata model, Computational Materials Science 37. (2006), 284–291.
- [8] Raghavan, S. – Sahay, S. Satyam: Modelling the topological features during grain growth by cellular automaton. Computational Materials Science 46 (2009), 92–99.
- [9] Goetz, R. L.: Particle stimulated nucleation during dynamic recrystallization using a cellular automata model, Scripta Materialia 52 (2005), 851–856.
- [10] Yu, Xiaofei – Chen, Shenhao – Wang, Liang: Simulation of recrystallization in cold worked stainless steel and its effect on chromium depletion by cellular automaton. Computational Materials Science 46 (2009), 66–72.