

CRECIMIENTO DE GRANO TRIDIMENSIONAL CON PARTÍCULAS MÓVILES USANDO MÉTODO DE MONTE CARLO.

THREE-DIMENSIONAL GRAINGROWTH WITH MOBILE PARTICLES USING MONTE CARLO METHOD

P.I. Achával^a, C.L. Di Prinzio^{a, b, *}

^a Facultad de Matemática, Astronomía y Física (FaMAF) – Universidad Nacional de Córdoba – Medina Allende s/n, Ciudad Universitaria, (5016) Córdoba, Argentina.

^b Instituto de Física Enrique Gaviola (IFEG-CONICET), Medina Allende s/n, Ciudad Universitaria, (5016) Córdoba, Argentina.

Recibido: 14/05/17; aceptado: 19/04/18

En este trabajo se presenta un modelo de simulación de crecimiento de grano con partículas móviles en tres dimensiones usando el método Monte Carlo. Se estudió el efecto de la concentración y el tamaño de las partículas sobre el tamaño de grano. En general, se pudo observar la migración de las partículas hacia los bordes de grano y el frenado que las mismas producen sobre el movimiento de los límites de grano. También se observó a tiempos largos un efecto de liberación de los bordes de grano respecto a las partículas. Se determinó el radio crítico donde los granos se frenan para cada concentración y cada tamaño de partícula. Finalmente, se presenta la relación entre el radio crítico, el tamaño de las partículas y concentración de las mismas. Se concluyó que el radio crítico es en general igual al radio de la esfera equivalente al volumen entre las partículas.

Palabras clave: Monte Carlo, Crecimiento de Grano, Partículas móviles, Partículas de Segunda Fase, Efecto Zener.

In this paper we present a simulation model of grain growth with moving particles in three dimensions using the Monte Carlo method. The effect of concentration and particle size on grain size was studied. In general, it was possible to observe the migration of the particles towards the grain boundaries and the pinning that they produce on the movement of the grain boundaries. An effect of releasing the grain boundaries from the particles was also observed at long times. The critical radius, where the grains were dragged for each concentration and particle size, was determined. Finally, the relation between the critical radius, the particle size and the concentration of the particles is presented. It was concluded that the critical radius is generally equal to the radius of the sphere equivalent to the volume between the particles.

Keywords: Monte Carlo, Grain Growth, Moving Particles, Second Phase Particles, Zener drag.

I. INTRODUCCIÓN

El método de Monte Carlo (MC) ha sido utilizado para simular numéricamente el crecimiento de grano (CG) en muestras policristalinas bidimensionales (2D)^{1, 2}. Yu y Esche³ presentaron un análisis cinético y topológico del método de MC en CG en muestras policristalinas en tres dimensiones (3D) sin partículas.

Con el mismo método se estudiaron efectos de las impurezas inmóviles⁴ y móviles⁵ sobre muestras 2D y efectos de las impurezas inmóviles sobre muestras policristalinas tridimensionales⁶.

El CG con partículas de segunda fase dispersa es de interés en glaciología. El CG en muestras de hielo polar y su relación con los contaminantes se encuentra ligado al clima del pasado y su investigación es relevante hoy día para conocer el comportamiento del clima⁷. En los hielos polares se encuentran, en general, partículas que pueden moverse o no con el BG y el efecto de estas partículas en el CG todavía es tema de discusión⁸. Las simulaciones numéricas pueden ayudar a entender este fenómeno.

Di Prinzio y col.⁹ encontraron que las partículas inmóviles frenan el crecimiento de grano hasta detenerlo y que en 3D se cumple la ley de Zener:

$$R_c = \frac{4}{3} \frac{r}{f} \quad (1)$$

donde R_c es el radio máximo que alcanzan los granos debido a la influencia de las partículas, f la fracción volumétrica de partículas y r el radio de las partículas. Los granos son identificados con un radio medio R que representa el radio de una esfera cuyo volumen es equivalente al volumen medio de los mismos. Este volumen medio se obtiene dividiendo el volumen total de la muestra por el número total de granos en cada paso de MC.

El radio medio de los granos, R , se obtiene de la ecuación:

$$\frac{dR}{dt} = k \left(\frac{1}{R} - \frac{1}{R_c} \right) \quad (2)$$

donde k es una constante cinética del CG.

La integración de la ecuación anterior da como resultado:

$$k(t - t_0) = -R_c \left(R_c \ln \left(\frac{R - R_c}{R_0 - R_c} \right) + (R - R_0) \right) \quad (3)$$

donde R_0 es el radio al tiempo inicial t_0 y se encuentra citada por Grey y Higgins¹⁰.

Lo relevante de este trabajo es que se hicieron simulaciones con distintos tamaños de partículas. Los

* diprinzio@famaf.unc.edu.ar

datos obtenidos por Di Prinzio y col.⁹ se ajustaron con la ecuación anterior a fin de encontrar el valor de R_c .

Asimismo, el trabajo de Hassold y Srolovitz⁵ se basa en simulaciones con Monte Carlo del CG en 2D con partículas móviles cúbicas unitarias. En este importante trabajo se encuentra que los BGs migran, inicialmente, siguiendo la ec.3. A partir de un cierto tiempo t_c los granos adquieren, en promedio, un tamaño de grano medio caracterizado por R_c y se frena notablemente el CG. Según los autores, el tiempo t_c sigue la ecuación:

$$t_c = \frac{R_c^2}{2k_c} \quad (4)$$

donde k_c es una constante cinética intrínseca del CG (ver ec. 2).

El CG se estanca fuertemente hasta un cierto tiempo t_h a partir del cual los BGs se liberan de las partículas y se aceleran. El tiempo t_h está dado por la ecuación:

$$t_h = \frac{R_c^2}{2k_l} \quad (5)$$

donde k_l es la constante cinética intrínseca del CG (ver ec. 2) que, según los autores, es: $k_l = \beta/f$ y β es un parámetro físico que depende de la interacción de las partículas con el BG. Las ecuaciones 4 y 5 propuestas por Hassold y Srolovitz⁵ son válidas cuando se aproxima R_c a tiempo cortos por:

$$R_c^2 \approx 2k_c t \quad (6)$$

Esta aproximación resulta poco creíble debido a los resultados hallados en otros trabajos¹⁻⁶. Sin embargo, el trabajo de Hassold y Srolovitz⁵ es muy importante en relación al CG con partículas móviles.

Por otro lado, es de destacar que los resultados con simulaciones de MC del CG en 3D con partículas móviles son muy escasos y no han sido hechos para diferentes tamaños de partículas^{6,9,11,12}.

La motivación de este trabajo es presentar por primera vez un estudio de CG utilizando una noble adaptación del método de Monte Carlo en 3D^{1-3,9} y ver los efectos del tamaño de las partículas móviles y su concentración sobre el CG. Posiblemente estos resultados puedan contribuir a la interpretación y esclarecimiento de fenómenos físicos en muchos materiales y, en particular, en el hielo polar.

II. MÉTODOS

Algoritmo de cálculo

La simulación del CG con MC en muestras en 3D usa los mismos procedimientos que se emplean en muestras en 2D^{1,2}.

Inicialmente se crea una red 3D con Q sitios ($N_x \times N_y \times N_z = Q$) donde cada sitio i representa un grano con una orientación única $S_i > 0$. En este modelo el policristal inicial tiene todos los granos con $S_i = 1/K$ Q diferentes.

El algoritmo diferencia entre sitios pertenecientes a un cristal o grano ($S > 0$) y sitios pertenecientes a una partícula ($S = 0$).

Para sitios con $S > 0$ el algoritmo sigue los siguientes pasos:

- La energía total del policristal W está dada por:

$$W = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^Q \sum_{j=1}^V J(1 - \delta_{S_i S_j}) \quad (7)$$

con S_i y S_j orientaciones de los sitios de la red y pertenecientes a un grano i y j respectivamente, J energía de interacción entre sitios, Q número de sitios de red, V número de vecinos al sitio i , y δ función delta de Kronecker. En este trabajo se toma $V = 26$ vecinos y la red de puntos de $Q = 100 \times 100 \times 100$ pixel³ (nombre utilizado para referenciar una unidad en la muestra).

- En forma aleatoria se elige un sitio de la red perteneciente a un grano denominado i con una orientación S_i . Mediante la ec. 7 se calcula la energía alrededor del sitio i :

$$W_i^{in} = \sum_{j=1}^V J(1 - \delta_{S_i S_j}) \quad (8)$$

donde el supra índice *in* significa etapa inicial.

- Luego se reemplaza la orientación del sitio i , S_i , por una orientación S_j del sitio j obtenida aleatoriamente de sus vecinos que pertenecen a un grano.

- Se calcula nuevamente la energía del sitio i , W_i^{fi} , donde el supra índice *fi* significa final.

- Luego se calcula la diferencia de energías:

$$\Delta W_i = W_i^{fi} - W_i^{in} \quad (9)$$

- Si la ec. 9 resulta negativa o nula el cambio se produce permanentemente, y si es positiva se calcula una probabilidad P dada por:

$$P = e^{\frac{-\Delta W_i}{kT}} \quad (10)$$

donde k es la constante de Boltzman y T es la temperatura del policristal. Para permitir que el sistema produzca cambios por activación térmica, se elige un número aleatorio M entre 0 y 1, y se compara con P . Si P es más grande que M entonces se hace el cambio de S_i por el S_j , en caso contrario no. En todas las simulaciones se considera $kT \approx 0,5J$.

Para esta simulación se utilizan condiciones de borde reflector. Las reglas que rigen el movimiento de las partículas móviles son las siguientes:

- Al igual que Anderson y col.⁶ las partículas móviles son representadas con la orientación $S = 0$ y se mantiene fija su concentración a lo largo de toda la simulación. Las posiciones iniciales de las mismas se establecen distribuyéndolas uniformemente en la muestra. Las partículas estudiadas estaban formadas por un conjunto de sitios de la muestra con $S = 0$ constituyendo cubos de lados 1, 2 o 3 pixels según fuera el tamaño de las partículas utilizadas en la simulación.

- Se elige un sitio w al azar de la muestra y se verifica que el mismo tenga $S = 0$, o sea, que pertenezca a una partícula o a parte de ella.

- Para mover una partícula se debe asegurar primero que el sitio elegido al azar pertenezca al centro geométrico de la partícula. También es necesario saber si la partícula está dentro de un grano (G), en un borde de grano (BG) o cerca del límite de la muestra. La partícula es movida solamente si el sitio elegido w es centro de una partícula y la misma está en el G o en el BG. Si la partícula está en el G se elige un vecino del sitio w al azar

y se mueve a esa posición el centro de la partícula (eso significa que se mueven simultáneamente todos los sitios con $S=0$ que forman la partícula cúbica). Si la partícula está en el BG, se elige al azar un vecino del sitio w y se mueve a esa posición el centro de la partícula siempre que la ec. 9 de cero o un número negativo. Si la ec. 9 da un número positivo se mueve la partícula si y sólo si la probabilidad P de la ec. 9 es más grande que el número aleatorio M (definido anteriormente).

d) Se debe aclarar que si la partícula está en el G y el sitio vecino elegido aleatoriamente produce un movimiento de la partícula en dirección al límite de la muestra se prohíbe ese estado y se elige un nuevo sitio vecino de manera aleatoria.

Aplicación del modelo

Se utiliza el programa de CG en 3D, en muestras de $100 \times 100 \times 100$ pixel³ con y sin partículas móviles y con energía de BG uniforme.

Se simulan policristales cúbicos sin partículas y con 1%, 2%, 3%, 4%, 5% y 10% de partículas móviles de tres tamaños diferentes (1 pixel³, 27 pixel³ y 125 pixel³). Las simulaciones se realizan partiendo de una muestra con granos de radio inicial de 1 pixel³ y se hacen cerca de 60.000 pasos de computadora (MCS) equivalentes a 3 días de simulación.

En cada paso, se registra el tamaño medio R (que se calcula como se indica en la introducción según Di Prinzio y col.⁹) de los granos de la muestra.

III. RESULTADOS

En la figura 1 se presenta una muestra de un policristal en 3D usado en la simulación a los 1000 MCS y a los 10000 MCS. Tiene partículas cúbicas de 3 pixels de lado y la concentración volumétrica de las mismas es de 4%. Las partículas son representadas por puntos negros y los granos por distintas tonalidades de grises. Se puede ver cómo las partículas móviles se van ubicando en el BG de la muestra mientras el tamaño medio de los granos crece.

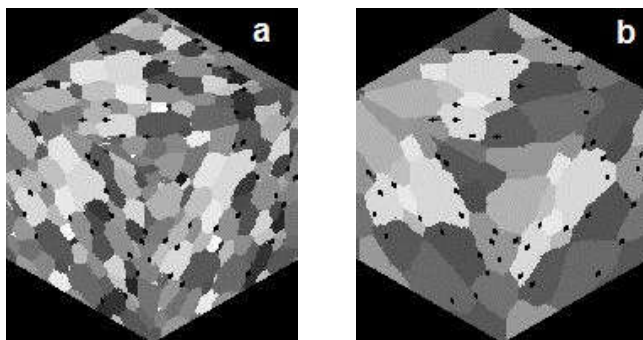


Figura 1: Policristal con partículas cúbicas de lados de 3 pixels y concentración 4%: a) $t = 1000$ MCS y b) $t = 10000$ MCS.

En la figura 2 se muestra R en función de t en MCS para muestras con partículas cúbicas de lado 1 pixel con concentraciones de 0%, 1%, 3%, 5% y 10%. Se observa que, en general, para todas las concentraciones, el CG prácticamente se detiene hasta por lo menos los 50.000 MCS que duraron las simulaciones.

En la figura 3 se presentan los valores de R en función de MCS hasta los 10.000 MCS para muestras con partículas cúbicas de lado 3 pixels con concentraciones de 0%, 1%, 2%, 3%, 4%, 5% y 10%. Se puede advertir que para las muestras con 4%, 5% y 10% los CGs presentan un frenado significativo en los primeros 10.000 MCS hasta casi impedir el CG; sin embargo, las muestras con 1%, 2% y 3% sufren solo un leve frenado en el CG.

En la figura 4 se presenta R en función de MCS para muestras con partículas cúbicas de lado 5 pixels con concentraciones de 0%, 1%, 2%, 3%, 4%, 5% y 10%. Se puede percibir que las muestras con concentraciones de 2%, 3%, 4%, 5% y 10% presentan un frenado importante. En las muestras de 2%, 3% y 4% la detención del CG es temporal observándose una posterior aceleración del CG, mientras que en las muestras del 5% y 10% el detenimiento del CG es prácticamente total hasta los 60.000 MCS que duraron las simulaciones.

En general se observan dos tipos de muestras:

1) **Muestras con frenado (MCF)**: son aquellas muestras donde las partículas están a poca distancia entre sí y el CG prácticamente se detiene en un tamaño R_c a un tiempo t_c .

2) **Muestras sin frenado (MSF)**: Aquellas muestras donde las partículas están bastante separadas entre sí y el CG se va frenando levemente a un tiempo t_c para un radio R_c pero no se detiene nunca.

También se pudo constatar que, para muestras con igual concentración f , el valor de R_c es más grande en muestras con partículas más grandes.

En la figura 5 se presenta el tamaño de grano medio R en función del MCS para una muestra con partículas cúbicas de lado 3 pixels y una concentración volumétrica de 4%. Se muestran los valores hasta alrededor de los 4000 MCS dado que más allá de ese valor R comienza a crecer (y el frenado va disminuyendo paulatinamente). Se puede ver que R es ajustado muy bien, hasta los 3100 MCS, por la ec. 3 que representa el CG con frenado según Grey y Higgins¹⁰. El radio R_c se obtiene de este ajuste.

Por otro lado, el tiempo t_c se considera como el tiempo donde el radio R de los granos comienza a variar menos del 5% (que representa la cota superior de la dispersión que tiene el radio medio).

Para cada policristal presentado en las figuras 2, 3 y 4 con distinto tamaño de partículas y concentración se extrae R_c y t_c , al igual que lo hizo Hassold y Srolovitz⁵, usando un ajuste de acuerdo a la ec. 4. Se ajustan los datos desde la parte inicial hasta donde el tamaño de grano varía sólo un 5%. Hassold y Srolovitz⁵ usaron sólo un tamaño de partícula pero pudieron ver que algunas muestras se comportaban como MCF y otras como MSF.

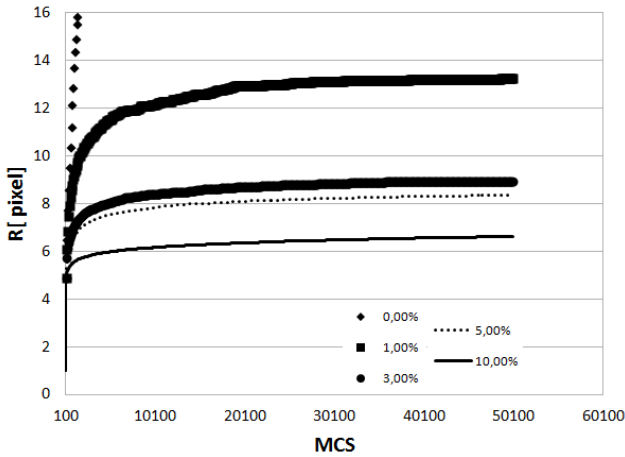


Figura 2: R en función de MCS para muestras con partículas cúbicas de lado 1 pixel y concentraciones de partículas de 0%, 1%, 3%, 5% y 10%.

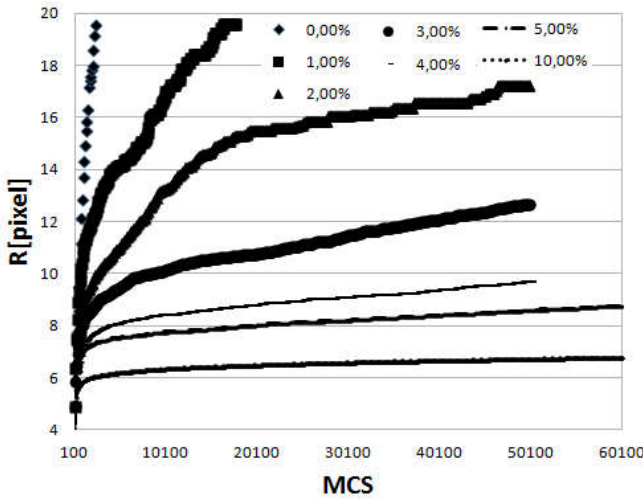


Figura 3: R en función de MCS para muestras con partículas cúbicas de lado 3 pixels y concentraciones de partículas de 0%, 1%, 2%, 3%, 4%, 5% y 10%.

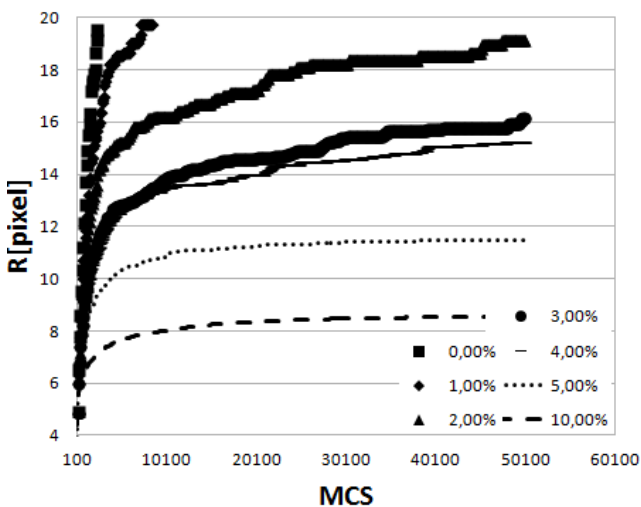


Figura 4: R en función de MCS para muestras con partículas cúbicas de lado 5 pixels y concentraciones de partículas de 0%, 1%, 2%, 3%, 4%, 5% y 10%.

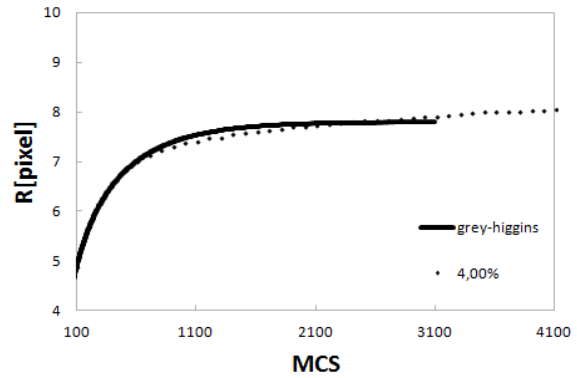


Figura 5: R en función de MCS para muestras con 4% de partículas cúbicas de lado 3 pixels.

Entonces, se puede calcular R_c/r en función de f (figura 6), donde r es el radio equivalente de una esfera con el mismo volumen que la partícula. Se observa que, para las partículas más grandes, R_c/r en función de f sigue la siguiente relación:

$$\frac{R_c}{r} = a f^b \quad (11)$$

donde $b = -0,38 \pm 0,04$ y $a = 1,2 \pm 0,2$.

Los datos de R_c/r vs. f para las partículas más chicas tienen la misma pendiente y se nota que los valores de R_c son grandes para que los valores de R_c/r coincidan con los datos de las partículas más grandes. Eso podría estar relacionado con el unpinning (o desprendimiento) de las partículas del BG que ya había observado Di Prinzio y col.⁹.

Se puede notar, además, que si se calcula R_l (que es el radio del volumen equivalente esférico entre las partículas con radio r y concentración f) se tiene la siguiente relación:

$$\frac{R_l}{r} = a f^b \quad (12)$$

donde $a = 1$ y $b = -1/3$.

Se puede apreciar que el exponente b y el factor pre-exponencial de la simulación (ver ec. 11) coinciden muy bien con los valores deducidos de la teoría.

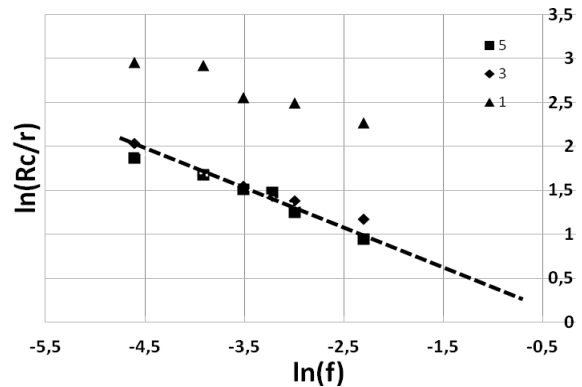


Figura 6: R_c/r en función de f para las muestras simuladas con partículas de lado 1, 3 y 5 pixels a diferentes concentraciones.

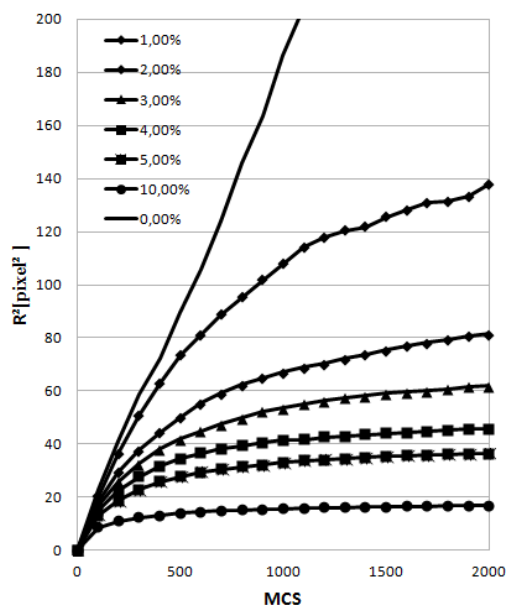


Figura 7: R^2 en función de MCS para las muestras simuladas con partículas de lado 3 pixels a diferentes concentraciones.

Entonces, el radio R_c es prácticamente el radio R_l del volumen libre que existe entre las partículas.

Al investigar qué ocurre con el tiempo t_c en nuestras simulaciones se puede advertir que t_c no se comporta como la ec. 4. Se estima que esa discrepancia se puede deber a que el valor de R^2 no guarda una relación lineal con MCS como se propone en la ec. 6, originalmente dada por Hassold y Srolovitz⁵. A modo de ejemplo, en la figura 7 se muestra R^2 vs. MCS para CG con partículas cúbicas de lado 3 pixel a diferentes concentraciones y donde la relación entre ambas variables no es lineal, salvo para el caso de muestras libres de partículas. Por lo tanto, no se pueden aplicar la ec. 4 en nuestros datos como lo hicieron Hassold y Srolovitz⁵ para hallar el tiempo t_c .

IV. CONCLUSIONES

En este trabajo se presentan resultados simulados de CG con partículas cúbicas móviles de lado 1, 3 y 5 pixels a diferentes concentraciones en el rango de 0% a 10%.

Los resultados muestran que:

1) El crecimiento de los granos con partículas móviles de distinto tamaño se detiene para un cierto tamaño de los granos (al que se denomina “crítico”) parcialmente para muestras del tipo MSF y totalmente para muestras del tipo MCF.

2) El valor de R_c en el CG depende de la fracción de partículas móviles como una potencia de $-1/3$ y del tamaño de las mismas, siguiendo la ec. 11.

3) Ese detenimiento parcial o total se produce cuando el diámetro del volumen esférico equivalente de los cristales es del orden de la distancia entre las partículas.

Queda para futuros trabajos encontrar qué combinación de variables produce una muestra MCF o una muestra MSF.

V. AGRADECIMIENTOS

Este trabajo fue posible gracias a la colaboración de José Barcelona y del apoyo económico de la secretaria de Ciencia y técnica de la UNC.

VI. REFERENCIAS

- 1- Anderson, M.P., D.J. Srolovitz, G.S. Grest, y P.S. Sahni, Acta Metallurgica, **32**,5, 783-791 (1984).
- 2- Srolovitz, D.J., M.P. Anderson, P.S. Sahni, y G.S. Grest, Acta Metallurgica, **32**, 5, 793-802 (1984).
- 3- Yu, Q. and S.K. Esche, Materials Letters, **57**,30, 4622-4626 (2003).
- 4- Gao, J., R.G. Thompson y R. Patterson, Acta Materialia, **45**, 9, 3653-3658 (1997).
- 5- Hassold, G.N. y D.J. Srolovitz, Scripta Metallurgica et Materialia, **32**,10, 1541-1547 (1995).
- 6- Anderson, M.P., G.S. Grest, R.D. Doherty, L. Kang y D.J. Srolovitz, Scripta Metallurgica, **23**,5, 753-758 (1989).
- 7- Gow, A. J. y D. Meese, Journal of Glaciology, **53**,183,573-584 (2007).
- 8- Di Prinzio, C.L., L.A. Wilen, R.B. Alley, J.J. Fitzpatrick, M.K. Spencer y A.J. Gow, Journal of Glaciology, **51**, 173, 281-290 (2005).
- 9- Di Prinzio, C.L., E. Druetta y O. B. Nasello, Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering, **21**, 2, 025007 (2013).
- 10- Grey, E. A. y G. T. Higgins, Scripta Metallurgica, **6**, 3, 253-258 (1972).
- 11- Novikov, V.Y., Scripta Materialia, **55**,3,243-246 (2006).
- 12- Mallick, A., Computational Materials Science, **67**, 27-34 (2013).