

EVOLUCIÓN CINÉTICA DE UN CRISTAL ESFÉRICO 3D CON PARTICULAS MÓVILES USANDO MONTE CARLO

KINETIC EVOLUTION OF A 3D SPHERICAL CRYSTAL WITH MOBILE PARTICLES USING MONTE CARLO

P. I. Achával ^a, C. A. Rodríguez Luca ^a y C. L. Di Prinzio ^{a,b}

^a FAMAF (Facultad de Matemática, Astronomía, Física y Computación). Universidad Nacional de Córdoba. Medina Allende y Haya de la Torre. (5000) Ciudad Universitaria. Córdoba. Argentina.

^b IFEG-CONICET (Instituto de Física “Enrique Gaviola”). Universidad Nacional de Córdoba. Medina Allende y Haya de la Torre. (5000) Ciudad Universitaria. Córdoba. Argentina.

e-mail: carlosdiprinzio@gmail.com

Recibido: 28/11/18; aceptado: 10/04/19

En este trabajo se estudió la evolución del tamaño de un cristal esférico tridimensional (3D) ante la presencia de partículas móviles usando un algoritmo de Monte Carlo. El radio medio R de un grano esférico sin partículas cambia según la ley: $R^2 = -4kt + R_o^2$, donde R_o es el radio inicial y k es una constante del cristal. Sin embargo, esta ley se ve modificada cuando tenemos partículas. También, se estudió el efecto sobre el movimiento del borde de grano esférico de dos tipos de partículas móviles. Un tipo de partícula permanecía ubicada en el medio del borde de grano una vez que la misma era incorporada (CT), y el otro tipo de partícula permanecía en el borde de grano sin tener ninguna ubicación en particular (NC). Se pudo observar que la partícula (CT) frenaba aún más el movimiento del borde de grano. Se encontró también que, para todas las concentraciones de partículas estudiadas (CT), la velocidad de reducción del área de la esfera es inversamente proporcional a la concentración de impurezas en el borde de grano. Por último, se halló que la esfera llega a un radio límite para partículas móviles CT, y ese radio límite está en relación con la cantidad de partículas que pueden acomodarse en el borde de grano.

Palabras claves: frenado Zener, cristal esférico, borde de grano, Monte Carlo.

In this work, the evolution of a tridimensional (3D) spherical crystal with mobile particles using a Monte Carlo algorithm is presented. The mean radius R of spherical crystal without particles changes according to the law: $R^2 = -4kt + R_o^2$, where R_o is the initial radius and k is a crystal constant. However, this law is modified when mobile particles are included. The effect of two types of mobile particles on the grain boundary migration of a spherical grain was also studied. One type of particle remained located in the middle of the grain boundary once it was incorporated (CT), and the other type of particle remained at the grain boundary without having any particular location (NC). It could be seen that the CT particle slowed down more the grain boundary migration than the NC particles. It was also found that the rate of reduction of the grain area is inversely proportional to the concentration of CT particles in the grain boundary for all the CT particles concentrations. Finally, it was established that the grain reaches a limit radius for CT particles which is related to the amount of particles that can be accommodated in the grain boundary.

Keywords: Zener drag, spherical crystal, grain boundary, Monte Carlo.

I. INTRODUCCIÓN:

El modelado y la simulación por computadora del crecimiento del grano en materiales policristalinos¹⁻⁴ está ganando importancia en los últimos años ya que es una de las características importantes en la microestructura que controla las propiedades mecánicas y funcionales de los materiales. El crecimiento de grano describe el aumento en el tamaño de grano promedio de un

material policristalino durante el recocido después de la recristalización primaria.

Los materiales policristalinos con grano muy fino sometidos a tratamientos térmicos son muy propensos al crecimiento de grano y tienen una fuerte tendencia a transformar su estructura de grano grueso con menos interfaces. Sin embargo, bajo la presencia de partículas o impurezas, el crecimiento de grano puede ser muy lento o casi nulo⁵. Una comprensión cabal de la cinética de la

evolución microestructural es esencial para diseñar nuevos materiales con propiedades especiales.

Di Prinzio y col⁵ encontraron, mediante técnicas de Monte Carlo (MC), que las partículas inmóviles frenan el crecimiento de grano hasta detenerlo y que en 3D se cumple la ley de Zener:

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

R_c es el radio máximo medio que alcanzan los granos debido a la influencia de las partículas, f es la fracción volumétrica de partículas y r es el radio de las partículas.

Lo relevante de este trabajo es que se hicieron simulaciones con distintos tamaños de partículas y concentraciones volumétricas a fin de verificar fehacientemente la ley.

La motivación es estudiar la cinética de crecimiento del grano de un bicristal esférico 3D con partículas móviles usando MC, como lo hizo Choudhury y col⁶, ya que es bastante escasa la bibliografía sobre crecimiento de grano con este tipo de partículas. Es conocido que el radio medio R de un grano esférico (sin partículas) se achica en el tiempo siguiendo la ley:

$$R^2 - R_o^2 = -4kt \quad (2)$$

o

$$A - A_o = -mt \quad (3)$$

donde $m = 16\pi k$, R_o es el radio medio inicial y $k = M\gamma$, con la energía γ y la movilidad M del BG uniformes. A ($A = 4\pi R^2$) representa el área media del grano esférico y A_o el área inicial del grano.

En este trabajo se presentan dos mecanismos de movilidad. El primero es aquel en cual la partícula que está en el borde de grano (BG) se mueve por el BG. El segundo mecanismo es aquel en el que la partícula que está en el BG se mueve por él, pero ubicándose siempre en el centro del BG. Este último mecanismo intenta mostrar que la partícula se ubica en la zona del BG con mayor desorden o desarreglo estructural del BG, como lo hace en los granos de los testigos de hielos glaciares⁷.

II. ALGORÍTMO DE CÁLCULO

La simulación del crecimiento del bicristal esférico 3D con MC usa los mismos procedimientos que se emplean en muestras en 2D^{8,9} y 3D^{5,10}.

Inicialmente, se crea un cristal esférico dentro de una matriz de N sitios ($N_x \times N_y \times N_z = N$) donde el sitio i tiene una orientación única $S_i > 0$. En este

modelo el bicristal inicial tiene todos los sitios dentro del cristal esférico con $S_i = 1$, los sitios fuera del cristal con $S_i = 2$ y las partículas con $S = 0$.

El algoritmo sigue los siguientes pasos para sitios que pertenecen a uno de los cristales:

a) La energía total del policristal, W , está dada por:

$$W = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^V J(1 - \delta_{S_i S_j}) \quad (4)$$

con S_i y S_j orientaciones de los sitios de la red i y j respectivamente, J la energía de interacción entre sitios, V el número de vecinos al sitio i , y δ la función delta de Kronecker. En forma aleatoria se elige un sitio de la red perteneciente a un grano denominado i con una orientación S_i . Mediante la ecuación (4) se calcula la energía alrededor del sitio i :

$$W_i^{in} = \sum_{j=1}^V J(1 - \delta_{S_i S_j}) \quad (5)$$

donde el supra índice in significa etapa inicial.

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

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

d) Luego se calcula la diferencia de energías:

$$\Delta W_i = W_i^{fi} - W_i^{in} \quad (6)$$

e) Si la ecuación (6) resulta negativa o nula el cambio se produce permanentemente, y si es positiva se calcula una probabilidad P dada por:

$$P = e^{\frac{-\Delta W_i}{KT}} \quad (7)$$

donde K es la constante de Boltzmann y T es la temperatura del policristal. Para permitir que el sistema produzca cambios por activación térmica, se elige un número aleatorio, Z , entre 0 y 1, y se compara con P . Si P es más grande que Z entonces se hace el cambio de S_i por S_j , en caso contrario no. Las reglas que rigen el movimiento de las partículas móviles son las siguientes:

a) Las partículas móviles fueron representadas por cubos de lados de 3 píxeles (nombre utilizado para referenciar una unidad de distancia en la muestra), con la orientación $S = 0$, y se mantuvo su concentración fija a lo largo de la simulación⁸⁻¹⁰. Las posiciones iniciales de las mismas se establecieron distribuyéndolas aleatoriamente en la muestra.

b) Se elige un sitio w al azar de la muestra y se verifica que el mismo tenga $S = 0$ o, lo que es lo

mismo, que el sitio pertenezca a una partícula o a parte de ella.

c) Para mover una partícula se debe primero asegurar que el sitio elegido al azar, w , pertenezca al centro geométrico de la partícula.

d) Es necesario saber si la partícula está dentro de un grano (G), en un borde de grano (BG) o sobre del límite de la muestra.

e) No todas las partículas sobre el BG fueron movidas en un MCS. Al ser elegida una partícula en el BG se calcula un número aleatorio entre 0 y 1, si ese número es menor a una dada probabilidad P dada por la formula (7) con $\Delta W = Q$ entonces la partícula elegida se mueve. El valor de Q es un parámetro físico relacionado con la movilidad media de las partículas. Por ejemplo, si $Q = 0$, entonces $P = 1$ y, en ese caso, todas las partículas se mueven. Si $Q/KT \gg 1$ entonces $P \ll 1$ y las partículas son prácticamente inmóviles.

f) Se debe aclarar que si la partícula está en el BG y el sitio vecino elegido aleatoriamente produce un movimiento de la partícula hacia el límite de la muestra, se prohíbe ese estado y se elige un nuevo sitio vecino de manera aleatoria.

g) Las partículas pueden acercarse entre sí hasta una distancia de un 1 píxel pero no pueden colapsar.

h) La partícula en el BG es movida de dos maneras:

Método CT (centrado): Este método consiste en elegir aleatoriamente un vecino del sitio w y mover la partícula siempre que la misma siga perteneciendo al BG, se encuentre ubicada en el centro del BG y que no toque a otra partícula (figura 1a).

Método NC (no centrado): Este método consiste en elegir aleatoriamente un vecino del sitio w y mover la partícula siempre que la misma siga perteneciendo al BG, sin necesidad de que la partícula esté centrada en el BG y que no toque a otra partícula (figura 1b).

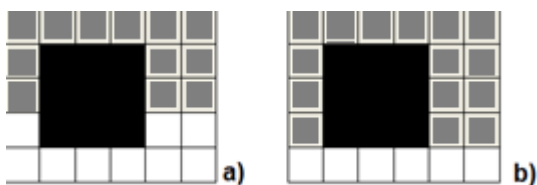


Figura 1: Partícula móvil (negro), cristal superior (gris) y cristal inferior (blanco). Los cuadrados son píxeles. En el caso a) la partícula está centrada en el BG, y en el caso b) la partícula está en el BG descentrada.

III. RESULTADOS DE LAS SIMULACIONES:

Se utilizó un programa de crecimiento de grano en 3D, en muestras de $100 \times 100 \times 100$ píxel³, con y sin partículas móviles y con energía de BG uniforme. El valor de J utilizado fue KT .

En este trabajo, se tomó $V = 26$ vecinos y el radio del cristal esférico fue de 40 píxeles (ver figura 2).

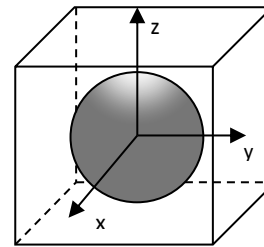


Figura 2: Bicristal esférico inmerso en una matriz de $100 \times 100 \times 100$ píxeles y un sistema de coordenadas x - y - z .

Se simularon cristales esféricos sin partículas y con 0,05%, 0,1% y 0,5% de concentración volumétrica de partículas móviles. Se hicieron tantos pasos de Monte Carlo (MCS) como fueron necesarios hasta lograr que el radio del cristal esférico se mantuviera constante o se hiciera cero.

En cada paso se fue registrando el radio medio R del cristal esférico, el área total del cristal y las cantidades de partículas en el BG.

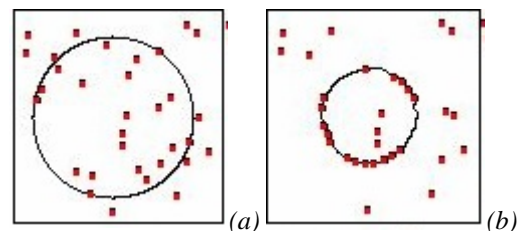


Figura 3: Evolución de un cristal esférico 3D por el método CT a diferentes MCS: a) $t = 0$ MCS y b) $t = 1000$ MCS. El valor de $Q = 1,6KT$.

En la figura 3 se presenta un corte de una muestra cristalina 3D usada en la simulación a los 0 MCS y a los 1000 MCS. Tiene partículas cúbicas de lados de 3 píxeles y una concentración volumétrica de 0,5%. Las partículas son representadas por puntos negros y el BG por la línea negra. La simulación fue hecha con partículas regidas por el método CT.

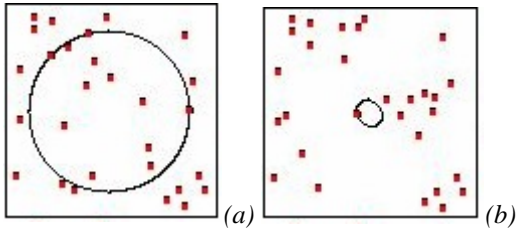


Figura 4: Evolución de un cristal esférico 3D por el método NC a diferentes MCS: a) $t = 0$ MCS y b) $t = 1000$ MCS. El valor de $Q = 1,6KT$.

En la figura 4 se presenta un corte de una muestra bicristalina 3D usada en la simulación a los 0 MCS y a los 1000 MCS con una concentración de 0,5%. La simulación fue hecha con partículas regidas por el método NC.

En la figura 5 (a) se puede ver que las partículas que inicialmente estaban en el BG descentradas pasan a estar centradas luego de los primeros 100 MCS cuando se utiliza el método CT. Mientras que las partículas siguen descentradas luego de los 100 MCS cuando se aplica el método NC según se ve en la figura 5 (b).

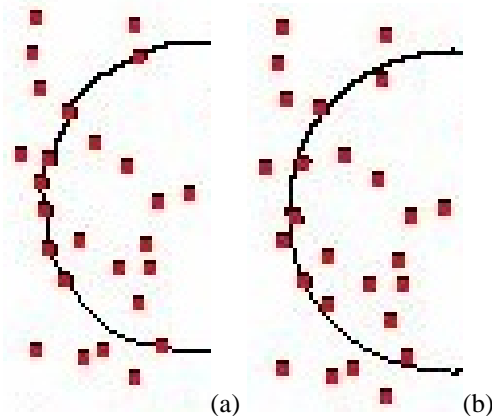


Figura 5: Evolución de las partículas en el BG luego de 100 MCS: a) Método CT y b) Método NC. El valor de $Q = 1,6KT$.

En la figura 6a se grafica el área de la esfera A vs. MCS para simulaciones sin partículas (puro) y con 0,05%, 0,1% y 0,5% de concentración volumétrica de partículas móviles con el método CT. En la figura 6b se representan las mismas simulaciones de la figura 6a, pero con partículas siguiendo el método NC. En ambos casos el valor de $Q = 1,6KT$.

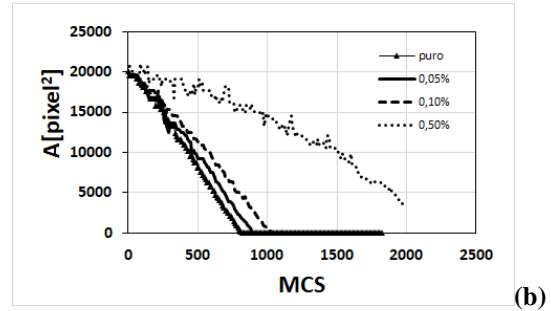
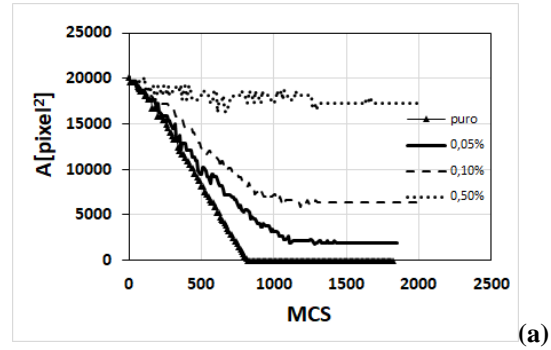


Figura 6: A vs MCS para simulaciones sin partículas y con 0,05%, 0,1% y 0,5%, de concentración volumétrica de partículas móviles: a) Método CT y b) Método NC.

Podemos ver en el gráfico 6a, que el área va disminuyendo con cada MCS hasta que finalmente el área se mantiene constante. La relación (2) no se cumple ya que no se observa un comportamiento lineal. En la figura 6b, el área va disminuyendo casi linealmente y finalmente se reduce a cero.

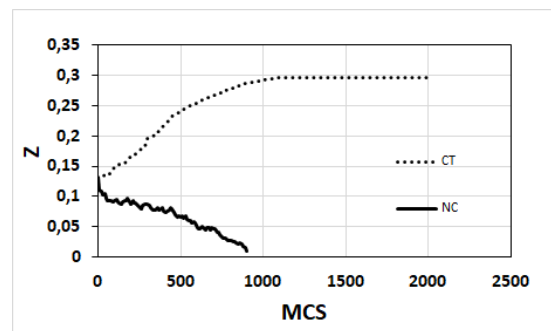


Figura 7: Z vs MCS para simulaciones con 0,1% de partículas móviles por los métodos CT y NC.

En la figura 7, se presenta la razón Z entre las partículas en el BG y el número total de partículas en función del MCS. Podemos ver que las partículas móviles van disminuyendo en el BG cuando el mismo migra por el método NC y se va incrementando en número cuando el BG migra por el método CT.

Se deduce que el método CT produce un mayor frenado que el método NC, porque las partículas nunca abandonan el BG y se van acumulando produciendo un aumento paso a paso de la cantidad de partículas en él.

En la figura 6a, vemos que la pendiente m de A vs MCS para una dada concentración de partículas va cambiando durante la simulación. En la figura 8, se grafica m en función del número de partículas móviles en el BG por unidad de área del BG (f_{bg}). Podemos ver que m varía linealmente con f_{bg} y no varía con la concentración volumétrica de partículas (f).

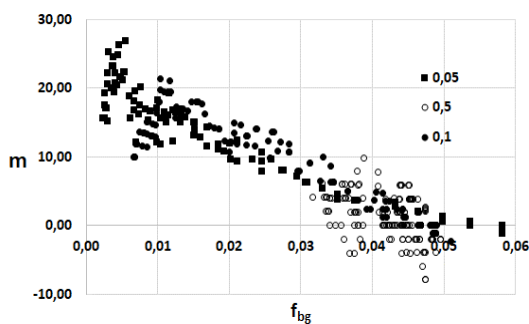


Figura 8: m vs f_{bg} para simulaciones con concentraciones de partículas (f) de 0,05%, 0,1% y 0,5%, en el método CT. Las unidades de m son $\text{píxel}^2/\text{MCS}$ y de f_{bg} es $1/\text{píxel}^2$.

Por lo tanto, vemos que m varía como:

$$m = h_1 f_{bg} + h_2 \quad (8)$$

donde $h_1 = (423 \pm 10) \text{ píxel}^4/\text{MCS}$ y $h_2 = (20 \pm 5) \text{ píxel}^2/\text{MCS}$ y ambos parámetros dependen de Q . Eso nos da una f_{bg} límite de $0,05 \text{ } 1/\text{píxel}^2$ a partir de la cual m es cero o donde el área no disminuye más. Esa fracción límite representa una partícula en un área cuadrada de aproximadamente 4 píxel de lado, y la misma coincide con la f_{bg} obtenida cuando las partículas de lado 3 píxeles se acercan a la mínima distancia de 1 píxel dada por el programa.

IV. CONCLUSIONES

En este trabajo podemos concluir lo siguiente:

- 1) Las partículas móviles, en general, frenan el crecimiento de grano.
- 2) No todos los mecanismos de movimiento de las partículas son equivalentes y en estos dos casos (métodos NC y CT) presentados en este trabajo los resultados son bastante distintos.

- 3) Las partículas movidas por el método CT no abandonan el BG, van aumentando su concentración y, para un cierto tamaño del BG, las mismas están tan cerca que la migración se detiene.
- 4) El valor de m depende de f_{bg} , y esto sugiere que el movimiento del BG está regulado por la densidad de partículas en el BG.
- 5) No todas las partículas sobre el BG eran movidas en un MCS. En la simulación se fijó una probabilidad P , dada por la fórmula (7) con $\Delta W = Q$ y $Q = 1,6KT$. Si Q aumenta significa que aumenta la cantidad de partículas inmóviles en un MCS. Si Q disminuye las partículas móviles aumentan en un MCS. El modelo aplicado en este trabajo permite, de esta manera, modificar la movilidad promedio de las partículas en el BG involucradas en la migración del BG.

Futuras simulaciones con diferentes tamaños de partículas y diferentes Q deben realizarse para estudiar más en detalle estos mecanismos de movimiento de partículas.

AGRADECIMIENTOS:

Este trabajo fue posible gracias a la colaboración de José Barcelona^a y del apoyo económico de SeCyT (Secretaría de Ciencia y técnica de la UNC).

REFERENCIAS:

1. Kim, Y.J., Hwang, S.K., Kim, M.H., Kwun, S.I., & Chae, S.W., "Three-dimensional Monte-Carlo simulation of grain growth using triangular lattice", *Materials Science and Engineering A*, 408 (1-2), 110-120 (2005).
2. Holm, E.A., & Corbett C.B., "The computer simulation of microstructural evolution" *Jom* 53 (9), 20-23 (2001).
3. Yu, Q., & Esche, S.K., "A Monte Carlo algorithm for single phase normal grain growth with improved accuracy and efficiency", *Computational Materials Science*, 27 (3), 259-270 (2003).
4. Raabe, D., "Scaling Monte Carlo kinetics of the Potts model using rate theory", *Acta Materialia*, 48 (7), 1617-1628 (2000).
5. Di Prinzio, C.L., Druetta, E., & Nasello, O.B., "More about Zener drag studies with Monte Carlo simulations", *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, 21(2), 025007 (2013).

6. Choudhury, S., & Jayaganthan, R., "Monte Carlo simulation of grain growth in 2D and 3D bicrystals with mobile and immobile impurities", *Materials Chemistry and Physics*, 109 (2-3), 325-333 (2008).
7. Barnes, P.R., & Wolff, E.W. "Distribution of soluble impurities in cold glacial ice", *Journal of Glaciology*, 50 (170), 311-324 (2004).
8. Anderson, M.P., Srolovitz, D.J., Grest, G.S., & Sahni, P.S., "Computer simulation of grain growth— I. Kinetics", *Acta metallurgica*, 32 (5), 783-791 (1984).
9. Srolovitz, D.J., Anderson, M.P., Sahni, P.S., & Grest, G.S., "Computer simulation of grain growth— II. Grain size distribution, topology, and local dynamics", *Acta metallurgica*, 32 (5), 793-802 (1984).
10. Achával, P.I., & Di Prinzio, C.L., "Three-dimensional grain growth with mobile particles using Monte Carlo method", *Matéria (Rio de Janeiro)*, 23 (2), (2018).