

C.N.E.A. Biblioteca	
ARCHIVO PUBLICACIONES	
NO 1	AÑO 1974

04.74.16

IN-6-148

COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA,
DEPENDIENTE DE LA PRESIDENCIA DE LA NACION
AREA DE INVESTIGACION, DESARROLLO Y SERVICIOS

SIMULACION POR COMPUTADORA DE DEFECTOS MICROESTRUCTURALES

E.J. SAVINO

VI Jornadas Metalúrgicas
I Jornadas Latinoamericanas
Sociedad Argentina de Metales
Buenos Aires, 20-26 de Octubre 1974

Departamento de Metalurgia
Buenos Aires-Argentina
1974

SIMULACION POR COMPUTADORA DE DEFECTOS MICROESTRUCTURALES

E. J. SAVINO
Dpto. de Metalurgia
Comisión Nacional de Energía Atómica,
Argentina

RESUMEN

Se describe la técnica de simulación por computadora de defectos microestructurales en redes discretas, determinándose en que casos la aproximación elástica anisotrópica resulta incompatible con los resultados experimentales, siendo indispensable incluir en los modelos utilizados para la interpretación de estos el carácter discreto de la red.

Se resumen aplicaciones de la técnica mencionada a la descripción de la morfología de dislocaciones extendidas y agregados planos de vacancias en cobre. El modelo desarrollado se ha comparado con observaciones de microscopía electrónica, obteniéndose un valor de la energía de falla de apilamiento del cobre superior a los 70 ergs/cm². Además se halla que aglomerados de seis o más vacancias colapsan a circuitos de dislocaciones o tetraedros de falla de apilamiento por el mecanismo de Silcox-Hirsch. Estas observaciones fundamentan la teoría que estos defectos nucleán directamente en la cascada de irradiación neutrónica.

INTRODUCCION

Se desea en el presente trabajo resumir el desarrollo alcanzado utilizando técnicas de simulación por computadora en cálculos de la estructura de defectos microestructurales y la necesidad de recurrir a ésta u otras sofisticadas técnicas de cálculo que modelan el carácter discreto de la red cristalina para cuantificar algunos fenómenos de importancia tecnológica. Los resultados que se presentarán como ejemplos concretos corresponden al desarrollo del tema realizado en los dos últimos años por el autor en colaboración con miembros del grupo de Radiation Damage de la Theoretical Physics Division, Harwell (1, 2, 3).

Las características tecnológicas de un material se hallan esencialmente determinadas por su población y distribución de defectos microestructurales; por ello el esfuerzo realizado en las últimas tres décadas para determinar la distorsión, energía y cinética de estos defectos. Esto implica desarrollar modelos estáticos y dinámicos de los mismos. Históricamente la primera aproximación fue considerar el defecto inmerso en un medio continuo elástico (4). Esto, como veremos más adelante, implica

aceptar la validez de la ley de Hooke excepto en ciertos puntos singulares; resulta, por lo tanto, en una aproximación armónica de la energía del medio, o sea se admite una dependencia cuadrática de ésta con los desplazamientos. Esta aproximación es válida para describir propiedades relacionadas al campo de largo alcance de los defectos, pero irreal para considerar efectos de corto alcance, o sea en posiciones cercanas a los puntos singulares del continuo. Por ejemplo una discusión sobre la movilidad de una dislocación requiere un modelo discreto y admitir una ley de interacción atómica no lineal. A lo largo del trabajo describiremos la técnica de simulación por computadora desarrollada para el estudio de estos efectos de corto alcance.

1. MODELOS ELASTICOS.

En la literatura elemental usualmente se clasifica los defectos según su estructura y alcance de su campo de distorsión en: puntuales, lineales, superficiales y volumétricos (5). A los efectos de este trabajo, es más correcto dividirlos en defectos "potenciales", cuya distorsión puede hallarse sólo a través de la variación de la energía potencial del sistema, y defectos "topológicos" o "estructurales", los cuales implican no sólo una variación de la energía potencial sino además la introducción de discontinuidades en el campo de desplazamiento. Un defecto puntual (vacancia, intersticial, impureza) pertenece a la clase de defectos potenciales. Su introducción en la red puede simularse a través de un conjunto de fuerzas externas aplicadas \underline{F} (aquellas necesarias para "hacer lugar" al defecto, figura 1). El campo desplazamiento se halla minimizando la energía potencial del sistema:

$$E = E_0 + \sum_l \underline{F}_l \cdot \underline{u}(l) + 1/2 \sum_{\substack{l, l' \\ \alpha, \alpha'}} \Phi_{\alpha\beta}(l, l') u_\alpha(l) u_\beta(l') + \dots \quad (1)$$

Donde:

E_0 = energía potencial del cristal perfecto

l = indica átomo ele del cristal perfecto

\underline{F} = fuerzas en los átomos de la red debida a la presencia del defecto

$\underline{u}(l)$ = desplazamiento del átomo l respecto a su posición en el cristal perfecto

$$\Phi_{\alpha\beta}(l, l') = \partial^2 E / \partial u_{\alpha}(l) \partial u_{\beta}(l') \Big|_{\underline{u}=0} \quad (2)$$

Cortar el desarrollo en serie en el término de segundo orden constituye la llamada aproximación armónica. Los desplazamientos resultan de la ecuación:

$$u_{\alpha}(l) = \Phi_{\alpha\beta}^{-1}(l, l') F_{\beta}(l') \quad (3)$$

Modelos basados en la teoría continua de elasticidad (5, 6) suman a esta aproximación la de compatibilidad elástica. En estos (3) se expresa a través de la ley de Hooke:

$$\sigma_{ij} = c_{ijkl} \epsilon_{kl} \quad (4)$$

σ_{ij} : tensión; c_{ijkl} : ctes. elásticas; ϵ_{kl} : distorsión elástica, y la distorsión se halla utilizando la ecuación de equilibrio:

$$\sigma_{ij,j} = F_i \quad (5)$$

$$\epsilon_{ij} = \partial / \partial x_j$$

y la de compatibilidad:

$$e_{i,mp} = \begin{cases} e_{imp} e_{jnq} \epsilon_{mn,pq} = 0 \\ 0; \text{ si } i = m \text{ "o"} m = p \text{ "o"} i = p \\ 1; \text{ si } imp \text{ conmutación par de } 1, 2, 3 \\ -1; \text{ si } imp \text{ conmutación impar de } 1, 2, 3 \end{cases} \quad (6)$$

Las fuerzas se consideran aplicadas en un punto singular del continuo. Resultando en general para un defecto puntual:

$$F_i = \sum_j G_{ij} \partial / \partial x_j (\delta(r)) \quad (7)$$

G: tensor de distorsión característica del defecto
 δ : delta de Dirac

Para modelar un defecto topológico como una dislocación se supone:

$$F = 0. \quad (8)$$

y la existencia de una superficie S de discontinuidad rodeada por la línea de dislocación, tal que:

$$[\sigma_{ij} n_j]_S = 0$$

$$[u]_S = 0$$

Donde:

$[]_S$: discontinuidad al cruzar la superficie S

\underline{n} : vector normal a S

\underline{b} : vector de Burgers de la dislocación

Además de la condición de contorno:

$$u_j(\underline{x}) \rightarrow 0 \quad (10)$$

$$x \rightarrow \infty$$

Analicemos las aproximaciones utilizadas en el modelo continuo elástico. La aproximación de continuidad implica considerar despreciables distancias del orden del parámetro de la red. O sea del espectro fonónico del cristal considerar sólo aquellos $\underline{k} \rightarrow 0$. Admitir la aproximación armónica implica que las derivadas de orden superior a dos en la energía son despreciables. O sea se halla un mínimo de la energía bajo esta hipótesis o lo que es equivalente la validez de la ley de Hooké. Evidentemente estas aproximaciones van a dejar de ser

válidas cuando nos hallemos en un entorno del orden de pocas distancias atómicas del núcleo del defecto puntual o la línea de dislocación. Cuando se aplica este modelo a estas distancias generalmente se obtienen tensiones superiores a la de fluencia del material.

2. TECNICA DE SIMULACION POR COMPUTADORA.

De acuerdo a lo enunciado en el párrafo anterior si nos interesa estudiar propiedades de defectos vinculadas con el así llamado "campo de corto alcance del defecto" la aproximación del continuo elástico deja de ser válida. Ya mencionamos en la introducción como ejemplo de propiedades que necesitan ser modeladas en una aproximación discreta la de movilidad de la dislocación, otros ejemplos son problemas de nucleación, interacción, dislocación defecto puntual, etc.

Una técnica desarrollada en los últimos años para incorporar al cálculo el carácter anarmónico de la distorsión en el núcleo del defecto y el discreto de la red consiste en la simulación por computadora. Se divide el cristal a simular en dos regiones; una central o región I, anarmónica, donde se ubica el núcleo del defecto y una región II rodeando a la anterior, armónica. Tanto la región I como la II son discretas, los átomos se ubican por sus coordenadas atómicas. Estos "átomos" de la región I interactúan entre sí y con los de la región II a través de un potencial interatómico. Los datos de entrada al código de cálculo son en general este potencial, la estructura cristalina de la red en la cual se simula el defecto y la expresión del campo de desplazamiento generado por este en un medio elástico, que se supone válido en la región II. Las dimensiones de la región I deben determinarse para cada defecto por el buen ajuste de los desplazamientos en la interfase I-II. Las dimensiones de la región II se hallan determinadas por el alcance del potencial de interacción. El desplazamiento atómico en la zona del núcleo del defecto se halla minimizando numéricamente (o sea incorporando todos los términos significativos del desarrollo en serie) la energía potencial de la zona I y de interacción I-II, determinadas por el potencial interatómico. Históricamente (7, 8) estos cálculos representaban un desafío desde el punto de vista de convergencia y minimización numérica. A partir del trabajo de Norgett, Perrin y Savino (1) se demuestra que el método de los gradientes conjugados de minimización de funciones de "n" variables desarrollado por Fletcher (9) supera estas dificultades, concentrándose el problema en la validez física del cálculo.

La principal incerteza en estos cálculos reside en la elección del potencial. Generalmente se adopta una de dos aproximaciones posibles (10): i) se ajusta una forma deducida teóricamente del mismo a un conjunto de valores experimentales, ii) se halla la expresión numérica

más tratable de éste que ajuste los valores experimentales. Esto se debe a la imposibilidad actual de deducir un potencial de interacción a partir de primeros principios (las aproximaciones en este sentido que parecen más próximas de rendir resultados son utilizando teoría de pseudopotenciales). Es imprescindible que el potencial elegido conserve la simetría y estabilidad de la red y sea invariante frente a translaciones del cuerpo rígido y rotaciones.

3. CALCULOS EN COBRE.

3.1. Potencial de interacción.

Englert et al. (II) desarrollaron, en el segundo de los esquemas mencionados, un potencial de pares fuera de equilibrio (para permitir el apartamiento de las condiciones de Cauchy) compuesto de curvas cúbicas acopladas y con un rango de interacción hasta terceros vecinos. Este potencial ajusta los siguientes parámetros:

i) Para desplazamientos menores que primer vecino un potencial de Born Mayer de acuerdo a datos de daño por radiación.

ii) La aplicación de este potencial más condiciones de contorno que mantienen el conjunto en compresión determina la estabilidad de una red cúbica centrada en las caras con el parámetro del cobre = 3.608 Å

iii) Las derivadas del potencial ajustan a las constantes elásticas y datos de dispersión fonónica (12).

iv) La energía de formación de una vacancia resulta de 1.14 eV.

v) El valor de la energía de falla de apilamiento, que resulta del incremento de energía de una red simulada en la computadora con una falla de apilamiento infinita respecto a una perfecta, es de 70 ergs/cm².

Con este potencial, utilizando la técnica mencionada, podemos atacar todos aquellos problemas relacionados con la estructura del núcleo de un defecto en cobre.

3.2. Dislocaciones deslizantes disociadas en parciales de Shockley.

Es sabido que gran cantidad de las diferencias tecnológicas entre materiales de estructura cúbica centrada en las caras se hallan vinculadas a la energía de falla del material (por ejemplo: temperatura de recristalización, tensión de comienzo de la etapa III en la curva de deformación, etc.). Por ello gran cantidad de esfuerzo teórico-experimental se ha

dedicado a la determinación de valores y significado físico de ésta. El cobre, dado que es el material en que se posee mayor información experimental, resulta interesante de ser estudiado desde este punto de vista y lo ha sido intensamente. En realidad gran parte de la importancia tecnológica que posee el valor de la energía de falla se haya vinculada a que resulta precisamente esta energía la que balancea la energía elástica que gana el cristal a través de la disociación de la dislocación deslizante de vector de Burgers $a/2 [110]$ en :

$$a/2 [\bar{1}10] \longrightarrow a/6 [\bar{1}2\bar{1}] + a/6 [\bar{2}11] \quad (11)$$

determinando la separación final en la configuración resultante.

Durante muchos años se realizaron esfuerzos para lograr "ver" esta disociación en cobre. Recién en 1970 al unísono los grupos de microscopía electrónica de Oxford y Cambridge publican la concreción de varios años de labor con la obtención de imágenes a través de la técnica de microscopía electrónica de haz débil que muestra la disociación mencionada (13, 14). El problema con que tropieza la interpretación de estas imágenes es que las mismas dependen de la configuración del núcleo de la dislocación, o sea hay que poseer un modelo de éste. Además el valor de la energía de falla de apilamiento deducido a partir de la separación entre las parciales depende de la fuerza entre éstas. Esta separación es de pocas distancias atómicas; o sea, por lo discutido anteriormente, no es válido aplicar la teoría elástica. Más aún, cuando ésta fue aplicada en los trabajos mencionados se halla que conclusiones obtenidas por la misma contradicen la información experimental. Por ejemplo el cociente entre la separación de una dislocación de borde y una de hélice, que sólo depende del campo de distorsión creado por el defecto y no del valor de la energía de falla, resulta utilizando la teoría elástica en un medio anisotrópico:

$$\delta_{\text{borde}} / \delta_{\text{hélice}} \Big|_{\text{elástico}} = 3.2 \quad (12)$$

De los resultados experimentales, utilizando también esta teoría para interpretar las imágenes obtenidas, resulta:

$$\delta_{\text{borde}} / \delta_{\text{hélice}} \Big|_{\text{experimental}} = 2.1 \quad (13)$$

Es por lo tanto indispensable utilizar una teoría diferente a la elástica para la interpretación de estas experiencias.

Utilizando el potencial mencionado se simula en la computadora la configuración de dislocaciones infinitas. La región I consta de aproximadamente 1.000 átomos y el carácter infinito de la dislocación se obtiene a través de condiciones de contorno periódicas en la dirección de la línea de la dislocación.

El esquema de cálculo es el siguiente: se impone como condición inicial el desplazamiento elástico anisotrópico correspondiente a dos dislocaciones parciales con una separación arbitraria, se minimiza la energía de la región I y de interacción I-II variando la posición de los átomos en I, se ajusta la solución elástica en II a la configuración de I determinando una nueva separación entre parciales, iterando luego el cálculo sobre I y II hasta que haya un buen ajuste entre la solución elástica de II y la discreta de I.

Las configuraciones obtenidas con esta técnica se esquetizan en las figuras 2, 3, 4, 5. Destacándose en la 5 la diferencia con la distorsión en la zona del núcleo si se supone la validez de la solución elástica en ésta. La separación entre las dislocaciones parciales correspondientes a una dislocación de borde es de $38 \pm 6 \text{ \AA}$ y $18 \pm 6 \text{ \AA}$ entre las correspondientes a la de hélice. El cociente entre éstas resulta entonces:

$$\delta_{\text{borde}} / \delta_{\text{hélice}} \quad | \quad \text{simulado} = 2.2. \quad (14)$$

Este resultado coincide con el deducido de las mediciones de microscopía electrónica. Debemos recordar, sin embargo, que en la deducción de éste último a partir de los valores experimentales intervino la aproximación de considerar al núcleo de la dislocación con una configuración elástica para resolver las ecuaciones de difracción del haz electrónico. Si se desea realizar un análisis totalmente auto-consistente estas deben resolverse con la configuración resultante de la simulación. Efectuado este análisis en el caso de la dislocación de borde según se describe en (2) con la aproximación columnar de Howie y Whelan (15) se obtienen los resultados resumidos en el cuadro 1. En el mismo se muestra la dependencia de la separación entre las parciales del valor de la energía de falla según se utilice el modelo discreto o el elástico y la dependencia de la separación entre los máximos de intensidad observados en microscopía electrónica con el modelo y valor de la energía de falla.

CUADRO I

Energía de falla. [ergs / cm ²]	Modelo	Separación entre las disl. parciales [Å]	Modelo	Separación entre máximos de intensidad [Å]
70	Simulación	→ 32	Simulación	→ 54 ± 4
70	Simulación	→ 32	Elástico	→ 43
70	Elástico	→ 20	Elástico	→ 35
41	Elástico	← 38	Elástico	← 47 ± 6 +

La última línea corresponde al análisis de los resultados experimentales efectuado por Stobbs y Sworn (13), el valor de 47 ± 6 es el medido por estos autores.

Analizando estos resultados se obtienen las siguientes conclusiones:

i) la separación de equilibrio de las dislocaciones parciales es mucho mayor que lo que predice la teoría elástica para un valor equivalente de la energía de falla.

ii) En los perfiles simulados de intensidad correspondientes a microscopía electrónica del haz débil de la configuración obtenida por simulación la separación de los picos de intensidad excede la separación de las parciales en 22 Å. Este valor es mucho mayor que el obtenido en un modelo elástico.

iii) El valor de la energía de falla del cobre es superior a los 70 ergs/cm².

3.3. Lazos de dislocaciones de Frank.

Experiencias de microscopía electrónica de dos haces muestra una configuración del lazo de dislocaciones de Frank en cobre que ha llevado a Wilson y Hirsch (16) y a Hauserman (17) a sugerir que el mismo se disocia a través de la reacción:



Eyre considera que esta disociación podría explicar la estabilidad de este defecto a temperaturas de 773 K (18, 19) donde su vida media sería del orden del segundo o menos.

Para estudiar estos defectos simulamos una región I con más de 5.000 átomos y estudiamos aglomerados planos de vacancias de forma triangular y hexagonal en el plano (111). En el caso de aglomerados triangulares los átomos de la región II los ubicamos en la posición de la red perfecta; en los hexagonales se les suma el desplazamiento correspondiente a un lazo de dislocación circular en un medio elástico anisotrópico (20) de igual radio que el lado del hexágono.

Es importante para comprender el mecanismo de nucleación de estos defectos en la cascada de irradiación estudiar cuando un disco de vacancias colapsa a un lazo de dislocación. Para ello simulamos agregados con orden creciente de defectos y medimos la separación entre planos (111) adyacentes al mismo. Los resultados se resumen en el cuadro II.

CUADRO II

Número de vacancias	Forma del aglomerado	Separación entre planos (II) [a]
1	-	1.136
2	-	1.088
3	Triángulo	1.109
4	Rombo	.782
6	Triángulo	.594
7	Hexágono	.614
10	Triángulo	.592
36	Triángulo	.586
37	Hexágono	.599

Vemos que aglomerados de 6 ó más vacancias colapsan a distancias del orden de la separación de la red perfecta más el relajamiento debido a la presencia de la falla de apilamiento, simulado éste en la falla infinita por Englert et al. (11). Esto demuestra que el lazo de dislocación nuclea en la misma cascada de irradiación, donde la densidad de defectos producidos es suficiente para que existan aglomerados de éste o mayor número de vacancias (21).

En los lazos triangulares estudiados, compuestos por aglomerados de hasta 36 vacancias, observamos que la configuración de equilibrio es el tetraedro de falla de apilamiento. Este puede pensarse como formado por el desplazamiento de los átomos en el interior del tetraedro formado por los planos (II) que pasan por los lados del triángulo de vacancias hacia el plano que contiene el aglomerado inicial o como el pasaje de una parcial de Shockley a lo largo de la cara del tetraedro dejando una dislocación $a/6$ (110) en la arista-mecanismo de Silcox-Hirsch (22). Las caras del tetraedro son idénticas, observándose efectos del núcleo de la dislocación y la falta de coordinación atómica en los vértices. Esta configuración se presenta en las figuras 6 y 7.

El laxo hexagonal muestra una compleja disociación similar a la propuesta en la fórmula (15) pero en diferentes planos (II) a los cuales pertenecen las aristas del hexágono. Un aspecto de la distorsión creada por esta configuración se esquematiza en la figura 8.

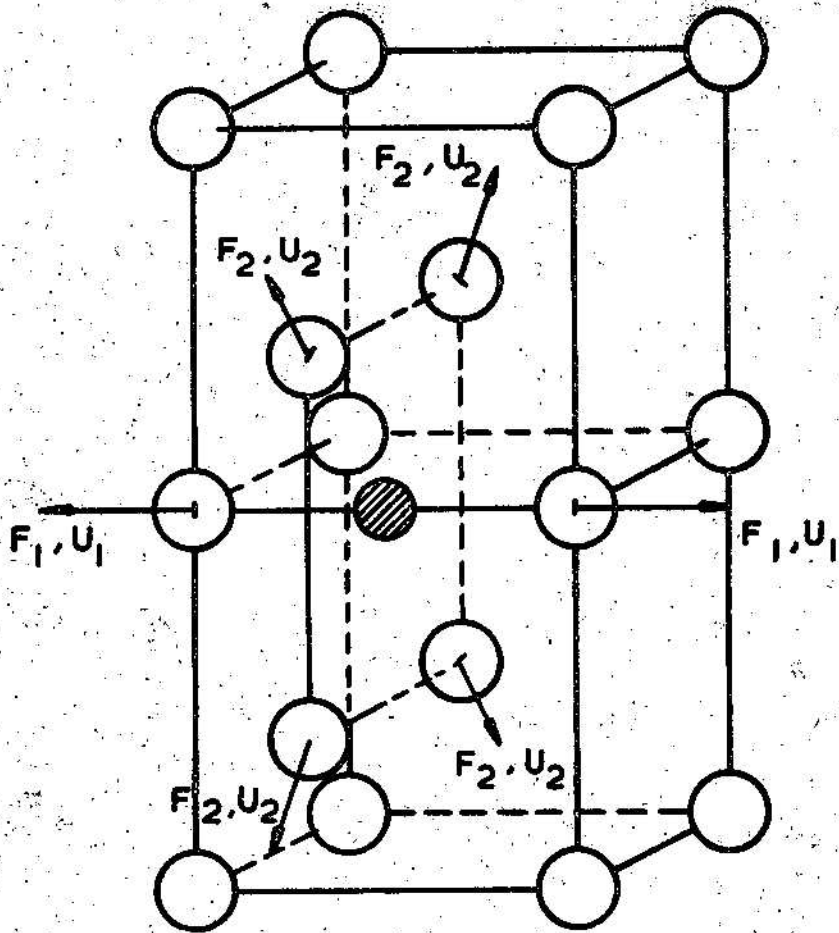
CONCLUSIONES

Se ha deseado presentar en este trabajo un resumen de la técnica de simulación de defectos por computadora. Primeramente se describieron los distintos tipos de defectos que pueden estudiarse por esta técnica- defectos potenciales y topológicos. Luego se destacaron las limitaciones de los modelos elásticos y la necesidad de desarrollar modelos que incluyan el carácter discreto y anarmónico de la red. El trabajo se ejemplifica con aplicaciones de la técnica realizadas en cobre.

FIGURAS

- Fig. 1:** Modelo de impureza ubicada en intersticio octaedral en un material de estructura cúbica centrada en el cuerpo.
- Fig. 2:** Configuración atómica correspondiente a la región I de una dislocación de borde simulada en cobre. Proyección en un plano (112). Los círculos tienen un diámetro igual a la mitad del tamaño atómico y se indica la posición de las parciales de Shockley.
- Fig. 3:** Idéntica configuración que en la fig. 2 proyectada en el plano (III). Los círculos tienen un tamaño igual al atómico y se presenta el plano superior y el inferior a la dislocación. Obsérvese la región de falla entre las dos dislocaciones parciales.
- Fig. 4:** Configuración correspondiente a la dislocación de hélice proyectada en el plano (III).
- Fig. 5:** Distorsión de corte (du_x / dz , $X = (110)$, $X = (111)$), representada como función de X a lo largo de la dislocación de borde. La línea llena corresponde al modelo atómico, la punteada al elástico. a) Distorsión entre planos en la zona de tensión respecto al plano de deslizamiento; b) en la zona de compresión.
- Fig. 6:** Configuración atómica de un tetraedro de falla de apilamiento.
 6a) Orientación del tetraedro respecto a los ejes cúbicos.
 6b) Tetraedro extendido.
 6c) Configuración atómica de las caras en el tetraedro extendido. Círculos mayores corresponden a átomos afuera del tetraedro, menores en las caras. U: indica que se ha perdido la configuración de falla de apilamiento.
- Fig. 7:** Cara ABC del tetraedro en el plano (III) correspondiente.
- Fig. 8a:** Romboide definido por los planos (III) que pasan a través de las aristas de un lazo de dislocación (III) hexagonal.
 8b) Desplazamiento relativo de los átomos en la dirección 112 a lo largo de la cara ACBD.
 8c) Los desplazamientos de 8b) representados en la dirección AB.

Figura 1



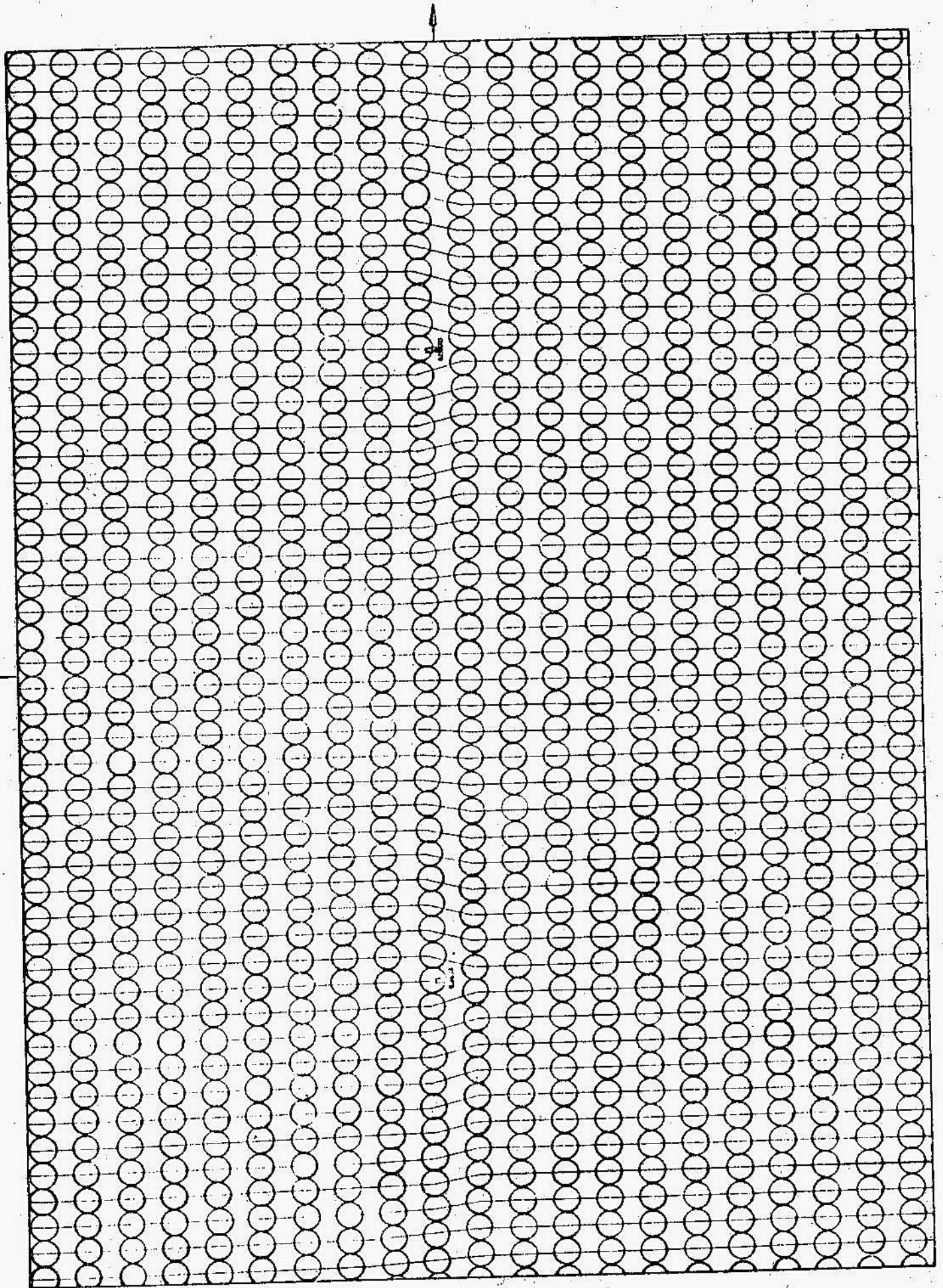
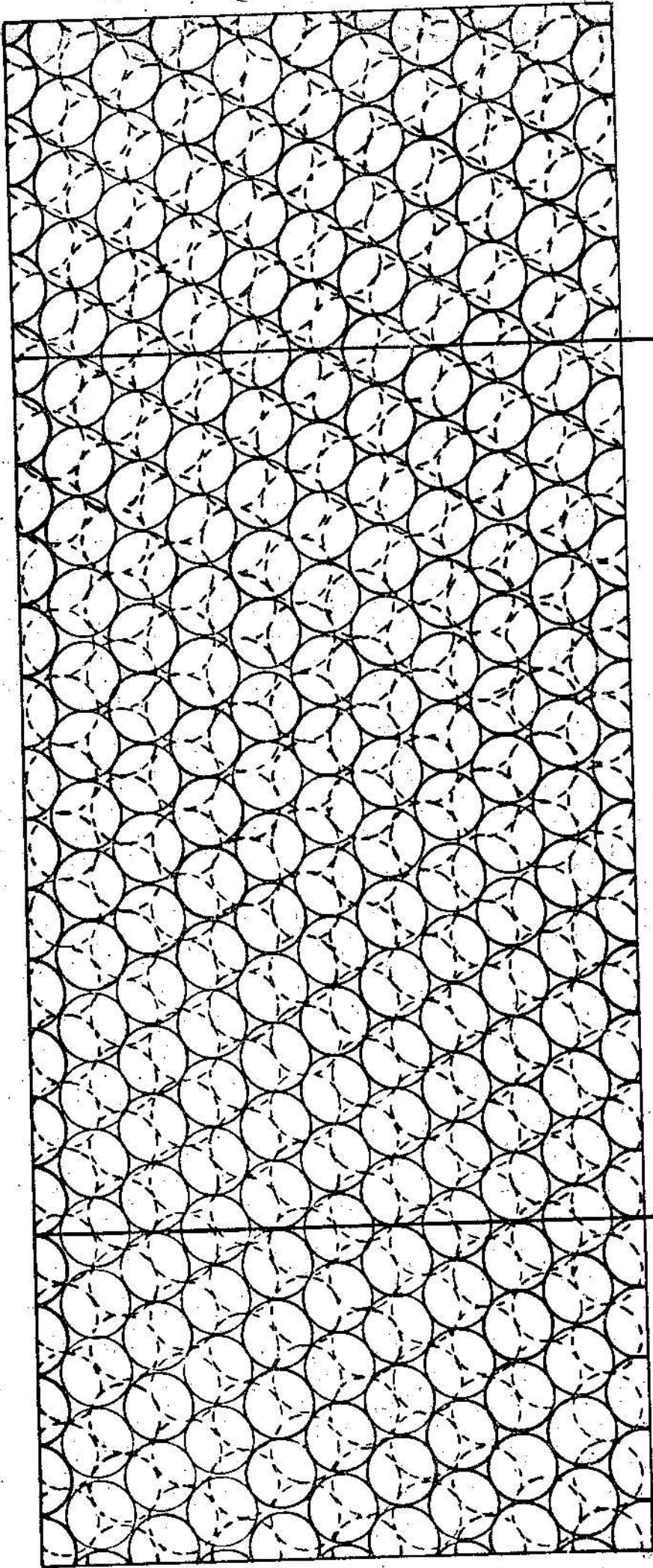


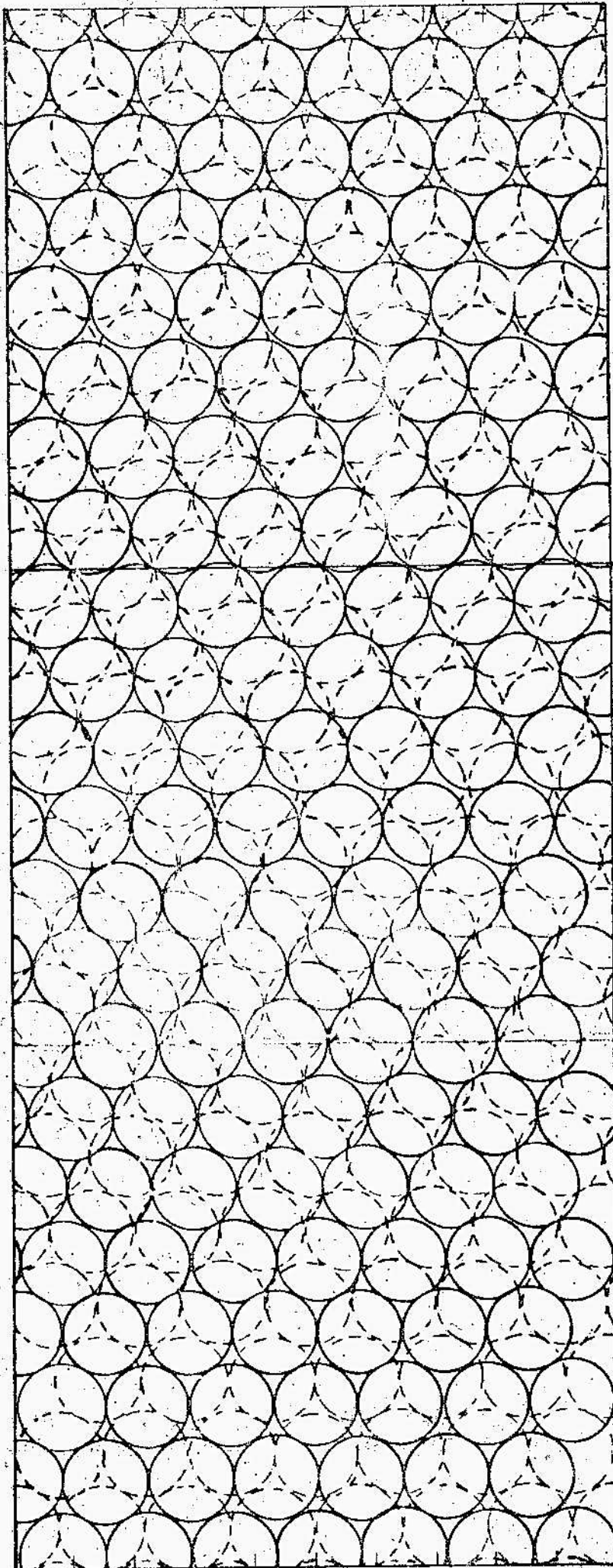
Figura 2



RIGHT HAND
PARTIAL

LEFT HAND
PARTIAL

Figura 3



RIGHT HAND
PARTIAL

LEFT HAND
PARTIAL

Figura 4

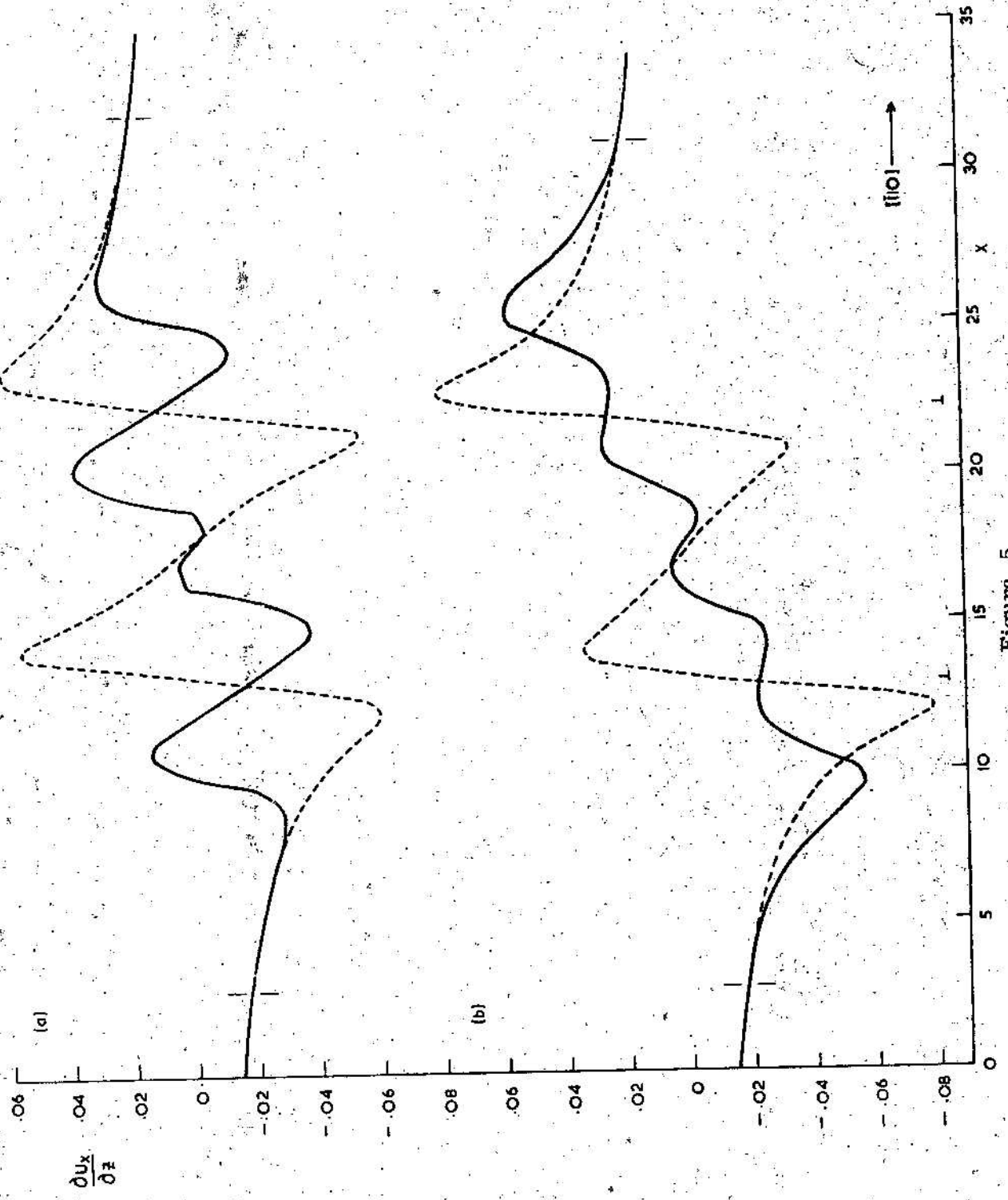


Figura 5

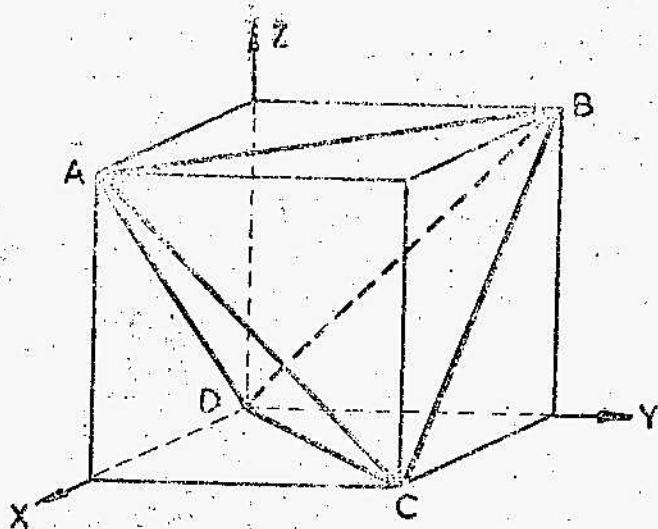


Figura 6a

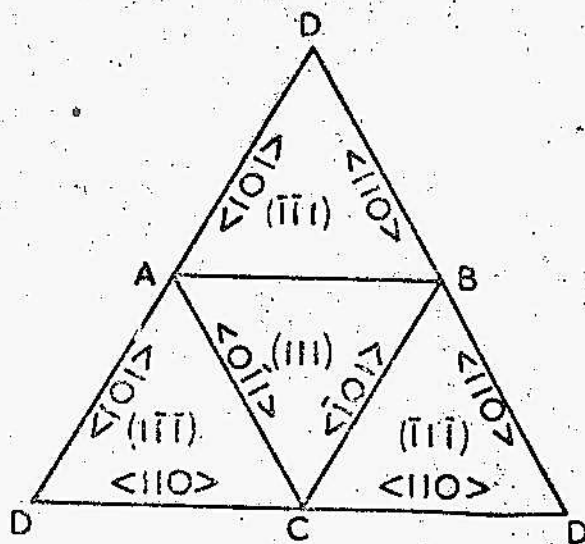


Figura 6b

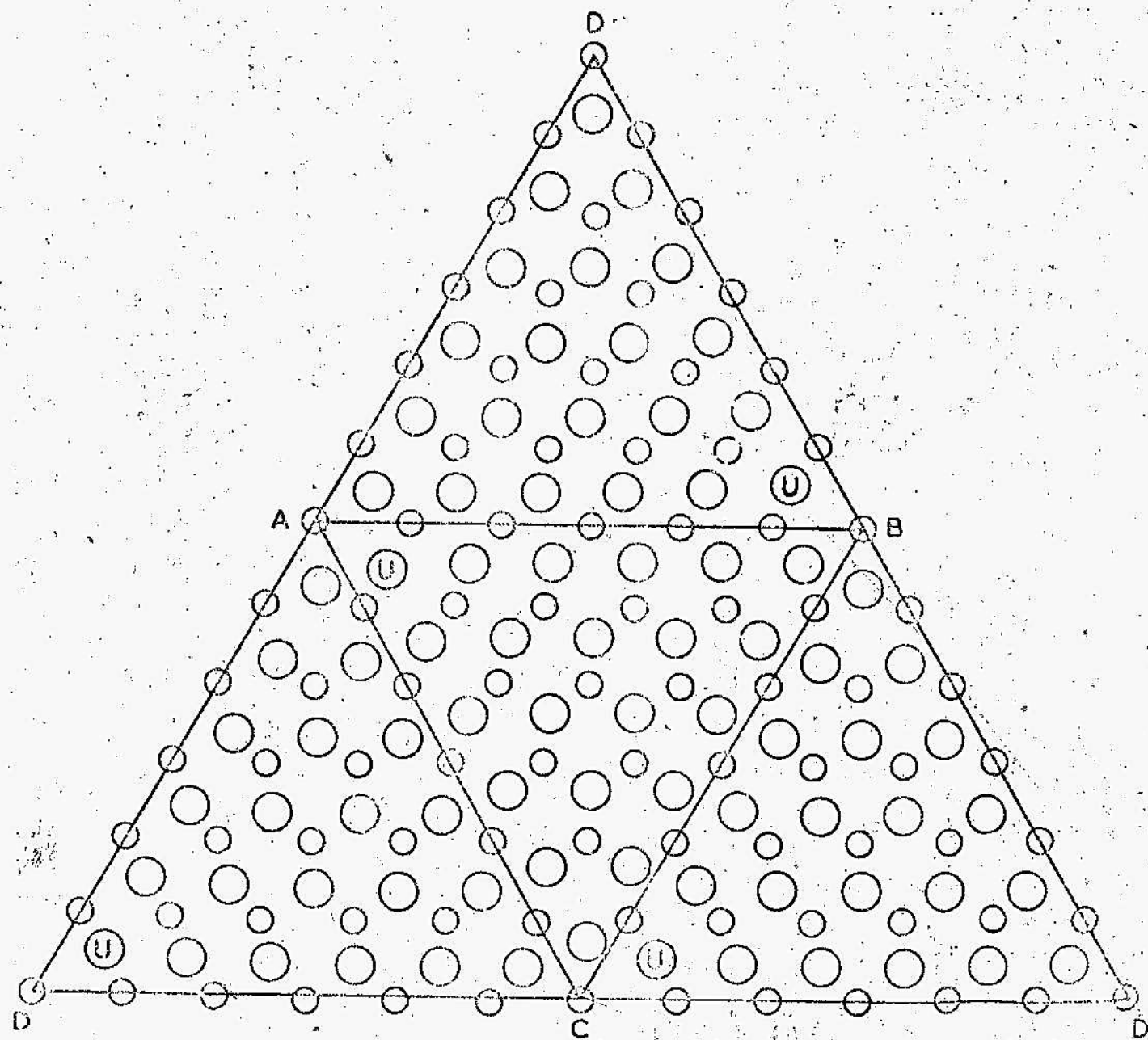


Figura 6c

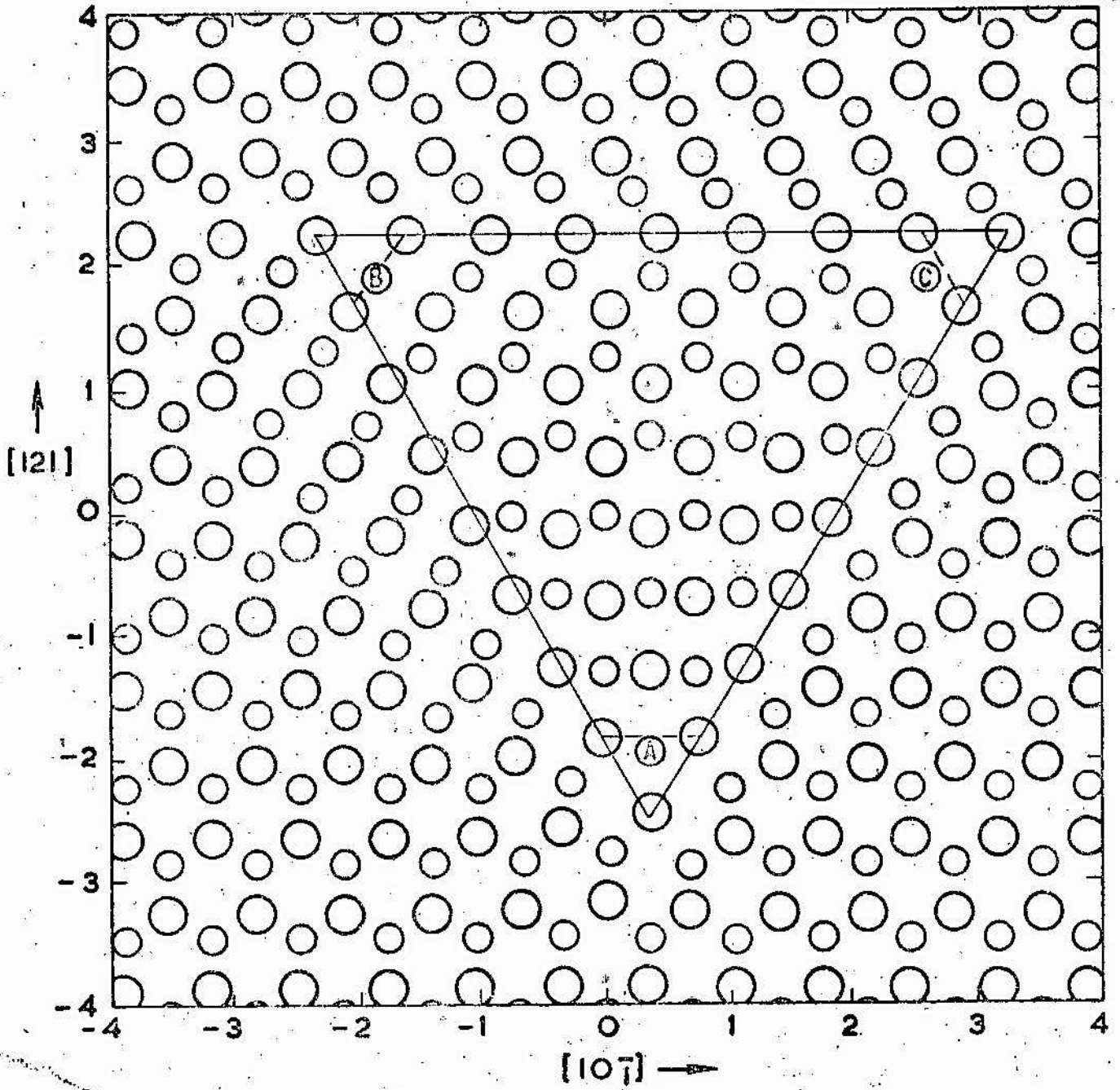


Figura 7

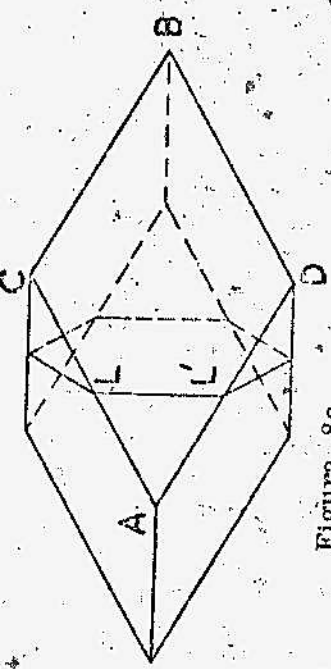


Figure 8a

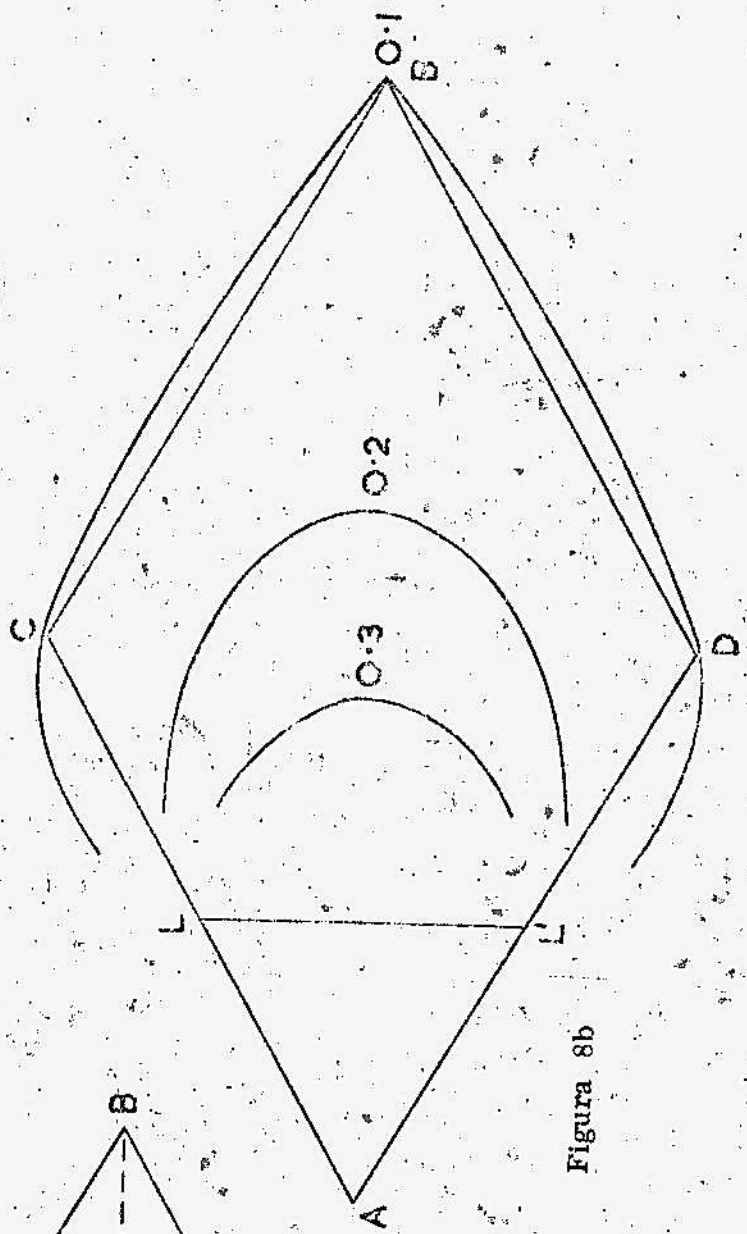


Figure 8b

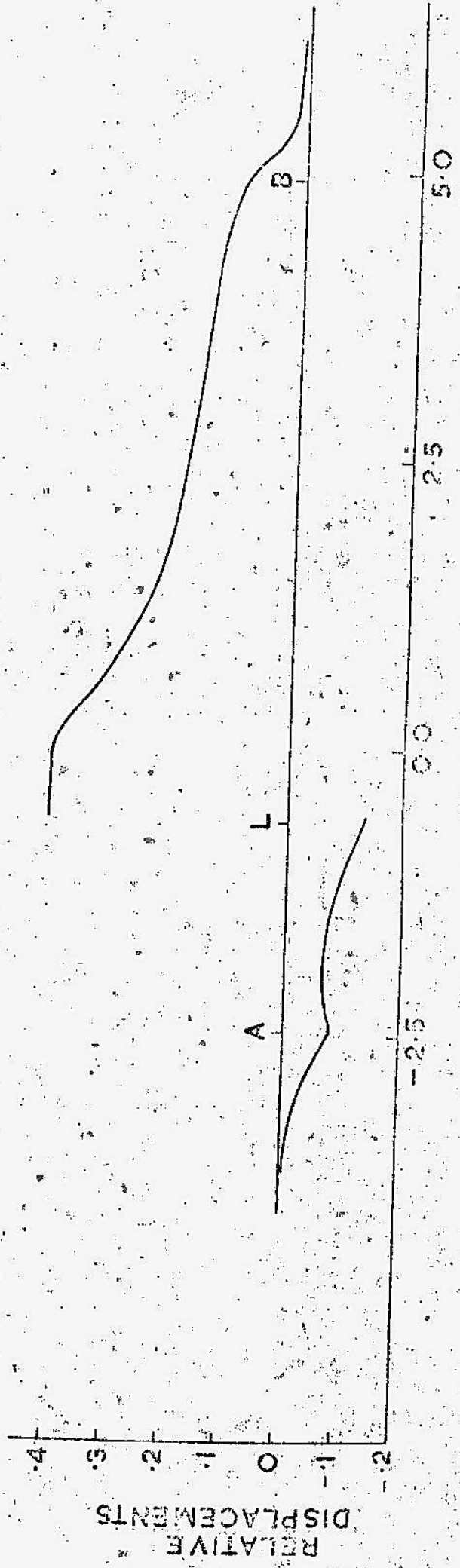


Figure 8c