

Sistema granular bajo un campo magnético alternante como modelo para el estudio de procesos de agregación y transiciones de fase

Granular system under an alternating magnetic field as a model for the study of aggregation and phase transition processes

M.A. Escobar-López ^{a,*}, F. Donado ^a

^aÁrea Académica de Matemáticas y Física, Universidad Autónoma del Estado de Hidalgo, 42184, Mineral de la Reforma, Hidalgo, México.

Resumen

En este trabajo se presenta una revisión de las contribuciones al estudio de los materiales, específicamente de los procesos de agregación y de las transiciones de fase, mediante un sistema granular fluidizado por campos magnéticos alternantes. Durante la última década, este sistema ha demostrado ser útil como modelo experimental macroscópico para investigar procesos como la vitrificación y la cristalización, a nivel de partículas individuales. El mecanismo de fluidización induce el movimiento de las partículas, lo que permite controlar la energía mediante el campo magnético aplicado. Esta inyección continua de energía mantiene un estado estacionario que, como se ha demostrado, permite la aplicación de herramientas de mecánica estadística para caracterizar tanto la dinámica como la estructura del sistema. Este enfoque ha producido resultados que pueden extrapolarse a sistemas moleculares reales; además, la versatilidad del montaje experimental proporciona una plataforma para explorar una amplia gama de fenómenos en la física de la materia condensada blanda.

Palabras Clave:

Materia granular magnética, modelo macroscópico, transición de fase, sistemas fuera de equilibrio, materia condensada blanda.

Abstract

This paper presents a review of contributions to the study of materials, specifically aggregation processes and phase transitions, using a granular system fluidized by alternating magnetic fields. Over the last decade, this system has proven useful as a macroscopic experimental model to investigate processes such as vitrification and crystallization at the individual-particle level. The fluidization mechanism induces particle motion, enabling energy control through the applied magnetic field. This continuous energy injection maintains a steady state that demonstrably permits the application of statistical mechanics tools to characterize both the system's dynamics and structure. This approach has yielded results that can be extrapolated to real molecular systems; moreover, the versatility of the experimental setup provides a platform to explore a wide range of phenomena in soft condensed matter physics.

Keywords:

Magnetic granular matter, macroscopic model, phase transition, non-equilibrium systems, soft condensed matter.

1. Introducción

En las últimas décadas, el estudio de los sistemas granulares se ha convertido en un tema de gran relevancia para diversas disciplinas como las ciencias de los materiales, la física estadística, la geofísica y la ingeniería tecnológica. Además de sus propiedades intrínsecas, la materia granular fluidizada se ha usado como modelo para estudiar materia fuera de equilibrio y, bajo ciertas condiciones, también para estudiar estados de equilibrio termodinámico.

El estudio de los cambios estructurales y dinámicos en sistemas moleculares se ha realizado mediante diversos enfoques experimentales indirectos (Sosso, et al., 2016). No obstante,

aunque avances recientes en interferometría óptica han demostrado que es posible rastrear partículas Brownianas en confinamiento, esta técnica se limita al seguimiento de una sola partícula (Pusey, 2011). En este contexto, los modelos macroscópicos basados en coloides o en sistemas granulares surgen como una herramienta relevante para complementar los resultados experimentales actuales.

Una manera de fluidizar o termalizar los gránulos es mediante la agitación mecánica. Variando la fracción de empaquetamiento, el sistema puede comportarse como un gas, un líquido o un medio granular denso (Puglisi, et al., 2017). Los sistemas granulares vibrados están constituidos por objetos de tamaño macroscópico que se mueven a velocidades relativamente lentas, lo que facilita su observación directa. Dependiendo de varios factores, como la masa, la forma y la composición de las partículas, sus trayectorias

*Autor para la correspondencia: maria_escobar@uaeh.edu.mx

Correo electrónico: maria_escobar@uaeh.edu.mx (María de los Angeles Escobar López), fernando@uaeh.edu.mx (Fernando Donado Pérez)

pueden rastrearse mediante métodos estándar de video. Esto permite obtener información relevante a nivel de partículas individuales que podría contribuir a profundizar en la descripción de procesos como la gelación, vitrificación y cristalización (D'Anna & Gremaud, 2001) (Morales-Barrera, et al., 2018) (Daniels & Behringer, 2005). A pesar de estas ventajas, una limitación importante de estos sistemas es que no es posible estudiar de forma independiente la temperatura y la concentración de las partículas.

Una alternativa interesante a la vibración mecánica es la fluidización del sistema mediante excitaciones magnéticas, una técnica empleada con frecuencia tanto en sistemas granulares magnéticos (Yu, et al., 2019) (Adachi, et al., 2019) como en sistemas coloidales (König, et al., 2005) (Ebert, et al., 2009). En particular, Donado *et al.* reportaron el diseño, la implementación y el estudio de un sistema bidimensional (2D) no vibrado que utiliza un campo magnético oscilante como excitación externa. La forma general de la intensidad del campo magnético usado es:

$$B = B_c + B_0 \sin(2\pi ft) \quad (1)$$

donde el campo B se compone de un campo alternante B_0 responsable de la fluidización del sistema, y una parte constante, B_c , que genera una interacción repulsiva efectiva entre las partículas. La principal ventaja de esta forma de excitación frente a la agitación mecánica es que elimina la necesidad de vibrar el contenedor, ya que la excitación estocástica inducida por el campo alternante es suficiente para aportar energía cinética al sistema de manera uniforme. Además, por la naturaleza del experimento, la gravedad y la fricción no constituyen una limitación; por el contrario, son factores importantes para generar la fluidización.

El presente artículo tiene como propósito revisar las contribuciones del sistema granular magnético bajo campos alternantes para comprender los procesos de agregación, vitrificación y cristalización. En la sección 2 se describe la configuración experimental empleada y se justifica por qué el sistema propuesto es adecuado para estudiar fenómenos como los observados en los fluidos. Luego, en la sección 3, se presentan trabajos sobre la formación de estructuras vítreas y de arreglos cristalinos bajo distintos potenciales y perfiles de enfriamiento. Finalmente, se exponen las conclusiones y las perspectivas del sistema a futuro.

2. Arreglo experimental y temperatura granular

2.1. Descripción de la configuración experimental

El sistema está constituido por partículas esféricas de acero inoxidable AISI 420 grado 1000, de 1 mm de diámetro, situadas en el centro de un arreglo de bobinas tipo Helmholtz. La cantidad de partículas se ajusta según los requerimientos del experimento. Las bobinas están construidas con alambre magneto de cobre calibre 18, cuyas dimensiones se especifican en la Figura 1(a). Tanto la intensidad como la frecuencia del campo magnético se regulan mediante un programa escrito en LabVIEW. La señal de control se envía a través de una tarjeta de adquisición de datos (DAQ) a un amplificador de potencia Kepco BOP 36-6M que alimenta las bobinas. La Figura 1(c) muestra una relación lineal ($B = bV$) entre el campo magnético y el voltaje aplicado a una frecuencia de 10 Hz. Dado que hay una intersección en el origen ($a = 0$), la relación se describe mediante una proporcionalidad directa, donde la pendiente $b = 11.035 \pm 0.022$ G/V.

En este modelo, la fluidización de las partículas responde al siguiente mecanismo: debido a sus momentos magnéticos

permanentes, las esferas rotan para reorientar sus dipolos con cada oscilación vertical del campo magnético. Al alinearse nuevamente con el campo, las partículas giran sobre la superficie desplazándose en pequeños segmentos. Los sucesivos cambios de dirección del campo magnético inducen variaciones aleatorias en las trayectorias, lo que origina la fluidización (Figura 1(b)).

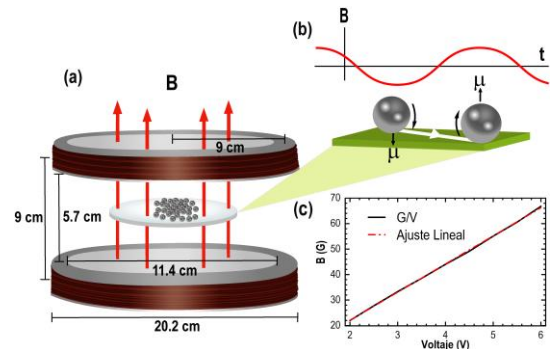


Figura 1: (a) Esquema del par de bobinas magnéticas que ilustra la posición de las partículas en la superficie y la orientación del campo magnético. (b) Señal de entrada sinusoidal que genera un campo magnético alterno. (c) Intensidad del campo magnético vs voltaje: se observa una relación de proporcionalidad directa.

2.2. Determinación de la temperatura granular del sistema

En el trabajo “Brownian motion in non-equilibrium systems and the Ornstein-Uhlenbeck stochastic process” (Donado, et al., 2017) se demostró que este sistema, a pesar de ser altamente difusivo, alcanza un estado estacionario debido a la entrada continua de energía proveniente del campo magnético alternante. En estas condiciones, el comportamiento del sistema exhibe plenamente las características que definen los procesos de Ornstein-Uhlenbeck; por lo que las partículas experimentan un movimiento de tipo Browniano, ver Figura 2(a). Al analizar las curvas del desplazamiento cuadrático medio, se demostró que las partículas presentan un régimen casi balístico a tiempos cortos y uno difusivo a tiempos largos. Este comportamiento es como el que se obtiene al resolver la ecuación de Langevin para partículas Brownianas en estado de equilibrio térmico. Se observa que, al aumentar el número de partículas, la parte balística disminuye y la parte difusiva aumenta (ver Figura 2(b)). El resultado principal de este estudio es que, en el marco conceptual de la mecánica estadística, si se renuncia a que el sistema esté en equilibrio termodinámico y solo se impone la condición de que esté en estado estacionario, entonces se pueden emplear las herramientas de la mecánica estadística para caracterizar sistemas altamente disipativos. Comenzando por el estudio de la temperatura efectiva del sistema y su dependencia del campo magnético.

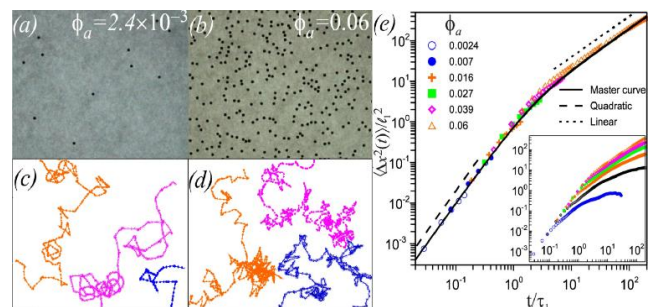


Figura 2: Para las concentraciones (a) y (b), se muestran las trayectorias típicas en (c) y (d). (e) Se grafica la sección inicial de las curvas del desplazamiento cuadrático medio en función del tiempo normalizado t/τ_1 , para distintas concentraciones. La línea sólida representa la ecuación maestra, las líneas

discontinuas, largas y cortas, corresponden a funciones cuadráticas y lineales del tiempo. El recuadro exhibe el MSD a una escala de tiempo larga. Figura adaptada de (Donado, et al., 2017) bajo la licencia CC BY 4.0.

En el trabajo “Nonvibrating granular model for a glass-forming liquid: Equilibration and aging”, se realizó un estudio de la temperatura efectiva del sistema a partir del teorema de equipartición de la energía y de la distribución de velocidades de Maxwell-Boltzmann (Tapia-Ignacio, et al., 2016). El teorema de equipartición de la energía en un sistema 2D establece que:

$$\left(\frac{1}{2}mv^2\right) = T_E \quad (2)$$

donde T_E es la temperatura efectiva; se ha asumido que $k_B = 1$, y el término de la izquierda es la energía cinética media de las partículas. Esta definición de la temperatura efectiva en términos de energía también se utilizó en otros trabajos publicados, como en la referencia (Blair, et al., 2003). También se determinó el valor de la T_E a través de la distribución de velocidades de Maxwell-Boltzmann, la cual se describe como:

$$f(v) = \frac{m}{T_E} v \exp\left(-\frac{m}{2T_E} v^2\right) \quad (3)$$

La Figura 3(b) muestra la distribución de velocidades a distintas temperaturas. A partir de un ajuste realizado a las curvas experimentales, se determinó la temperatura efectiva T_E . Por otro lado, en la Figura 3(a) se presentan los valores de la temperatura efectiva en función del campo magnético B_0 , que actúa como parámetro de control del sistema, obtenidos mediante ambos métodos. La gráfica de la Figura 3(a) muestra la equivalencia entre la temperatura obtenida a partir de la distribución de Maxwell-Boltzmann y la obtenida mediante el teorema de equipartición. Se observa que, en un amplio rango de temperaturas, la temperatura es proporcional a la amplitud del campo magnético, como lo muestra la ecuación (4) (Tapia-Ignacio, et al., 2016):

$$\left\langle \frac{dU}{dt} \right\rangle = 4mB_0f \quad (4)$$

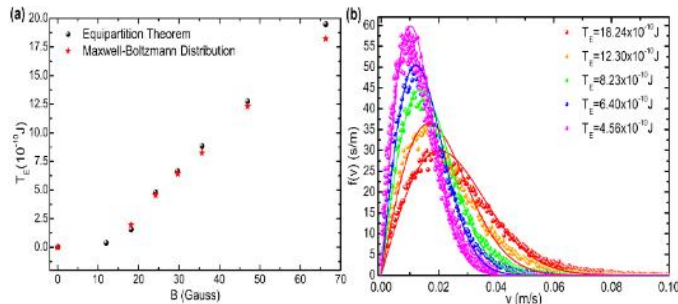


Figura 3: (a) Relación entre la temperatura efectiva (T_E) del sistema y el campo magnético. (b) Distribución de velocidades de Maxwell-Boltzmann a diferentes temperaturas. Las etiquetas indican la temperatura efectiva obtenida mediante el ajuste de los datos experimentales. Gráficas adaptadas de (Tapia-Ignacio, et al., 2016), con permiso de la American Physical Society.

3. Transición vítrea y envejecimiento

En el trabajo titulado “Nonvibrating granular model for a glass-forming liquid: Equilibration and aging” (Tapia-Ignacio, et al., 2016), se estudió el proceso de solidificación del sistema granular mediante la caracterización de sus propiedades térmicas efectivas. En particular, se analizaron el proceso de equilibrio y el envejecimiento tras un enfriamiento súbito desde un estado fluido a uno de menor temperatura. Para ello, se emplearon 1000 esferas de acero de 1 mm de diámetro, depositadas sobre un plato circular de vidrio. A temperaturas (efectivas) elevadas, las partículas poseen suficiente energía cinética como para moverse

rápidamente por toda la superficie. En este caso, la dinámica se caracteriza por interacciones de volumen excluido entre esferas duras y repulsivas de corto alcance. Al disminuir la temperatura, el movimiento se reduce y las interacciones repulsivas adquieren mayor relevancia, por lo que se establece una separación promedio entre las partículas. A temperaturas suficientemente bajas, el sistema experimenta una transición de fase, de un estado fluido a uno sólido. Esta transición es similar a la observada en sistemas moleculares denominados formadores de vidrios, por lo que se asume que es posible definir una temperatura de transición vítrea efectiva T_g .

La Figura 4(a) muestra las trayectorias de las partículas a una temperatura superior a T_g , donde predomina un comportamiento difusivo similar al de un líquido. En la Figura 4(b) se aprecian las caminatas arrestadas a una temperatura por debajo de T_g , propias del estado estacionario; es decir, se observa un comportamiento característico de un sólido. Asimismo, la Figura 4(c) describe el desplazamiento cuadrático medio para una serie de experimentos de enfriamiento súbito iniciados desde la misma temperatura efectiva. Para temperaturas finales elevadas, se nota un comportamiento casi balístico a tiempos cortos y difusivo a tiempos largos. Al reducir la temperatura final, la dinámica se ralentiza y, en un rango intermedio de temperaturas, se forma una meseta que indica el efecto llamado “jaula” observado en los formadores de vidrio. Para temperaturas aún más bajas, la meseta se prolonga, lo que hace que el tiempo de permanencia de la meseta crezca exponencialmente en un vidrio y diverja en un sólido.

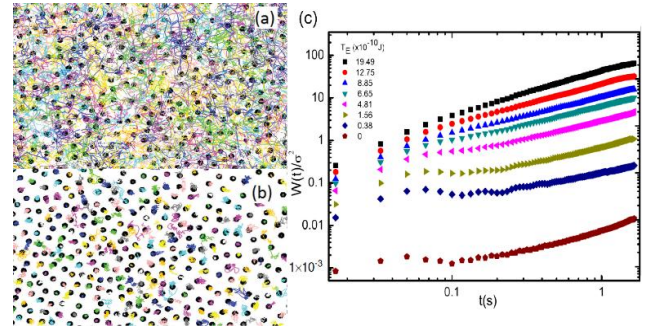


Figura 4: (a) Trayectorias difusivas a una temperatura efectiva superior a la T_g . (b) Trayectorias arrestadas de las partículas a una temperatura inferior a la T_g . (c) Curvas $W(t)$ para distintas temperaturas: el comportamiento lineal de las curvas es característico de altas temperaturas, mientras que la aparición de una meseta a bajas temperaturas indica una transición hacia un estado arrestado. Figuras adaptadas de (Tapia-Ignacio, et al., 2016), con permiso de la American Physical Society.

La Figura 5(a) muestra el coeficiente de difusión efectivo D , calculado a partir del desplazamiento cuadrático medio, considerando una ventana de tiempo posterior al régimen casi balístico. A bajas temperaturas, la difusión es prácticamente nula y se mantiene en valores mínimos dentro de un rango intermedio. Al superar un umbral crítico, D aumenta rápidamente a medida que aumenta la temperatura; esta región de rápido crecimiento se considera de alta temperatura. Se realizó un ajuste lineal a los valores de D en los regímenes de temperatura alta y baja, y luego se determinó su intersección; la temperatura correspondiente a la intersección se denominó *temperatura de transición vítrea* $T_g = 4.25 \times 10^{-10} \text{ J}$. Por otro lado, de acuerdo con la ecuación de Stokes-Einstein, en un fluido, la viscosidad efectiva es proporcional a T_E/D , donde la temperatura efectiva (T_E) en el sistema es proporcional a B_0 . La Figura 5(b) presenta una gráfica

de tipo Angell del logaritmo de la viscosidad efectiva en función del inverso de la temperatura efectiva. El comportamiento lineal observado es característico de un sistema formador de vidrio fuerte.

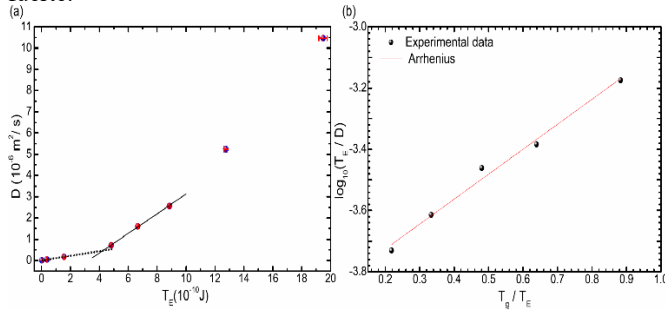


Figura 5: (a) Coeficiente de difusión medio en función de la temperatura efectiva; las líneas negras, continuas y discontinua, representan los ajustes lineales a altas y bajas temperaturas, respectivamente. (b) Disminución de la dinámica a medida que la temperatura efectiva se aproxima a la temperatura de transición vítrea. El cociente T_E/D es proporcional a la viscosidad efectiva; la línea continua muestra el ajuste a la ley de Arrhenius. Gráficas modificadas de (Tapia-Ignacio, et al., 2016), con permiso de la American Physical Society.

En la publicación “*Structure and fragility in a macroscopic model of a glass-forming liquid based on a nonvibrating granular system*” (Tapia-Ignacio, et al., 2018), se analizó el efecto de la concentración de las partículas sobre la temperatura de transición vítrea (T_g). La Figura 6 muestra el coeficiente de difusión D en función de la temperatura efectiva para distintas concentraciones de partículas. Consistente con lo reportado en (Tapia-Ignacio, et al., 2016), D permanece en valores bajos hasta que la temperatura supera un valor umbral; a partir de este umbral, D crece rápidamente conforme aumenta la temperatura.

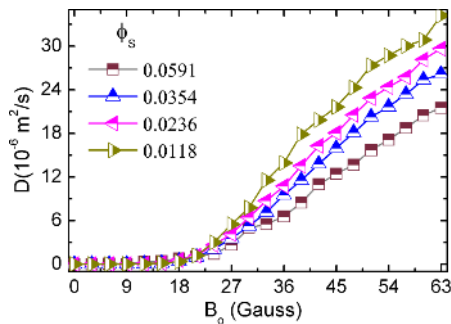


Figura 6: Coeficiente de difusión en función de la temperatura para distintas concentraciones de partículas. Gráfica obtenida de (Tapia-Ignacio, et al., 2018), con permiso de la American Physical Society.

En la Figura 7(a), se graficó $\log(B_0/D)$ en función de B_{0g}/B_0 para distintas concentraciones de partículas, donde B_{0g} es el campo magnético correspondiente a la transición vítrea. Los ajustes lineales, representados por líneas rectas, muestran la disminución de la dinámica al aproximarse a B_{0g} . A partir de estos ajustes, se calculó el índice de fragilidad (m) mediante la definición:

$$m \equiv \frac{d[\log(B_0/D)]}{d(B_{0g}/B_0)} \Big|_{B_0=B_{0g}} \quad (5)$$

De este modo, la pendiente del ajuste lineal corresponde a los valores del índice de fragilidad. Se observa que la fragilidad del sistema depende de la concentración de partículas. En la Figura 7(b) se presenta una relación fundamental entre el índice de

fragilidad y el factor de regularidad, determinado mediante polígonos de Voronoi construidos a partir de las posiciones de los vecinos más cercanos. En estudios previos (Kumar & Kumaran, 2005) (Aste & Di Matteo, 2008), se estableció que la distribución del área libre de Voronoi individual en sistemas análogos puede describirse mediante distribuciones gamma (γ) de dos y tres parámetros. La variante γ de dos parámetros viene dada por la ecuación (6):

$$f(X) = \left(\frac{\beta^{-\alpha}}{\Gamma(\alpha)}\right) X^{\alpha-1} \exp\left(-\frac{X}{\beta}\right) \quad (6)$$

donde α y β son constantes. Aquí, α representa el factor de regularidad, empleado como una medida del orden estructural. Esta gráfica constituye el resultado principal de este trabajo y demuestra que un sistema de formador de vidrio fuerte presenta un mayor orden estructural que uno frágil.

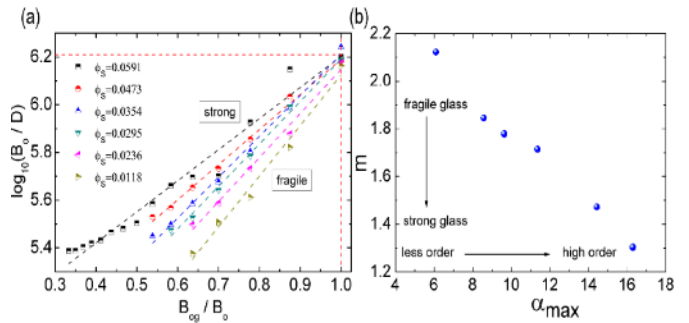


Figura 7: (a) $\log(B_0/D)$ en función de $B_0 = B_{0g}$ exhibe el mismo comportamiento que los diagramas clásicos de Angell para líquidos formadores de vidrio de diferentes fragilidades: para altas concentraciones el sistema se comporta como un líquido formador de vidrio fuerte, mientras que a bajas concentraciones se comporta como un líquido formador de vidrio frágil. (b) Índice de fragilidad en función del valor máximo del factor de regularidad en los casos analizados. Gráficas adaptadas de (Tapia-Ignacio, et al., 2018), con permiso de la American Physical Society.

3.1. Formación de regiones cristalinas

Al determinar la temperatura efectiva del sistema y observar cómo las esferas de acero pueden rodar sobre una superficie, experimentando un movimiento de tipo browniano, fue posible estudiar el proceso de vitrificación y determinar la temperatura de transición vítrea. Los resultados obtenidos son consistentes con la teoría, lo que demuestra la viabilidad del sistema para estudiar de manera sistemática los procesos de agregación. Con base en este fundamento, la presente sección analiza las condiciones espaciales, de movilidad e interacciones entre las partículas que promueven la formación de estructuras ordenadas.

En este trabajo se estudió el proceso de cristalización a temperatura constante, considerando diferentes valores de temperatura efectiva “*Crystallisation in a two-dimensional granular system at constant temperature*” (Ledesma-Motolinia, et al., 2021). Para ello, se utilizó una superficie circular plana de 70 mm de diámetro, rodeada por una pared plástica para evitar que las partículas escaparan. Se depositaron 1050 esferas de acero de 1 mm de diámetro, lo que equivale a una fracción de llenado de 19%. Los experimentos mantuvieron constantes los parámetros (temperatura y frecuencia) durante un período relativamente largo para observar si se formaban agregados o no y determinar sus características tanto dinámicas como estructurales. Al inicio,

las partículas se sometieron a un baño térmico de alta temperatura y luego esta descendió súbitamente hasta cierto valor, para mantenerse constante; bajo estas condiciones se aseguró una distribución homogénea al inicio del experimento. A partir de los resultados, se pueden diferenciar tres regiones analizadas: a alta, media y baja temperatura. En la primera región (alta temperatura), apenas surgieron agregados, pero se observó la formación de un anillo de partículas en la pared del recipiente; ver Figura 8(a). Debido a que las partículas cercanas a la pared circular sufren más colisiones desde el interior de la muestra que desde la propia pared, las interacciones entrópicas son el origen de la formación de dicho anillo. Por debajo de una temperatura umbral (segunda región), comienza a formarse un mayor número de agregados ordenados (Figura 8(b)). Una vez creados los centros de nucleación, las partículas continúan adhiriéndose a sus posiciones de mínima energía. Si se forman agregados amorfos, estos generalmente se disuelven o se reordenan hasta alcanzar, eventualmente, estados estacionarios. Finalmente, para temperaturas en la tercera región (baja temperatura), se observa la formación de agregados amorfos que ya no evolucionan hacia configuraciones de menor energía (Figura 8(c)). En este estado, las partículas ya no tienen suficiente energía para desplazarse hacia estructuras ordenadas.

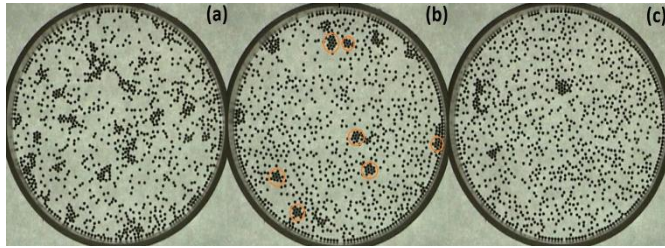


Figura 8: Configuraciones finales a diferentes amplitudes del campo magnético. De (a) a (c), las amplitudes son 24.87 G, 33.32 G y 44.09 G (de la serie 3). Las estructuras hexagonales compactas que se forman localmente a 33.32 G están delineadas en círculos naranjas. Figura adaptada de (Ledesma-Motolinía, et al., 2021) bajo la licencia CC BY 4.0.

La caracterización dinámica demostró que el coeficiente de difusión, (Figura 9(b)), obtenido a partir del desplazamiento cuadrático medio (Figura 9(a)), disminuyó con el tiempo debido a la formación y el crecimiento de cúmulos a una temperatura efectiva constante.

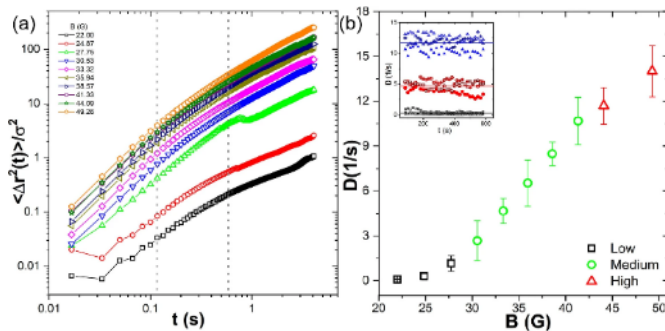


Figura 9: (a) Desplazamiento cuadrático medio en función del tiempo para varios campos magnéticos. (b) Valores promedio del coeficiente de difusión efectiva en función del campo magnético. El recuadro ilustra la similitud entre la evolución temporal de D a 24.87, 33.32 y 44.09 G. Las líneas horizontales indican el valor

promedio. Gráficas adaptadas de (Ledesma-Motolinía, et al., 2021) bajo la licencia CC BY 4.0.

Para caracterizar las propiedades estructurales de las diferentes fases de un sistema, se suele emplear la función de distribución radial (*RDF*, por sus siglas en inglés). Esta cantidad es útil cuando la fase medida es lo suficientemente grande como para obtener un promedio robusto a partir de la *RDF*. Sin embargo, cuando la muestra contiene pequeñas fracciones de una fase distinta, sus características no se reflejan con claridad en dicha función. Para estudiar agregados pequeños, se han desarrollado otras herramientas, como el parámetro orientacional de sexto orden (ψ_6), el cual se utiliza cuando los agregados tienden a organizarse en una disposición hexagonal compacta. Varios autores han empleado este parámetro para cuantificar el proceso de cristalización bidimensional (Wang, 2010) (Horn, 2013) (Li, 2020). Dado que en este sistema se formaron pequeños cristallitos, se decidió calcular el parámetro ψ_6 . Para ello, se utilizó el complemento Delaunay-Voronoi en ImageJ para generar la triangulación de Delaunay y, por consiguiente, identificar la posición de los vecinos más cercanos. Posteriormente, el parámetro ψ_6 se determinó utilizando la expresión (7):

$$\psi_6 = \frac{1}{N_i} \sum_{j=1} \exp(6\theta_{ij}) \quad (7)$$

donde la suma sobre j abarca los vecinos más cercanos N_i de esta partícula i , y θ_{ij} es el ángulo entre el eje x y el vector que apunta de i a j . El parámetro ψ_6 es un número complejo cuyo valor se aproxima a la unidad en arreglos ordenados y tiende a cero en estructuras amorfas. En la Figura 10(a), las partículas están coloreadas según el número de vecinos cercanos. El parámetro orientacional de sexto orden ψ_6 , Figura 10(b), asigna colores basados en valores cercanos a la unidad cuando las partículas formaron pequeños clústeres. Por su parte, la Figura 10(c) muestra el número de vecinos más cercanos, o número de coordinación, donde las tonalidades oscuras indican un incremento en el número de interacciones debido a la formación de agregados. Finalmente, la Figura 10(d) muestra las partículas coloreadas según el parámetro ψ_6 , el cual considera únicamente aquellas partículas que tienen vecinos acotados, permitiendo confirmar la existencia de un orden hexagonal compacto tanto orientacional como traslacional.

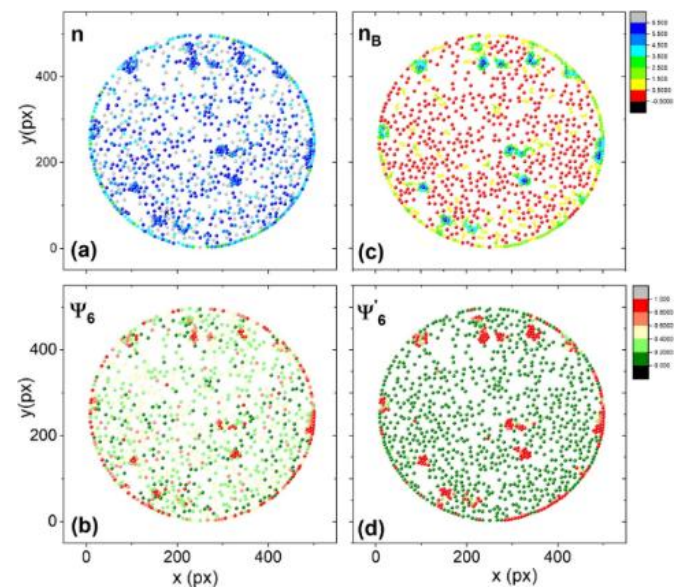


Figura 10: Configuración final de las partículas; (a) puntos coloreados según el número de sus vecinos (n), y (b) partículas coloreadas según ψ_6 . (c) Puntos coloreados según el número de vecinos enlazados n_B . (d) Puntos coloreados según el parámetro

ψ_6' para vecinos enlazados. El experimento corresponde a la temperatura efectiva de 33.32 G de la serie 3. Figura reproducida de (Ledesma-Motolinía, et al., 2021) bajo la licencia CC BY 4.0.

De este estudio se concluyó que, tras alcanzar el equilibrio energético que permite la formación de pequeños agregados desordenados, estas estructuras evolucionan y se vuelven más compactas y ordenadas en una segunda etapa. En este sentido, el crecimiento de los agregados observado en los experimentos es consistente con una teoría de nucleación en dos pasos. Asimismo, el parámetro orientacional de sexto orden (ψ_6) demostró ser una herramienta adecuada para caracterizar el orden estructural en sistemas con regiones pequeñas de una fase distinta, cuyas características no se reflejan claramente en la función de distribución radial.

En el artículo “Crystallization processes in a nonvibrating magnetic granular system with short range repulsive interaction” (Sánchez-Miranda, et al., 2019), se estudió el proceso de cristalización de un sistema de pocas partículas con repulsión efectiva, confinadas en una celda rectangular ligeramente inclinada. Los experimentos iniciaron con una temperatura efectiva alta, lo que provocó que las partículas se difundieran por toda el área de observación. El experimento terminó cuando no se observaron cambios adicionales durante un tiempo prolongado. Debido a la ligera inclinación del contenedor, la fuerza de la gravedad hace que las partículas se concentren en la parte inferior, lo que genera un gradiente de concentración. Por lo tanto, la difusión de las partículas es diferente en cada sección, por lo que, para facilitar su estudio, la celda se dividió en tres regiones: R1 en la parte inferior, R2 en el medio, R3 en la parte superior. A partir de ello, se observa que los desplazamientos de las partículas son menores en la parte inferior de la celda que en la superior. La Figura 11 presenta las configuraciones finales que alcanza el sistema después de que ha sido enfriado a diferentes tasas, junto con su correspondiente transformada rápida de Fourier *FFT*. Si el enfriamiento es rápido, la formación de configuraciones desordenadas se identifica como estructuras similares a un gel o a un vidrio. Por el contrario, si el enfriamiento es lo suficientemente lento, se observa la formación de estructuras cristalinas ordenadas. En todos los casos, se observa claramente que el fenómeno de arresto dinámico precede a la formación de estructuras sólidas.

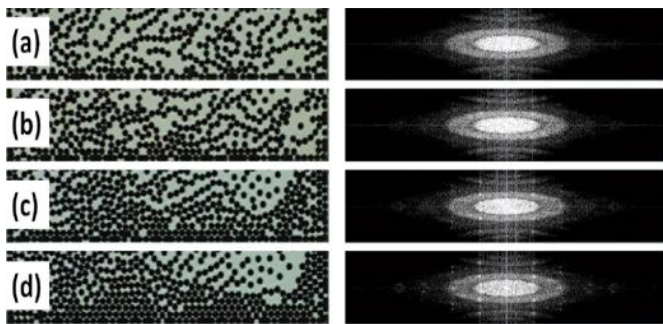


Figura 11: Configuraciones finales de partículas a diferentes tasas de enfriamiento y sus correspondientes transformadas rápidas de Fourier. De (a) a (d), las velocidades de enfriamiento son 1, 0.2, 0.06 y 0.02 G/s. A la tasa de enfriamiento más baja, se observa cristalización. Figura extraída de (Sánchez-Miranda, et al., 2019) bajo la licencia CC BY 4.0.

La Figura 12 muestra los coeficientes de difusión efectivos de las tres regiones (R1, R2 y R3). Se observa que, como era de esperar, el coeficiente de difusión de las partículas es mayor en R3 que en R2 y R1. Es interesante notar que D en R3 es constante durante la mayor parte del tiempo experimental, mientras que en

R2, D experimenta pequeños cambios. Por el contrario, en R1, D decae de manera exponencial. El comportamiento dinámico del sistema en la región donde tiene lugar la cristalización puede describirse como sigue. Debido a que la concentración de partículas es mayor en R1 que en las demás regiones, la interacción entre ellas es relativamente más fuerte. Como el sistema está en proceso de enfriamiento, la transición a un estado sólido se observa primero en esta región. Finalmente, en el monocristal obtenido se constató la formación de defectos estructurales, como vacancias y dislocaciones; véase la Figura 13.

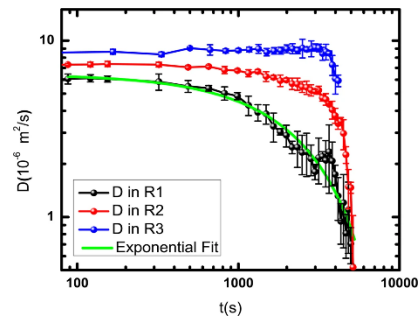


Figura 13: Evolución temporal del coeficiente de difusión efectivo en las tres regiones. Se muestra un ajuste a una función exponencial decreciente en R1 (línea verde). Gráfica extraída de (Sánchez-Miranda, et al., 2019) bajo la licencia CC BY 4.0.

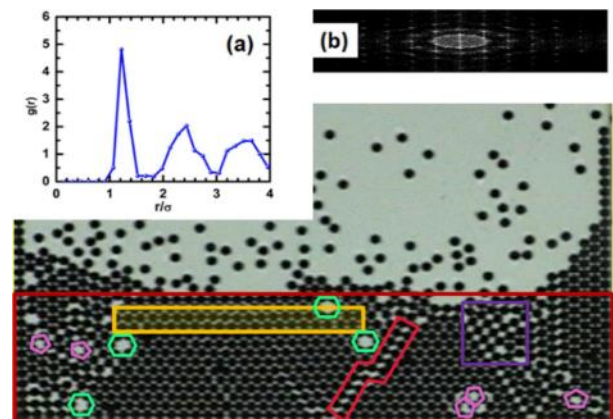


Figura 13: La imagen muestra que, experimentalmente, se obtiene un cristal grande cuando la concentración de partículas se mantiene constante en la región no consolidada y la temperatura efectiva se mantiene en su valor crítico. Se ha resaltado una dislocación en rojo y una región cuadrática en púrpura. Las vacantes hexagonales están marcadas en verde y las pentagonales en rosa. En la imagen (a) se muestra la función de distribución radial y, en (b), la transformada rápida de Fourier. Figura reproducida de (Sánchez-Miranda, et al., 2019) bajo la licencia CC BY 4.0.

3.2. Formación de monocristales

En el trabajo “Glass- and crystal-forming model based on a granular two-dimensional system” (Escobar, et al., 2020), se exploró la formación de estructuras vítreas, cristalinas y estados mixtos, al modificar la superficie plana por una cóncava. Para ello, se emplearon 131 partículas de 1 mm de diámetro depositadas en una lente con una distancia focal de -250 mm. Los experimentos se iniciaron a una temperatura efectiva alta (66 G), que descendió a distintas tasas de enfriamiento hasta que el sistema alcanzó un estado arrestado (22 G). Se observó que la superficie curva, con un diámetro de 50 mm, provoca la migración de las partículas hacia el centro. De forma efectiva, esto se traduce en una fuerza

atractiva entre las partículas, cuyo efecto final es la agregación. Dependiendo de la rapidez de enfriamiento, las partículas forman diferentes estructuras al término del experimento. Al inicio del proceso, las esferas se mueven rápidamente explorando toda el área de observación, con un comportamiento semejante al de un gas. Conforme desciende la temperatura, las partículas comienzan a formar pequeños agregados en el centro del contenedor, lo que indica el inicio del proceso de solidificación. En esta etapa las partículas exploran sus posiciones de mínima energía; sin embargo, las colisiones continuas pueden frustrar la formación de estructuras estables. Al continuar el descenso térmico, las partículas quedan finalmente arrestadas en determinadas configuraciones. Si el enfriamiento es rápido, no hay tiempo suficiente para que las partículas alcancen sus mínimos de energía, lo que produce estructuras amorfas o vítreas, (Figura 14(a)). Cuando se utiliza una razón de enfriamiento intermedia, se obtienen arreglos mixtos compuestos por agregados ordenados y zonas amorfas, (Figura 14(b)). Pero si el enfriamiento es lo suficientemente lento, aumenta la probabilidad de que las partículas alcancen mínimos locales, lo que da lugar a un arreglo cristalino, ver Figura 14(c). La Figura 14(d) muestra el comportamiento del área ocupada por las diferentes configuraciones de las cuentas en función de la temperatura, para tres tasas de enfriamiento distintas. Al analizar el gráfico de derecha a izquierda, se distinguen dos regiones: una en la que el área ocupada disminuye rápidamente a medida que la temperatura desciende, y otra en la que dicha área disminuye lentamente. Este gráfico permitió identificar la transición de fase en cada perfil de enfriamiento. En cuanto al análisis de transición estructural, se determinó el parámetro orientacional de orden 6 para las configuraciones finales, (Figura 14(e)). Se observó que, conforme el perfil de enfriamiento es más lento, los valores del subíndice de ψ_6 son más cercanos a la unidad, lo que confirma que la estructura evoluciona hacia un orden hexagonal compacto.

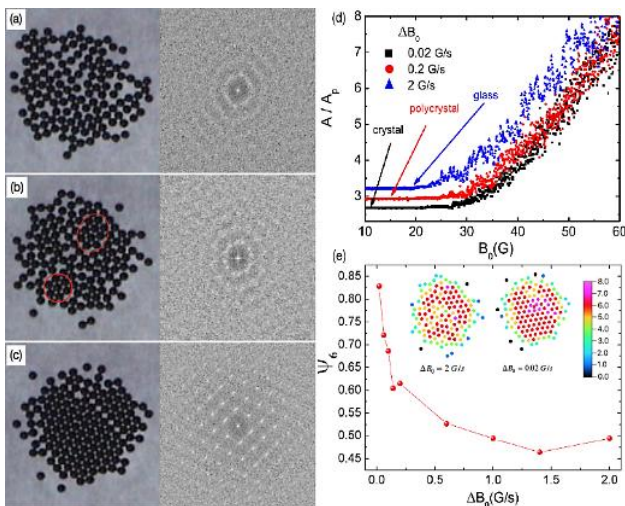


Figura 14: Estructuras finales para un enfriamiento rápido (a), intermedio (b) y lento (c), con sus transformadas de Fourier. En rojo se resaltan los pequeños cristallitos formados en el interior de la estructura vítrea. (d) Área ocupada por las configuraciones finales de las partículas en función de la temperatura; el área fue normalizada al área de la partícula (A/A_p). (e) Promedio del parámetro ψ_6 para las configuraciones finales. Figura adaptada de (Escobar, et al., 2020), con permiso de la American Physical Society.

Durante la formación de la estructura cristalina, se observó que las partículas no siempre adoptan sus posiciones de mínima energía de manera directa, sino que algunas permanecen en la

superficie y las constantes colisiones las empujan hacia un arreglo hexagonal compacto. Otro hallazgo relevante es que, a medida que disminuye la tasa de enfriamiento, el comportamiento del sistema evoluciona de manera continua desde un arreglo vítreo hasta una estructura cristalina, transitando por una fase mixta.

A partir de los resultados obtenidos mediante la cristalización por enfriamiento lento, se decidió profundizar en la formación del monocristal y determinar en qué medida el experimento se alinea con las teorías existentes sobre nucleación y crecimiento. Por ello, en el artículo “*Direct observation of crystal nucleation and growth in a quasi-two-dimensional nonvibrating granular system*” (Escobar, et al., 2021), se analizó en detalle la formación del núcleo, empleando 131 partículas de 1 mm de diámetro depositadas sobre una lente de ~ 250 mm de distancia focal. Se realizaron 3 experimentos bajo las mismas condiciones, aplicando un enfriamiento de 0.02 G/s. Los experimentos se iniciaron a 66 G (temperatura efectiva alta) y concluyeron cuando las partículas alcanzaron un estado arrestado (~ 28 G). La Figura 15 muestra la secuencia cronológica del experimento *E1*. Se observa que el sistema inicia en una configuración desordenada, con las partículas separadas entre sí, como si se tratara de un gas, (Figura 15(a)). Las fluctuaciones espontáneas de la concentración local impulsan la formación de pequeños agregados de diversos tamaños; sin embargo, los conformados por menos de 4 partículas resultan altamente inestables. A medida que el campo magnético disminuye, se observa la formación de un núcleo (Figura 15(b)) y su posterior crecimiento cristalino conforme el campo desciende aún más. Este agregado se estabiliza por fricción: al entrar en contacto, las partículas experimentan fuerzas que restringen su rotación ante cambios en la dirección del campo magnético. Por lo tanto, un mayor número de vecinos en el agregado incrementa los contactos de fricción y, en consecuencia, la estabilidad del agregado. No obstante, las esferas ubicadas en la periferia del agregado sufren colisiones aleatorias con partículas “gaseosas”, lo que puede desestabilizarlas y provocar su “evaporación” hacia la fase dispersa. Es la competencia entre la estabilización por fricción y las fuerzas aleatorias la que determina la viabilidad de la nucleación y el crecimiento del agregado.

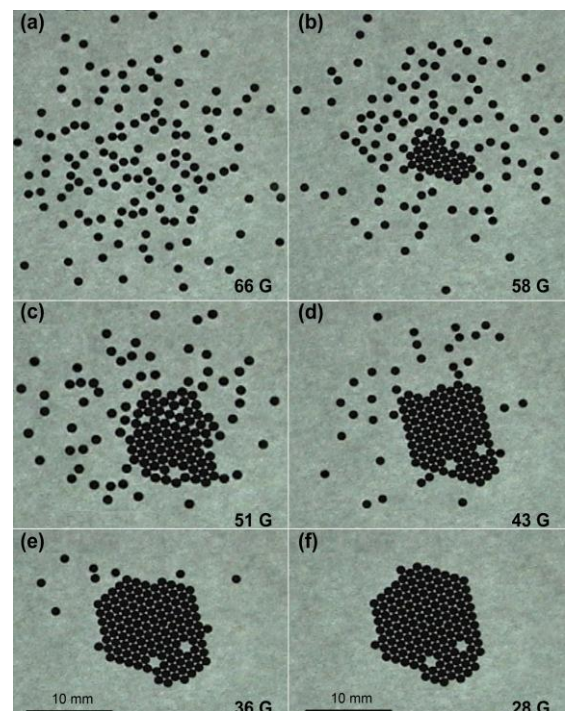


Figura 15: Secuencia de imágenes del experimento 1 (*E1*) que muestra la evolución de una configuración fluida a una cristalina.

La amplitud del campo magnético B_0 está indicada en la esquina de cada imagen. Figura reproducida de (Escobar, et al., 2021), con permiso de la American Physical Society.

En la Figura 16(a) se observa la relación entre el número de partículas (N) en el agregado y el número medio de enlaces por partícula ($\langle N_B \rangle$). Inicialmente, ambas cantidades crecen rápidamente; no obstante, se presenta una desaceleración con el aumento de $\langle N_B \rangle$ cuando N se encuentra entre 40 y 80 partículas. En dos de los experimentos ($E1$ y $E3$), hay un crecimiento de N_B que coincide con un crecimiento repentino del parámetro ψ_6' . Después de esta transición, el agregado experimenta un proceso de ordenamiento. La Figura 16(b) ilustra un ejemplo de la transición de un arreglo desordenado a uno ordenado, que ocurre alrededor de 335 s. Otra vía para cuantificar el proceso de cristalización en dos etapas consiste en determinar el número de partículas en el agregado con exactamente $N_B=5$ o 6 vecinos. Se aprecia un periodo de tiempo en el que predomina una población significativa de partículas que tienen $N_B=5$, seguido de una rápida reorganización estructural donde la mayoría de las partículas consiguen un número de coordinación de 6. Este fenómeno se relaciona con el incremento del orden hexagonal mostrado en la Figura 16(b). Por lo general, el ordenamiento estructural comienza en el interior del agregado. Una vez que esta región interna adopta un arreglo hexagonal, el crecimiento en la periferia sigue siendo desordenado. Las partículas en este estado amorfo transicionan hacia una configuración ordenada debido a las colisiones con las partículas circundantes. Este comportamiento aporta evidencia experimental a la teoría no clásica de la nucleación. No obstante, al superar un tamaño crítico, el cristal empieza a crecer mediante un proceso ordenado, como el descrito por la teoría clásica de la nucleación.

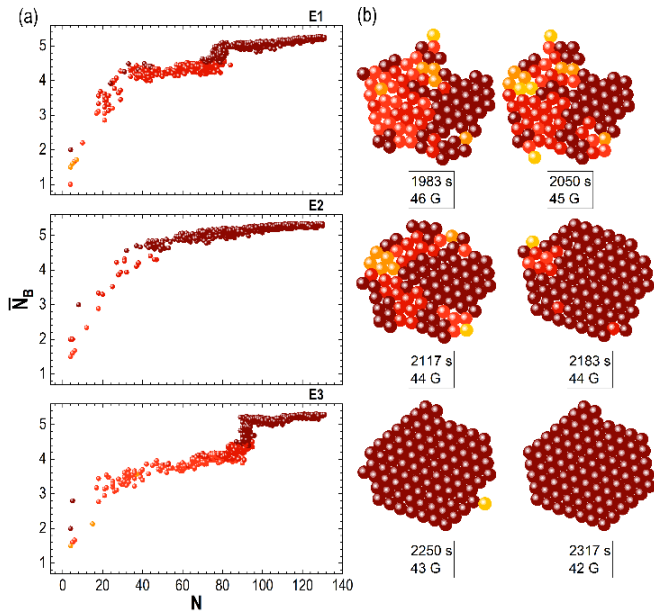


Figura 16: (a) Número medio de enlaces N_B en función del número de partículas N en el agregado, el color indica el valor medio del ψ_6' . (b) Secuencia de imágenes que muestra un notable cambio en las características estructurales. Los datos son del experimento $E3$ y el color indica el valor de ψ_6' de cada partícula. Figuras adaptadas de (Escobar, et al., 2021), con permiso de la American Physical Society.

De igual manera, en el artículo “Two-step crystallisation in a 2D active magnetic granular system confined by a parabolic potential” (Escobar, et al., 2023) se exploró el proceso de

cristalización en dos etapas usando superficies curvas con diferente concavidad. Se utilizaron 90 partículas esféricas depositadas en diferentes lentes cóncavas de 50,8 mm de diámetro y distancias focales (f) de -100 mm, -125 mm, -150 mm, -200 mm y -250 mm. Los experimentos fueron etiquetados como F_1 , F_2 , F_3 , F_4 y F_5 , respectivamente. La curvatura de la lente: k aumenta a medida que disminuye la distancia focal, según la relación $k = \frac{1}{2F}$. Se determinó el desplazamiento cuadrático medio a partir de las trayectorias para cada una de las superficies utilizadas a lo largo del enfriamiento. El rango de 0 a 0.1 s $\langle \frac{\Delta r^2(t)}{\sigma} \rangle$ corresponde al movimiento superdifusivo, como lo revela un ajuste de ley de potencias $\frac{\Delta r^2(t)}{\sigma} > \propto t^c$ donde se observa que el exponente c muestra valores alrededor de 1.6. Mientras que el valor del exponente c en el rango de 0.11 a 0.83 s es muy cercano al régimen difusivo, el exponente c muestra valores alrededor de 0.8. Las Figuras 17(a) y 17(b) muestran el exponente c en función de la temperatura efectiva para el régimen superdifusivo y subdifusivo, respectivamente. La línea discontinua corresponde a $c \sim 1.7$, característica de los agentes de materia activa, y la línea corresponde a $c = 1$, característica del régimen difusivo. El coeficiente de difusión efectivo, D_{eff} , se calculó mediante un ajuste lineal del $\langle \Delta r^2(t) \rangle$ en los mismos puntos de la Figura 17(b), haciendo uso de la relación $\langle \Delta r^2(t) \rangle \sim 4Dt$. La Figura 17(c) muestra el D_{eff} en función de la temperatura efectiva de las lentes. A altas temperaturas, las partículas se mueven rápidamente; sin embargo, cuando la temperatura efectiva disminuye, el número de partículas libres también disminuye, lo que provoca un descenso del coeficiente de difusión efectivo en cada una de las cinco lentes utilizadas. Esta diferencia en D_{eff} entre el estado inicial (altas temperaturas) y el estado final (bajas temperaturas) es más evidente a medida que k disminuye. La tasa a la que D_{eff} disminuye se obtuvo mediante un ajuste lineal, representado en el recuadro como función de la distancia focal de las lentes.

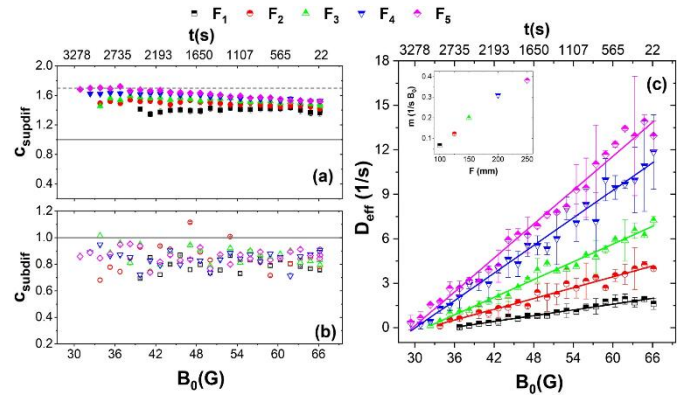


Figura 17: (a) Exponente c de la ley de potencias en el régimen de tiempo corto o régimen superdifusivo, (b) régimen subdifusivo del desplazamiento cuadrático medio y (c) el coeficiente de difusión, en función de la temperatura efectiva. Recuadro: pendiente del ajuste lineal del coeficiente de difusión en función de la curvatura de la lente. Gráficas recuperadas de (Escobar, et al., 2023) bajo los términos de la licencia CC BY 4.0.

El número de partículas N que forman parte del agregado se representó gráficamente en función del tiempo y se excluyeron las partículas libres; ver Figura 18(a). Se observa que, una vez formado el agregado inicial, las partículas continúan adhiriéndose y el agregado crece linealmente. Sin embargo, existen diferencias esenciales en los procesos de crecimiento de los agregados entre

las lentes. Se puede observar que la pendiente obtenida de los ajustes lineales aumenta a medida que disminuye la curvatura k , (Figura 18(b)). Cuanto menor sea el valor absoluto de la pendiente, más rápido se produce el proceso de cristalización. El mayor potencial gravitatorio promueve la acumulación de partículas en el centro de las lentes, lo que facilita la nucleación a temperaturas efectivas más altas y el posterior ordenamiento cristalino. A medida que disminuye la curvatura de la lente, el agregado central contiene menos partículas y se requieren temperaturas efectivas más bajas para formar un núcleo. Para los casos de las lentes F_4 y F_5 la interacción efectiva entre las partículas fue mínima al comienzo del experimento, y las partículas se movieron aleatoriamente por toda el área de observación. La agregación se produce cuando la temperatura ha descendido lo suficiente; las dos últimas curvas comienzan más tarde. La Figura 18(c) muestra las intersecciones de los ajustes lineales de las curvas de crecimiento con el eje Y . Se observa que, a medida que aumenta la distancia focal, el agregado inicial disminuye. Los valores negativos indican que no se forma ningún agregado al principio, y el sistema debe alcanzar una temperatura efectiva más baja antes de que se produzcan la nucleación y el crecimiento cristalino. Una observación importante es que el proceso de cristalización se trunca si la profundidad de la concavidad supera un valor particular, $k = 6.66$.

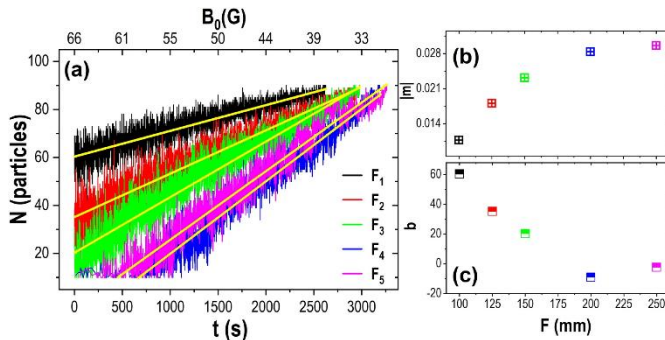


Figura 18: (a) Número de partículas que forman parte del agregado; se realizó un ajuste lineal a cada una de las curvas de crecimiento, (b) la pendiente del ajuste lineal y (c) la intersección del ajuste con el eje Y en función de la distancia focal de las lentes. Gráficas obtenidas de (Escobar, et al., 2023) bajo los términos de la licencia CC BY 4.0.

Del trabajo se concluyó que la cristalización se produce más rápidamente cuanto mayor es la profundidad del potencial parabólico. Como era de esperar, se observó que los agregados presentan una forma más redondeada a mayor profundidad en el potencial parabólico. Por el contrario, las estructuras son más ramificadas a menor profundidad del potencial, y los procesos de cristalización son más prolongados.

3.3. Optimización del proceso de cristalización

Una vez demostrado que la formación del núcleo se desarrolla según la teoría no clásica de nucleación y que el crecimiento ocurre de manera similar, se decidió buscar las condiciones óptimas que favorezcan la formación de cristales. Para tal propósito, en el trabajo “*Optimisation of the crystallisation process through staggered cooling in a nonvibrating granular system*” (Escobar, et al., 2025) se emplearon las mismas condiciones experimentales que en el trabajo anterior (Escobar, et al., 2021). Sin embargo, en lugar de utilizar un enfriamiento lineal (0.02G/s), se empleó un enfriamiento escalonado. En este método, la temperatura disminuye mediante saltos grandes, y el tiempo durante el cual el sistema permanece a temperatura

constante varía hasta alcanzar el tiempo mínimo de cristalización. Se evaluaron diversos perfiles de enfriamiento, modificando la altura y el ancho del escalón con la finalidad de identificar el ancho mínimo requerido para cristalizar el sistema. Los resultados revelaron que, para una altura de paso fija, existe un tiempo óptimo de cristalización: si el ancho de escalón es insuficiente, el sistema no cristaliza; por el contrario, si es demasiado amplio, el sistema sí cristaliza, pero a costa de un mayor tiempo total. La Figura 19(a) muestra los perfiles de enfriamiento que alcanzaron la cristalización en el tiempo mínimo para cada serie de altura. En estos perfiles, el valor absoluto de las pendientes ($|m|$) es mayor cuando la cristalización ocurre más rápido. Las Figuras 19(b) y 19(c) muestran la configuración final de dos perfiles con la misma altura de paso, pero con distintos anchos. Asimismo, la Figura 19(d) indica que, a mayor pendiente, menor es el tiempo de cristalización, un comportamiento que se ajusta a una función de crecimiento sigmoide. En esta gráfica se distinguen dos regiones: la superior indica las combinaciones de ancho y altura de paso que favorecen la cristalización, mientras que la inferior muestra los parámetros que generan fases amorfas o mezclas de fases amorfas y cristalinas. Al calcular el valor máximo de la derivada de la función sigmoide, se determinó que el tiempo mínimo de cristalización ocurre con una altura de paso de 5.83 G y un tiempo de espera de 45 s, (Figura 19 (e)). Experimentalmente, se comprobó que este tiempo mínimo se alcanza con un alto de paso de ~ 4.5 G y un tiempo de espera de 60 s. Aunque ambos valores no son idénticos, el punto máximo observado en la curva de la derivada es fundamental, ya que confirma la existencia de condiciones óptimas para minimizar la duración del proceso.

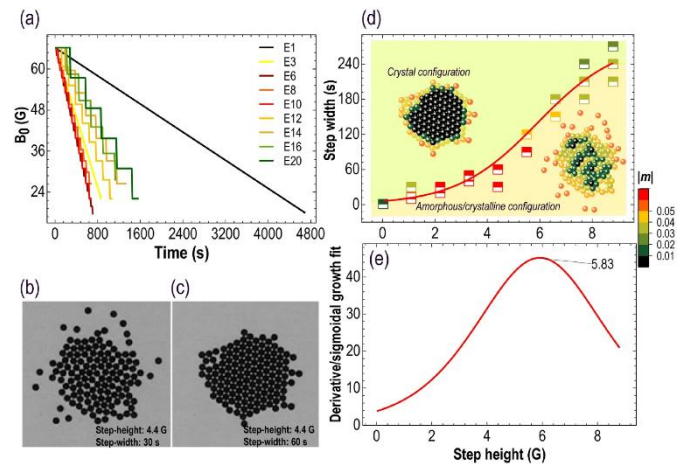


Figura 19: (a) Perfiles de enfriamiento de los casos que cristalizaron en el menor tiempo posible para cada serie de alturas de escalón. (b) y (c) muestran la configuración final para dos perfiles diferentes que tienen una altura de escalón de 4,4 G y un ancho de escalón de 30 s y 60 s, respectivamente. (d) Las pendientes de los perfiles mostrados en (a) se ajustan bien a una función sigmoide y se agregan algunos puntos adicionales donde el sistema cristalizó, pero el ancho de escalón no es óptimo. (e) La derivada de la función sigmoide indica el punto más alto de la curva, que corresponde al valor óptimo de la altura de escalón para minimizar el tiempo de cristalización. Figura extraída de (Escobar, et al., 2025) bajo los términos de la licencia CC BY 4.0.

La Figura 20(a) ilustra la relación entre la fracción de área ocupada por las partículas y el campo magnético una vez que las partículas comenzaron a agregarse (40 G). Para este análisis, se usaron los experimentos con una altura de paso fija de 4,4 G y tres anchos de paso distintos: 90 s, 60 s y 30 s. Con un intervalo de 30

s, el factor de empaquetamiento fue inferior al 70 %; esto indica que, aunque se alcanzó la concentración necesaria para la agregación, el tiempo de espera fue insuficiente para lograr el ordenamiento del sistema. La mayor eficiencia de empaquetamiento se obtuvo con un intervalo de 60 s, con un promedio superior al 75 %. En este caso, tanto la concentración como el tiempo de permanencia en las condiciones energéticas resultaron adecuados para lograr la agregación y el reordenamiento cristalino. En el tercer experimento, la temperatura se mantuvo constante durante un tiempo más prolongado (90 s) y el factor de empaquetamiento fue similar al del segundo caso, con un promedio superior al 70 %. En cada gráfica se distinguen tres regiones con diferentes colores; en la región inferior (naranja), la concentración de partículas es inferior a la necesaria para formar agregados estables, por lo que podría considerarse una región insaturada. La región intermedia (amarilla) corresponde a la zona metaestable, donde el crecimiento es más probable. Finalmente, la región superior (verde) muestra una concentración aún mayor, lo que indica que el sistema se ordena. Se debe alcanzar una sobresaturación óptima superior al 70% en cada meseta para que se consolide la capa de adhesión. Así, mientras las condiciones energéticas se mantienen constantes, la saturación debe permanecer en la zona metaestable para permitir la reorganización de las partículas. Una vez que se agota la concentración, el descenso de la temperatura vuelve a provocar sobresaturación y se repite el ciclo hasta que se forma el cristal. La Figura 20(b) muestra áreas sombreadas en rojo, que indican la fracción de área utilizada para determinar el factor de empaquetamiento en cada región.

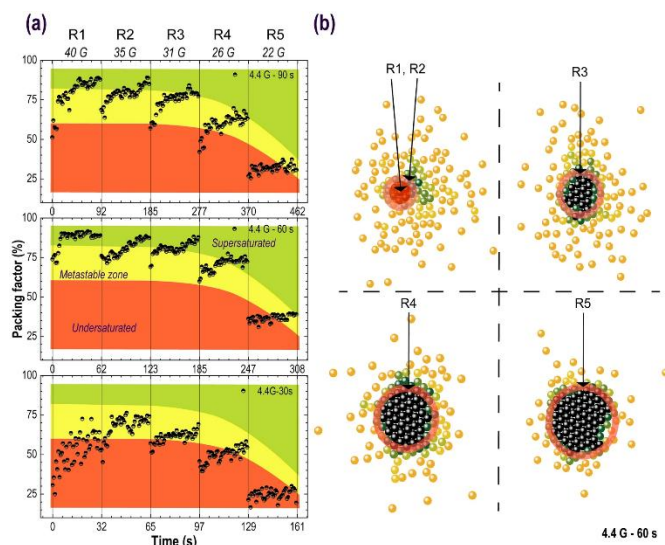


Figura 20: (a) Factor de empaquetamiento para una altura de escalón de 4.4 G y tres anchos de escalón: 30 s (no cristaliza), 60 s (cristaliza) y 90 s (cristaliza). Cada color representa una región de saturación durante el enfriamiento: la región subsaturada en naranja, la región metaestable en amarillo y la sobresaturada en verde. (b) La superficie sombreada indica la fracción de área utilizada para calcular el factor de empaquetamiento. Figura extraída de (Escobar, et al., 2025) bajo los términos de la licencia CC BY 4.0.

Se ha demostrado que un perfil de enfriamiento escalonado influye notablemente en el proceso de solidificación, actuando como factor determinante para lograr (o no) la cristalización y en el tiempo total del proceso. Cada altura de escalón tiene un ancho mínimo que permite la cristalización del sistema. Por lo tanto, identificar los valores adecuados de la altura y el ancho del escalón

permite establecer las condiciones óptimas para lograr la cristalización. En términos de la teoría de cristalización en dos etapas, un protocolo de enfriamiento escalonado favorece, en una primera etapa, la formación de una capa amorfa de partículas debido al descenso súbito de la temperatura. Posteriormente, en una segunda etapa, la configuración de las partículas evoluciona hacia una cristalina.

Otra forma de optimizar el proceso de cristalización es mediante el confinamiento espacial. Diferentes estudios demuestran que este fenómeno ejerce una fuerte influencia sobre el control de la nucleación y el crecimiento cristalino, lo que permite manipular tanto el tamaño como la forma del cristal. Asimismo, el entorno rígido de las paredes favorece la orientación del crecimiento cristalino en regiones específicas. En el artículo “*Crystallization process under strong spatial confinement and stepwise cooling in a nonvibrating granular system*” (Escobar & Donado, 2025), se estudian los efectos de un fuerte confinamiento espacial en el proceso de cristalización en un sistema granular. Para tal efecto, se empleó una superficie plana con una ligera inclinación de 2° , delimitada por paredes que forman contenedores con tres geometrías distintas: hexagonal, circular y rectangular. Esta inclinación genera un gradiente de energía que induce la sedimentación de las partículas y les confiere una temperatura efectiva baja. Dado que el número de partículas es insuficiente para llenar el contenedor, estas pueden desplazarse y explorar el espacio disponible en busca de sus posiciones de mínima energía. Además, se implementaron dos perfiles de enfriamiento: uno lineal y otro escalonado.

La Figura 21 muestra las configuraciones finales de las partículas tras los procesos de enfriamiento, para diferentes tamaños y geometrías de los contenedores. Al inicio de cada experimento, las partículas estaban desordenadas y ocupaban la mayor parte del área de observación. A altas temperaturas y en todos los tamaños de contenedor, cuando una partícula alcanza el límite, experimenta colisiones casi elásticas que invierten su dirección, alejándola de la pared. A medida que el sistema se enfría, la energía cinética disminuye y las partículas se acercan entre sí. Aquellas cercanas a la pared sufren colisiones laterales y frontales con las partículas provenientes del interior, lo que reduce su movilidad hasta detenerlas y hacer que se adhieran a la pared; de este modo, forman una disposición en forma de “collar” que adopta la geometría del contenedor. Conforme la temperatura desciende aún más, las partículas se acumulan en el fondo. Esta estructura inicial en la pared actúa como un embrión para la nucleación heterogénea que se desarrolla durante un enfriamiento continuo.

En el contenedor hexagonal, se observa la formación de una configuración hexagonal compacta (HCP) en los distintos tamaños estudiados, ver Figura 21(a). Sin embargo, el ordenamiento cristalino no fue tan bueno como se esperaba, a pesar de la conmensurabilidad entre la forma del contenedor y la estructura HCP. Esto se debe a que los efectos de las fronteras siempre están presentes, dado que el cristal comienza a crecer en ellas. En el contenedor más grande, se forman núcleos en todas las paredes; al encontrarse, originan una estructura policristalina con granos separados por defectos de borde. En el tamaño intermedio, el orden cristalino mejoró, aunque se observaron algunos defectos. En la geometría circular, (Figura 21(b)), en todos los tamaños de contenedor se observan pequeñas zonas con configuraciones HCP, aunque con una cantidad importante de defectos, principalmente cerca de la pared. Los defectos impiden la formación de grandes configuraciones HCP. En el contenedor más pequeño se observa la formación de estructuras apiladas en forma

de collar. En los contenedores rectangulares, las zonas con arreglos *HCP* aparecen solo en el contenedor de tamaño mayor, ver Figura 21(c). Al reducir el tamaño, aumenta la influencia de las paredes laterales y, por ende, la cantidad de defectos. En los contenedores más pequeños, las paredes imponen una configuración cuadrática. A diferencia de los casos confinados, el sistema sin confinamiento siempre muestra la formación de la estructura *HCP*. En síntesis, la geometría y el tamaño del contenedor influyen notablemente en el orden final. Aunque las fases *HCP* aparecen en los tres contenedores geométricos para los tamaños más grandes, los efectos de pared se intensifican al reducir el espacio. Se determinó que el confinamiento espacial intenso acelera la cristalización y determina la configuración final. Si el confinamiento es severo, sus efectos son lo suficientemente fuertes como para imponer la simetría del contenedor en el arreglo final de las partículas, alterando la disposición de mínima energía característica de un medio no confinado. Adicionalmente, el uso de protocolos de enfriamiento escalonados reduce de manera más eficiente el tiempo de cristalización en sistemas confinados. Conforme aumenta el tamaño del contenedor, los efectos de las paredes se disipan y el ordenamiento *HCP* prevalece en la estructura; sin embargo, el número de defectos es mayor que en el caso no confinado.

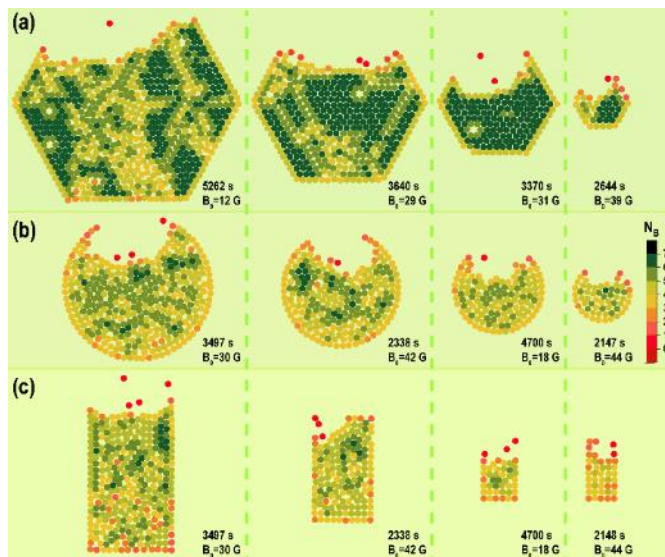


Figura 21: Comparación del efecto del tamaño del contenedor en el arreglo de las partículas en base a N_B . (a) En el caso del contenedor hexagonal, predomina la configuración hexagonal compacta. (b) En el caso circular, en todos los tamaños, se observan algunas zonas con una configuración *HCP* en la región interna. (c) En el rectangular, se observan algunas zonas con la configuración *HCP* en el contenedor más grande, mientras que, en el más pequeño, el arreglo cuadrático es el dominante. En cada geometría, la concentración fue de 0,60. Figura extraída de (Escobar & Donado, 2025), con permiso de Elsevier B.V.

4. Conclusiones

En este trabajo se presentó una revisión de las publicaciones relacionadas con un sistema magnético granular utilizado como modelo macroscópico de fenómenos moleculares. Se analizaron su desarrollo, caracterización, implementación y optimización. Este enfoque permitió profundizar en los mecanismos generales y particulares de los procesos de agregación y de transición de fase. Se demostró que la acción del campo magnético induce en las partículas un comportamiento análogo al de la dinámica Browniana. En consecuencia, a temperaturas efectivas elevadas,

las partículas se distribuyen rápida y aleatoriamente en el área de observación, como si se tratara de un gas. Al disminuir la temperatura, la distancia entre las partículas se reduce, lo que indica una transición primero hacia un estado líquido y luego hacia un estado sólido. Dependiendo de la presencia de una fuerza repulsiva inducida por el campo magnético constante (B_c) o de las tasas de enfriamiento, es posible obtener estructuras amorfas o mixtas. Este fenómeno permitió determinar la temperatura de transición vítrea (T_g) y clasificar el sistema en vidrios “fuertes” o “débiles”. Dichos resultados aportan evidencia experimental de que la fracción de área (concentración) de las partículas y su interacción modelan las propiedades finales del vidrio y, además, demuestran que un enfriamiento súbito favorece la formación de estructuras vítreas.

Por otra parte, al suprimir el campo magnético repulsivo, incrementa la interacción entre las partículas, lo que favorece los fenómenos de agregación. Se encontró que la modificación de la geometría del potencial parabólico, el confinamiento espacial y el protocolo de enfriamiento permiten regular la sobresaturación del sistema, considerada la fuerza impulsora de la cristalización. Por lo tanto, al cambiar los parámetros que regulan la concentración, es posible optimizar el proceso de cristalización. Estos resultados son consistentes con estudios realizados en materiales como cerámicos, polímeros y metales, en los que el control de la sobresaturación desempeña un papel fundamental en la estructura cristalina final y, por ende, en sus propiedades. Asimismo, al restringir el espacio donde crecen los cristales, puede controlarse la morfología, fenómeno que también se ha observado en la formación de cristales de sal en los muros de construcciones expuestas a ambientes costeros (Scherer, 1999).

En todos los casos se observó un mecanismo de crecimiento en dos etapas (two-step nucleation): primero se forma un agregado desordenado de partículas que en una segunda etapa se reordena por las colisiones de las partículas externas. Este comportamiento difiere de la teoría clásica de nucleación, la cual indica que los núcleos surgen de manera espontánea con una estructura ya ordenada para continuar creciendo hasta agotar el soluto. Dichos resultados aportan evidencia experimental sólida que respalda las teorías no clásicas de nucleación y contribuyen a la explicación de fenómenos como la aparición de fases prenucleantes, por ejemplo, la vaterita durante la formación de carbonato de calcio CaCO_3 (Nielsen, et al., 2014).

Los trabajos publicados a partir de esta línea de investigación constituyen una contribución experimental significativa al estudio de fenómenos fuera del equilibrio. Los resultados obtenidos son extrapolables a sistemas moleculares reales y demuestran que, mediante diseños experimentales relativamente fáciles de aplicar y de bajo costo, es posible formular hipótesis e investigar rigurosamente en la ciencia de materiales y en la física de la materia condensada blanda, con un impacto favorable en la comunidad científica. Como trabajo futuro, se proyecta profundizar en el estudio de los perfiles de enfriamiento escalonado, extendiendo los experimentos a sistemas con mayor concentración y diferentes superficies, así como explorar el efecto de nuevas geometrías de confinamiento. Finalmente, en un trabajo más ambicioso se busca aplicar los resultados obtenidos a sistemas moleculares reales, proponiendo nuevas rutas de enfriamiento y metodologías de crecimiento cristalino bajo confinamiento espacial.

Agradecimientos

Los autores desean agradecer el apoyo parcial de CONAHCyT, México, a través de la beca 731759 (2019). M.A. Escobar-López agradece la beca postdoctoral de CONAHCyT, México: Convocatoria 2023(1).

Conflicto de intereses

Los autores declaran que no existen conflictos de interés.

Referencias

- Adachi, M., Yu, P., & Sperl, M. (2019). Magnetic excitation of a granular gas as a bulk thermostat. *npj Microgravity*, 5. doi:https://doi.org/10.1038/s41526-019-0079-y
- Aste, T., & Di Matteo, T. (2008). Emergence of Gamma distributions in granular materials and packing models. *Phys. Rev. E*, 77, 021309. doi:https://doi.org/10.1103/PhysRevE.77.021309
- Blair, D. L., Neicu, T., & Kudrolli, A. (2003). Vortices in vibrated granular rods. *Phys. Rev. E*, 67, 031303. doi:https://doi.org/10.1103/PhysRevE.67.031303
- Daniels, K. E., & Behringer, R. P. (2005). Hysteresis and Competition between Disorder and Crystallization in Sheared and Vibrated Granular Flow. *Phys. Rev. Lett.*, 94, 168001. doi:https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.94.168001
- D'Anna, G., & Gremaud, G. (2001). The jamming route to the glass state in weakly perturbed granular media. *Nature*, 413, 407-409. doi:https://doi.org/10.1038/35096540
- Donado, F., Moctezuma, R., López-Flores, L., Medina-Noyola, M., & Arauz-Lara, J. (2017). Brownian motion in non-equilibrium systems and the Ornstein-Uhlenbeck stochastic process. *Scientific Reports*, 7, 12614. doi:https://doi.org/10.1038/s41598-017-12737-1
- Ebert, F., Dillmann, P., Maret, G., & Keim, P. (2009). The experimental realization of a two-dimensional colloidal model system. *Rev Sci Instrum*, 80, 083902. doi:https://doi.org/10.1063/1.3188948
- Escobar, A., & Donado, F. (2025). Crystallization process under strong spatial confinement and stepwise cooling in a nonvibrating granular system. *Physica A*, 680, 131048. doi:https://doi.org/10.1016/j.physa.2025.131048
- Escobar, A., Donado, F., Moctezuma, R., & Weeks, E. (2021). Direct observation of crystal nucleation and growth in a quasi-two-dimensional nonvibrating granular system. *Physical Review E*, 104, 044904. doi:https://doi.org/10.1103/PhysRevE.104.044904
- Escobar, A., Ledesma-Motolinía, M., Carrillo-Estrada, J., & Donado, F. (2023). Two-step crystallisation in a 2D active magnetic granular system confined by a parabolic potential. *Sci Rep*, 13, 8552. doi:https://doi.org/10.1038/s41598-023-35135-2
- Escobar, A., Moctezuma, R., & Donado, F. (2025). Optimisation of the crystallisation process through staggered cooling in a nonvibrating granular system. *Sci Rep*, 15, 1030. doi:https://doi.org/10.1038/s41598-024-84285-4
- Escobar, A., Tapia-Ignacio, C., Donado, F., Arauz-Lara, J., & Moctezuma, R. (2020). Glass-and crystal-forming model based on a granular two-dimensional system. *Physical Review E*, 101, 052907. doi:10.1103/PhysRevE.101.052907
- Horn, T. D. (2013). Fluctuations of orientational order and clustering in a two-dimensional colloidal system under quenched disorder. *Phys. Rev. E*, 88, 062305. doi:https://doi.org/10.1103/PhysRevE.88.062305
- König, H., Hund, R., Zahn, K., & Maret, G. (2005). Experimental realization of a model glass former in 2D. *Eur. Phys. J. E*, 18, 287-293. doi:https://doi.org/10.1140/epje/e2005-00034-9
- Kumar, V. S., & Kumaran, V. (2005). Voronoi cell volume distribution and configurational entropy of hard-spheres. *J. Chem. Phys.*, 123, 114501. doi:https://doi.org/10.1063/1.2011390
- Ledesma-Motolinía, M., Carrillo-Estrada, J., & Donado, F. (2021). Crystallisation in a two-dimensional granular system at constant temperature. *Scientific Reports*, 11, 16531. doi:https://doi.org/10.1038/s41598-021-96099-9
- Li, Y.-W. & (2020). Attraction tames two-dimensional melting: From continuous to discontinuous transitions. *Physical Review Letters*, 124, 218002. doi:https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.124.218002
- Morales-Barrera, D., Rodríguez-Gattorno, G., & Carvente, O. (2018). Reversible Self-Assembly (fcc-bct) Crystallization of Confined Granular Spheres via a Shear Dimensionality Mechanism. *Phys. Rev. Lett.*, 121, 074302. doi:10.1103/PhysRevLett.121.074302
- Nielsen, M., Aloni, S., & De Yoreo, J. (2014). In situ TEM imaging of CaCO₃ nucleation reveals coexistence of direct and indirect pathways. *Science*, 345, 1158-1162. doi:10.1126/science.1254051
- Puglisi, A., Sarracino, A., & Vulpiani, A. (2017). Temperature in and out of equilibrium: A review of concepts, tools and attempts. *Physics Reports*, 709-710, 1-60. doi:https://doi.org/10.1016/j.physrep.2017.09.001
- Pusey, P. (2011). Brownian Motion Goes Ballistic. *Science*, 332, 802-803. doi:10.1126/science.1192222
- Sánchez-Miranda, M., Carrillo-Estrada, J., & Donado, F. (2019). Crystallization processes in a nonvibrating magnetic granular system with short range repulsive interaction. *Scientific Reports*, 9, 3531. doi:https://doi.org/10.1038/s41598-019-40062-2
- Scherer, G. (1999). Crystallization in pores. *Cement and Concrete Research*, 29, 1347-1358. doi:https://doi.org/10.1016/S0008-8846(99)00002-2
- Sosso, G., Chen, J., Cox, S., Fitzner, M., Pedevilla, P., Zen, A., & Michaelides, A. (2016). Crystal Nucleation in Liquids: Open Questions and Future Challenges in Molecular Dynamics Simulations. *Chem. Rev.*, 116, 7078-7116. doi:https://doi.org/10.1021/acs.chemrev.5b00744
- Tapia-Ignacio, C., García-Serrano, J., & Donado, F. (2016). Nonvibrating granular model for a glass-forming liquid: Equilibration and aging. *Physical Review E*, 94, 062902. doi:https://doi.org/10.1103/PhysRevE.94.062902
- Tapia-Ignacio, C., Moctezuma, R., & Donado, F. (2018). Structure and fragility in a macroscopic model of a glass-forming liquid based on a nonvibrating granular system. *Phys. Rev. E*, 98, 032901. doi:https://doi.org/10.1103/PhysRevE.98.032901
- Wang, Z. A. (2010). Two-dimensional freezing criteria for crystallizing colloidal monolayers. *Journal of Chemical Physics*, 132, 154501. doi:https://doi.org/10.1063/1.3372618
- Yu, P., Stärk, E., Blochberger, G., Kaplik, M., Offermann, M., Tran, D., Adachi, M. & Sperl, M. (2019). Magnetically excited granular matter in low gravity. *Review of Scientific Instruments*, 90, 054501. doi:https://doi.org/10.1063/1.5085319