

# 一种 Monte Carlo 仿真新算法及其对三维个体晶粒长大速率拓扑依赖性理论方程的验证\*

刘国权<sup>1)</sup> 宋晓艳<sup>1,2)</sup> 于海波<sup>1,3)</sup> 谷南驹<sup>3)</sup>

1) 北京科技大学材料科学与工程系, 北京 100083

2) 河北工业大学材料科学与工程系, 天津 300130

3) 北京理工大学应用物理系, 北京 100081

**摘要** 通过建立一种新的三维晶粒组织及其演变的 Monte Carlo 可视化图像仿真算法, 验证了作者近年来理论导出的三维个体晶粒长大速率拓扑依赖性方程的正确性。

**关键词** 三维晶粒长大理论, 拓扑学, 材料模型化, Monte Carlo 可视化图像仿真

**中图分类号** TG111, O189

**文献标识码** A

**文章编号** 0412-1961(1999)03-0245-48

## VERIFICATION OF THE TOPOLOGICAL DEPENDENCE OF THREE-DIMENSIONAL INDIVIDUAL GRAIN'S GROWTH RATE WITH MONTE CARLO SIMULATION

LIU Guoquan<sup>1)</sup>, SONG Xiaoyan<sup>1,2)</sup>, YU Haibo<sup>1,3)</sup>, GU Nanju<sup>2)</sup>

1) Department of Materials Science & Engineering, University of Science & Technology Beijing, Beijing 100083

2) Department of Materials Science & Engineering, Hebei University of Technology, Tianjin 300130

3) Department of Applied Physics, Beijing Institute of Technology, Beijing 100081

Correspondent: LIU Guoquan, professor, Tel: (010)62332281, Fax: (010)62332281,

E-mail: licylxj@public.bta.net.cn

Manuscript received 1998-06-15, in revised form 1998-10-14

**ABSTRACT** With a new Monte Carlo algorithm, the three-dimensional normal grain growth process including the steady-state stage is appropriately simulated. The topological dependence equation for the growth rate of three-dimensional individual grains, which was first derived theoretically by the present authors and can be considered as a three-dimension equivalent to Von Neumann's equation in two-dimensions, is confirmed by means of the simulation. Such verification with experimental measurement in real microstructures is not available yet.

**KEY WORDS** three-dimensional grain growth theory, topology, materials modeling, Monte Carlo simulation

用于直观地显示材料显微组织及其动态演变过程的 Monte Carlo(MC) 方法是一种有效的图像仿真方法。然而, 已有的 MC 仿真算法<sup>[1]</sup> 存在一些局限性, 如: 效率低; 仿真晶粒长大的指数远低于理论值  $n=0.5$ <sup>[2]</sup>, 等等。因此, 需要依据多晶体组织演变的微观物理基础, 建立一种新的 MC 仿真改进算法, 以能更准确地反映显微组织演变的

动力学和拓扑学特征, 同时提高模拟效率。

本文三维系统的 MC 仿真改进算法的建立使验证三维晶粒长大理论研究的一些重要结果成为可能。例如, 在线性、均一性和局域平衡条件下, 通过假定同一晶粒界面的周边棱线处在同一几何平面内, 将晶粒界面棱线运动速率沿棱线积分, 该界面面积随时间的变化率正比于该晶粒界面的拓扑特征量, 整个晶粒界面面积  $S$  的变化速率与晶粒界面数  $F$  呈线性关系<sup>[3]</sup>:

$$\frac{dS}{dt} = km\gamma(F - F_c) \quad (1)$$

式中常数  $k \approx 1.1$ ,  $F_c \approx 13.4$ ,  $m$  和  $\gamma$  分别代表晶粒棱线迁移率和晶界能。式 (1) 即为三维个体晶粒长大速率拓扑依赖性理论方程, 也可能是至今与二维 Von Neumann 方程

\* 国家自然科学基金资助项目 59771070, 国家教委“跨世纪优秀人才”基金资助项目 [1997]2 号

收到初稿日期: 1998-06-15, 收到修改稿日期: 1998-10-14

作者简介: 刘国权, 男, 1952 年生, 教授, 博士。

相对应的唯一理论导出的此类三维系统方程<sup>[4]</sup>. 在实际材料实验研究中, 由于单个晶粒的  $S$  值无法测得,  $F$  值测量难度亦很大, 故至今无法对式 (1) 在实际材料中实验验证. 本文的主要目的是通过对包括稳态长大阶段在内的三维晶粒长大过程进行可视化仿真研究, 对演变过程中的仿真晶粒组织内单个晶粒的表面积  $S$  和界面数  $F$  进行跟踪监测, 对式 (1) 予以验证.

### 1 Monte Carlo 三维仿真算法

在本研究组二维系统 Monte Carlo 仿真改进算法<sup>[5]</sup>的基础上, 提出如下三维 Monte Carlo 仿真算法.

(1) 将一定体积的三维空间离散成大量微小间距的二维平面, 每一平面再离散成大量正方形微小单元. 这些微元各对应于一等大的微小体积, 作为构成晶粒和充满三维仿真实空间的最小单位. 对每个微元随机赋值以一正整数代表其初始取向状态.

(2) 逐一取二维平面并依次提取平面上的每一微元再取向尝试. 新的取向选择为该微元邻居取向状态之一. 任一微元的最近邻、次近邻和第三近邻集合的特点和范围示意图如图 1, 它们与中心微元的中心距离分别为  $a_0$ ,  $\sqrt{2}a_0$  和  $\sqrt{3}a_0$  ( $a_0$  为微元的一维尺寸), 且分别包含微元个数 6, 12 和 8. 对由不同近邻构成微元组合的比较研究表明<sup>[6]</sup>, 微元组合中包括三重近邻 (即微元总数为 26) 的仿真效果明显优于仅包括最近邻或也考虑次近邻者, 最接近于实际组织, 从而本文仿真选用微元总数为 26 的三重近邻微元组合. 系统所有微元全部提取并完成一次再取向尝试后记为一个 Monte Carlo 步骤 (Monte Carlo step, 简称为 MCS), 作为仿真过程的时间单位.

(3) 在三维空间相互邻接且取向相同的微元构成同一个晶粒, 取向不同的微元之间形成微观晶界 (含面、棱和角隅). 与晶界邻接的微元改变取向状态相当于实际材料中原子 (集团) 扩散至晶界另一侧并导致晶界微观迁动, 是构成本文中仿真晶粒长大最基本的过程单元. 以微元及其邻居取向组态能量变化判断微元是否能够更取向. 微元组合的能量表示为

$$E = J \sum_{k=1}^{N_k} \sum_{j \in k} (1 - \delta_{S_i, S_j}) \quad (2)$$

其中,  $J$  为单位面积上的晶界能;  $S_i, S_j$  为第  $i$  微元及其邻居  $j$  的取向状态数;  $N_k=1, 2, 3$  分别对应于第  $i$  微元的最近邻、次近邻和第三近邻集合;  $\delta_{S_i, S_j}$  为 Kronecker  $\delta$  函数<sup>[7]</sup>.

当微元再取向尝试使取向组态能量降低, 即  $\Delta E < 0$  时, 该微元重新取向成功; 当能量升高, 即  $\Delta E > 0$  时, 该微元保持原取向; 当能量不变,  $\Delta E = 0$  时, 该微元既可以重新取向又可以保持原状态.

(4) 为仿真连续且体积足够大的立体多晶材料, 引入

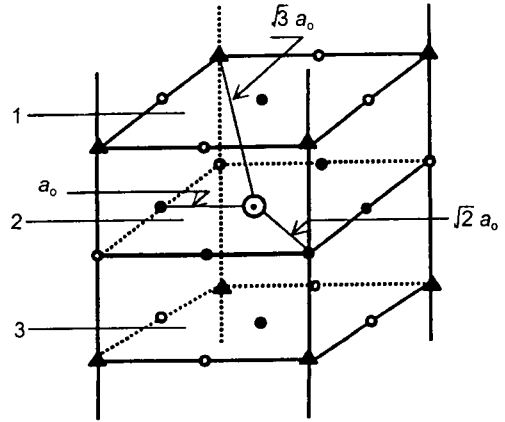


图 1 任意 (第  $n$  个) 离散平面上的任一微元的邻居组态示意图

Fig.1 The configuration of neighbors of a tiny volume unit in three-dimensional space

⊙, ●, ○ and ▲ represent the central volume unit and its nearest, second-nearest and third nearest neighbors, respectively

1 — the  $(n-1)$ th separate plane 2 — the  $n$ th separate plane 3 — the  $(n+1)$ th separate plane

三维空间的周期性边界条件<sup>[7]</sup>.

利用 C 语言编程实现上述仿真算法, 在主频 166 MHz, 64M 内存、2.1 G 硬盘的 586 微机运行, 速度等于或大于 2.0 min/MCS. 通过比较获得相同晶粒尺寸所需时间判断, 本算法比原有 MC 算法<sup>[1]</sup> 同条件下的模拟效率提高 17 倍以上.

## 2 仿真效果

### 2.1 仿真图像

利用本三维 Monte Carlo 算法, 仿真了边长为 201 个像素点的立方体多晶材料 (仿真样品的体积为  $8.12 \times 10^6 \lambda^3$ ,  $\lambda$  为像素点间距) 的正常晶粒长大过程.

根据需要, 本文仿真技术允许任选水平截面, 垂直截面或多种不同角度下的倾斜截面对晶粒长大过程进行可视化显示和监测<sup>[6]</sup>. 图 2 示出长时间范围内三维正常晶粒仿真长大过程中某任选截面上的晶粒组织及其演变图像, 与单相金属和陶瓷多晶体材料中常见实际晶粒组织非常相似. 换言之, 本文通过仿真形成了一类新的动态的可视化显微组织模型.

### 2.2 抛物线长大规律及稳态长大

抛物线长大规律是正常晶粒长大过程中的一种普遍规律<sup>[2]</sup>. 对数坐标系下晶粒平均等体积球半径  $\langle R \rangle$  随时间  $t$  的变化呈抛物线规律, 它表征的晶粒长大指数如图 3 所示, 其中数字表示一定时间阶段内长大指数的平均值. 可见, 晶粒长大指数随时间逐渐升高, 到后期增长到  $n=0.49 \pm 0.01$ , 基本达到理论值  $n=0.5$ , 即仿真晶粒长大已进入经典理论预言的稳态阶段<sup>[2]</sup>. 这表明本仿真算法能够准确地描述完整的正常晶粒长大过程, 而不是如以前算法<sup>[1]</sup> 仿

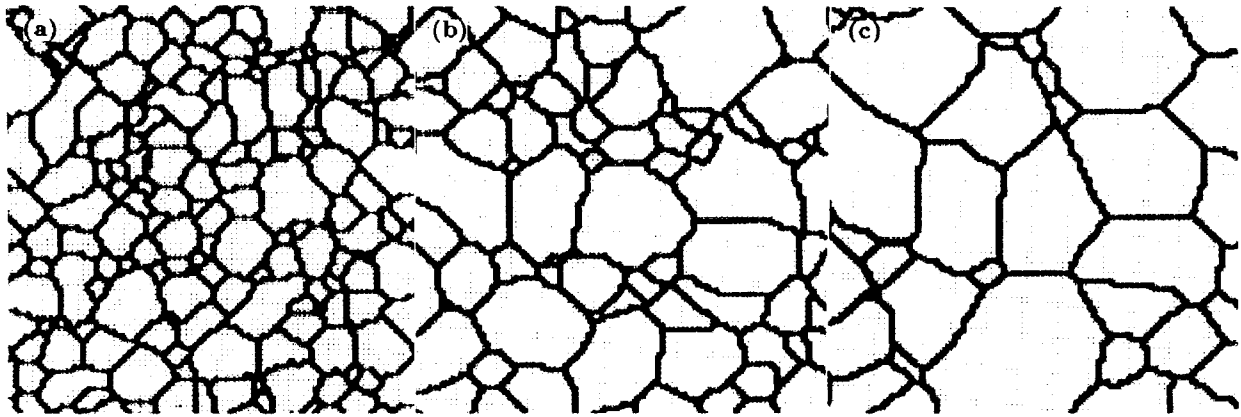


图 2 三维正常晶粒长大长时间仿真过程中一个截面上的显微组织形态及其演变

Fig.2 Cross-sectional observation of microstructural evolution during the three-dimensional grain growth simulation  
(a) 100 MCS (b) 500 MCS (c) 1100 MCS

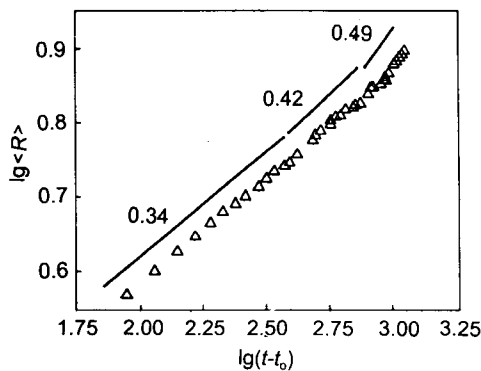


图 3 以三维仿真晶粒平均等体积球半径随时间变化表征的晶粒长大指数

Fig.3 Change of the average grain size with simulation time, where values in the figure indicate the mean exponent of grain growth in certain periods

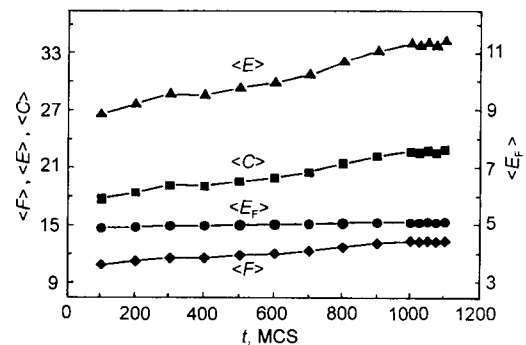


图 4 仿真晶粒平均界面数  $\langle F \rangle$ 、平均晶棱数  $\langle E \rangle$ 、平均角隅数  $\langle C \rangle$  和每界面平均棱数  $\langle E_F \rangle$  随时间的变化

Fig.4 Changes of the average number of grain faces  $\langle F \rangle$ , grain edges  $\langle E \rangle$ , grain corners  $\langle C \rangle$  and edges per face  $\langle E_F \rangle$  with simulation time

真的晶粒长大过程无法达到稳态阶段(晶粒长大指数远低于理论值),从而能够为晶粒长大的仿真、理论和实验的对比性研究提供可靠依据。

### 2.3 晶粒组织的拓扑学演变

利用本三维仿真算法的构造特点,既可以在截面上直接观察到实际晶粒长大过程中存在的拓扑演变现象<sup>[6]</sup>,也可以借助于仿真所得系列截面分析三维拓扑演变微观机理。由于实际不透明材料的三维拓扑参量的实验测量极其困难,文献中相应实验数据相当少<sup>[9-12]</sup>。图 4 给出了本仿真所得组织中晶粒的多种拓扑特征参量均值随时间的变化情况。以下将本仿真结果与已有文献数据进行比较分析。

(1) 晶粒界面的平均棱边数。本仿真测得的每晶粒界面平均棱边数  $\langle E_F \rangle \approx 5.05$  且不随时间而变(图 4)。这与 Al-Sn 合金晶粒的实验值  $\langle E_F \rangle = 5.06$ <sup>[9]</sup> 几乎相同,亦相

当接近于退火纯铁实验值 5.107<sup>[9]</sup> 以及统计理论模型<sup>[3,8,9]</sup> 的  $\langle E_F \rangle$  理论值 5.104; 而与 Kelvin's  $\alpha$ - 或 Williams'  $\beta$ - 十四面体平均晶粒经典模型  $\langle E_F \rangle = 5.143$ <sup>[8]</sup> 比较差别要大一些。

(2) 个体晶粒界面数。就个体晶粒而言,本仿真获得的最小界面数  $F_{\min}$  为 4, 最大界面数  $F_{\max}$  则随晶粒长大时间延长而在 44 — 36 间变化,与实际材料中观测结果相当类似。例如,对经良好退火的工业纯铁和黄铜的实验结果分别为 4 — 23<sup>[9]</sup> 和 7 — 20<sup>[10]</sup>, 高纯铝晶粒长大过程中实验测得个体晶粒界面数为 3 至大于 50<sup>[11]</sup>。

(3) 晶粒平均界面数。如图 4 所示,仿真晶粒平均面数  $\langle F \rangle$ 、平均棱数  $\langle E \rangle$  和平均角隅数  $\langle C \rangle$  分别随时间延长,在 10.8 — 13.3, 26.5 — 34.2, 17.7 — 22.8 范围内变化。因三者之间存在确定的函数关系,以下将仅比较

$\langle F \rangle$ . 文献 [9] 和 [10] 仅给出相当于晶粒长大过程中某时刻的单一测量值, 即工业纯铁  $\langle F \rangle = 13.43^{[9]}$  和黄铜  $\langle F \rangle = 11.16^{[10]}$ . 文献 [11], [12] 则可能是至今仅有的实验测得晶粒平均面数  $\langle F \rangle$ 、平均棱数  $\langle E \rangle$  和平均角隅数  $\langle C \rangle$  值随晶粒长大时间之变化规律的两则研究成果 (专著 [13] 对文献 [12] 实验方法及其结果予以专门介绍和应用): 99.9% 高纯铝在 635 °C 退火 1 min 至 1 h, 采用系列截面法实验测得  $\langle F \rangle$  由大约 9.5 逐渐向某值 (似乎是 14) 趋近, 10 min 时已接近 13<sup>[11]</sup>; 含碳 0.18% 的一种微合金低碳钢奥氏体晶粒组织在 1050 °C 保温 0.5, 1, 10, 30 和 50 min, 用充满空间粒子 disector 法测得其  $\langle F \rangle$  值依次为 12.58, 12.62, 12.99, 13.03, 和 13.38<sup>[12]</sup>. 统计理论模型理论值则为 13.394<sup>[8]</sup>. 可见, 仿真与实验及理论结果相当符合.

据以上几个方面的比较分析结果判断, 本文所用仿真算法和产生的仿真组织是可靠的, 可以用于验证式 (1), 即晶粒表面积随时间的变化速率与界面数之间的理论关系.

### 3 个体三维晶粒长大速率方程的验证

组成仿真组织的每一个立方体微元具有一给定体积和表面积. 取构成一个晶粒界面的所有立方体微元对应的晶界面面积微元之和为该晶粒的晶界总面积  $S$ , 同时采用考察晶界附近微元三维邻居取向种数的方法测定晶粒的界面数  $F$ .

在 10 — 1200 MCS 长时间范围内考察很短时间间隔 (如 25 MCS) 内单个仿真晶粒的表面积变化率, 并记录相应时刻该晶粒具有的界面数, 得到 300 个晶粒的  $dS/dt$  与  $F$  对应数据, 见图 5. 利用最小二乘法对图中单个晶粒的散点数据拟合的结果为:

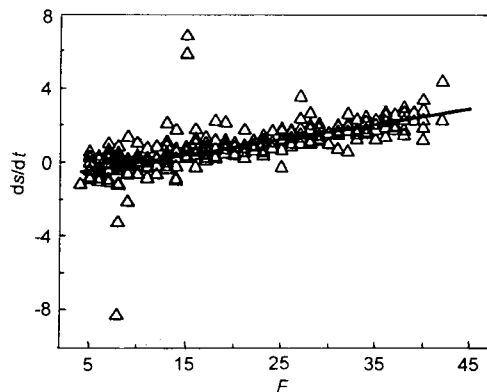


图 5 三维仿真个体晶粒的表面积变化率与界面数之间的关系, 图中  $\Delta$  代表单个晶粒数据

Fig.5 Relation between the change rate of surface area of the simulated individual three-dimensional grains with the number of grain faces. Each  $\Delta$  corresponds to one grain. Toally 300 grains' data are shown

$$\frac{dS}{dt} = 0.09(F - 12.95) \quad (3)$$

其线性相关系数为 0.92, 表明  $dS/dt$  与  $F$  强线性相关, 且该方程不但与理论推导结果式 (1) 函数形式完全一致, 二式中  $F_C$  值亦相当一致 (分别为  $\approx 13.0$  和  $\approx 13.4$ ). 由于  $m$  与  $\gamma$  值未知, 两式中的  $k$  值尚无法比较判断.

由此可知, 三维个体晶粒长大速率与晶粒界面数之间的理论关系, 即式 (1), 无论其函数形式还是式中的  $F_C$  值都是可靠的, 可用于定量描述各向同性晶粒组织中的三维正常个体晶粒长大速率的拓扑依赖性. 另一方面, 本文验证结果也表明, 虽然文献 [3] 在推导式 (1) 时引入的假设“同一晶粒界面的周边棱线处在同一几何平面内”与实际材料组织情况有所差异, 但并未见其所导出的三维个体晶粒长大速率理论方程的正确性有何明显影响.

### 4 结论

提出三维系统晶粒组织及其演变仿真用的一种新的 Monte Carlo 算法, 对由其所得三维晶粒组织动态可视化模型的拓扑学参量及其随时间的变化规律进行了分析, 仿真结果与文献中已有的实际材料实验数据相当符合; 仿真长大过程符合抛物线长大律并已进入稳态长大阶段, 所得组织形态极类似于实际材料组织, 证实了本文仿真算法的可靠性. 在此基础上采用该 Monte Carlo 仿真算法验证了本研究组所推导出的三维个体晶粒长大速率拓扑依赖性理论方程的正确性.

### 参考文献

- [1] Anderson M P, Grest G S, Srolovitz D J. *Philo Mag*, 1989; 59B: 293
- [2] Atkinson H V. *Acta Metall*, 1988; 36: 469
- [3] Yu H B, Liu G Q. *Sci Bull*, 1996; 41: 2000  
(于海波, 刘国权. 科学通报, 1996; 41: 2000)
- [4] Fortes M A. *Scr Mater*, 1997; 37: 679
- [5] Song X Y, Liu G Q, He Y Z. *Prog Nat Sci*, 1998; 8: 92
- [6] Song X Y, Liu G Q. *Scr Mater*, 1998; 38: 1691
- [7] Zhang X Z. *Application of Monte Carlo Method in Statistics Physics*. Zhengzhou: Henan Sci & Technol Press, 1991: 62  
(张孝泽. 蒙特卡罗方法在统计物理中的应用. 郑州: 河南科学技术出版社, 1991: 62)
- [8] Smith C S. *Met Rev*, 1964; 9(33): 1-48
- [9] Liu Guoquan. *J Univ Sci Beijing*, 1987; 9: 29  
(刘国权. 北京科技大学学报, 1987; 9: 29)
- [10] Hull F C. *Mater Sci Technol*, 1988; 4: 778
- [11] Rhines F N, Craig K R. *Metall Trans*, 1974; 5: 417
- [12] Liu G Q, Yu H B, Li W Q. *Acta Stereologica*, 1994, 13: 281
- [13] Kurzydowski K J, Ralph B. *The Quantitative Description of the Microstructure of Materials*. London: CRC Press, 1995: 107, 256, 294