

第二相粒子含量对基体晶粒长大影响的计算机仿真研究 *

宋晓艳¹⁾ 谷南驹¹⁾ 刘国权²⁾ 王宝奇¹⁾

¹⁾ 河北工业大学材料科学与工程学院, 天津 300130

²⁾ 北京科技大学材料科学与工程学院, 北京 100083

摘要 利用作者自行开发和改良的 Monte Carlo 计算机仿真算法, 对含不同数量第二相粒子的虚拟材料基体中三维晶粒长大过程的影响进行了仿真和定量分析。结果表明, 随粒子体积分数增加, 晶粒长大指数下降, 停滞状态的晶粒尺寸分布宽度减小。通过计算机仿真获得了极限晶粒尺寸和粒子参量间的定量关系, 并由几何模型给出了证明。与文献中已有理论模型、计算机仿真及实验结果进行的比较分析表明, 本文所得结果与实测结果符合得更好。

关键词 第二相粒子、三维晶粒长大、计算机仿真

中图法分类号 O242, TP391

文献标识码 A

文章编号 0412-1961(2000)06-0592-05

COMPUTER SIMULATION OF THE INFLUENCE OF SECOND-PHASE PARTICLE QUANTITY ON MATRIX GRAIN GROWTH

SONG Xiaoyan¹⁾, GU Nanju¹⁾, LIU Guoquan²⁾, WANG Baoqi¹⁾

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

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

Correspondent: GU Nanju, professor, Tel: (022)26519701, Fax: (022)26545114,

E-mail: m-inst@hebut.edu.cn

Manuscript received 1999-10-21, in revised form 2000-02-01

ABSTRACT By means of a modified Monte Carlo method newly developed by the present authors, the influence of second-phase particles (SP) of various volume fractions on 3D grain growth process in the matrix of a virtual two-phase material was simulated and quantitatively analyzed. The results show that the grain growth exponent reduces and the grain size distribution at the stagnant state gets narrower with increasing SP volume fraction. A quantitative relation between the limited grain size and the particle parameters was obtained from the present simulation, and being proved by a geometric model. Comparison with the existing theoretical models, simulation results and experiments demonstrates that the present results agree better with experimental ones.

KEY WORDS second-phase particle, three-dimensional grain growth, computer simulation

利用弥散分布的第二相粒子细化晶粒组织已成为工业上常用的手段。关于第二相粒子对基体晶粒长大影响的定量研究对于预报一定条件下复相材料中的晶粒尺寸及尺寸分布具有实用价值。

有关第二相粒子对晶粒长大的影响已有相当多的理论模型^[1-6]。Zener^[1]最早从理论上建立极限晶粒尺寸与粒子尺寸、体积分数间的定量关系, 但大量实验结果^[4,7-9]证明 Zener 公式预测的晶粒尺寸过大。之后, Gladman

考虑晶粒形状^[3]、Hillert 等假定变形的晶界曲面^[2,4,5], Hunderi 等区分粒子在不同位置的钉扎力^[6]等等, 分别建立了极限晶粒尺寸与粒子参量之间的关系。实验研究表明许多理论预测值与测量结果存在较大差距, 这些差异多数来自模型的不合理假设, 也有一部分来自复杂的实验过程带来的误差。因此, 发展有第二相粒子对基体晶粒长大影响的计算机仿真研究是一种辅助研究的有效途径。

迄今对含有第二相粒子的复相材料晶粒长大的计算机仿真研究较少。EXXON 组利用 Monte Carlo 方法进行了复相材料的晶粒长大计算机仿真^[10-12], 但该算法的构成缺乏明确的物理基础, 所得结果尚未得到理论或实验证明。本文利用自行开发的 Monte Carlo 改良算法,

* 国家自然科学基金资助项目 59771070

收到初稿日期: 1999-10-21, 收到修改稿日期: 2000-02-01

作者简介: 宋晓艳, 女, 1970 年生, 博士生

重点研究第二相粒子含量对复相材料晶粒长大的影响, 对仿真结果给予理论分析和证明, 并将其与其它理论和实验研究进行比较。

1 计算机仿真结果与讨论

1.1 不同粒子含量下复相组织形态

图 1 示出粒子不同体积分数 (f_V) 下复相材料晶粒长大到达停滞时的组织形态。可以看到, 随 f_V 增大, 复相材料停滞态的晶粒尺寸减小, 晶粒长大的极限时间 (t_C) 也缩短。由图还可以发现, 随 f_V 增大, 系统内晶粒尺寸分布的均匀性加强, 晶粒形状的规则性也增强了。

1.2 粒子含量对基体晶粒长大动力学的影响

第二相粒子含量对复相材料晶粒长大指数的影响表示在图 2 中, 图中一并示出单相材料平均晶粒尺寸随时间的变化以作比较。与单相材料晶粒长大指数随时间逐渐增长的变化趋势相反, 复相材料的晶粒长大指数随时间逐渐减小, 且 f_V 越大, 相同阶段内长大指数越小, 其趋于 0 的时间越短。

图 3 示出不同 f_V 下复相材料停滞态的晶粒尺寸分布。可见 f_V 越大, 晶粒尺寸分布宽度越小, 峰值越高。这是因为, 随着粒子在基体中弥散程度的加强, 均匀分布的粒子对晶粒长大的总体阻碍作用增强, 系统晶粒, 包括大尺寸晶粒, 很快被周围粒子稳定钉扎, 致使系统中晶粒尺寸分布范围较窄。

1.3 极限晶粒尺寸与第二相粒子参量间的关系

第二相粒子阻碍晶粒长大的众多理论模型虽然具有不同的物理或几何基础, 但所预测的极限晶粒尺寸与粒子参量的关系可以写成通式

$$R_C = C_P \frac{r}{f_V^{n_p}} \quad (1)$$

其中 R_C 为极限晶粒尺寸, r 为粒子半径, C_P 和 n_p 为常数。最早的 Zener 模型^[1] 及其后一些分析模型^[3,14] 认为 $n_p=1$, 但其它大量的理论^[4-7,15]、实验^[4,7-9] 和计算机仿真^[10-12,16] 均得到 $n_p < 1$ 的结果, 例如: $n_p=0.93$ ^[5]、 $1/2$ ^[7,15]、 $1/2-1/3$ ^[9]、 $1/3$ ^[5,12,16] 等。有关 n_p 的确切数值至今仍然存在争议。

本仿真研究所得 R_C 与 r , f_V 的关系示于图 4, 为确定 n_p 数值, 采用了对数坐标系, 利用最小二乘法拟合的结果为

$$\lg(R_C/r) = 0.4773 - 0.311 \lg f_V \quad (2)$$

相关系数为 0.985。上式可进一步写成

$$R_C = 3.0012 \frac{r}{f_V^{0.31}} \quad (3)$$

即 $n_p=0.31$ 。

Hellman 和 Hillert 最早建立了第二相粒子与基体晶粒交互作用的几何模型^[4], 认为当粒子体积分数较大时,

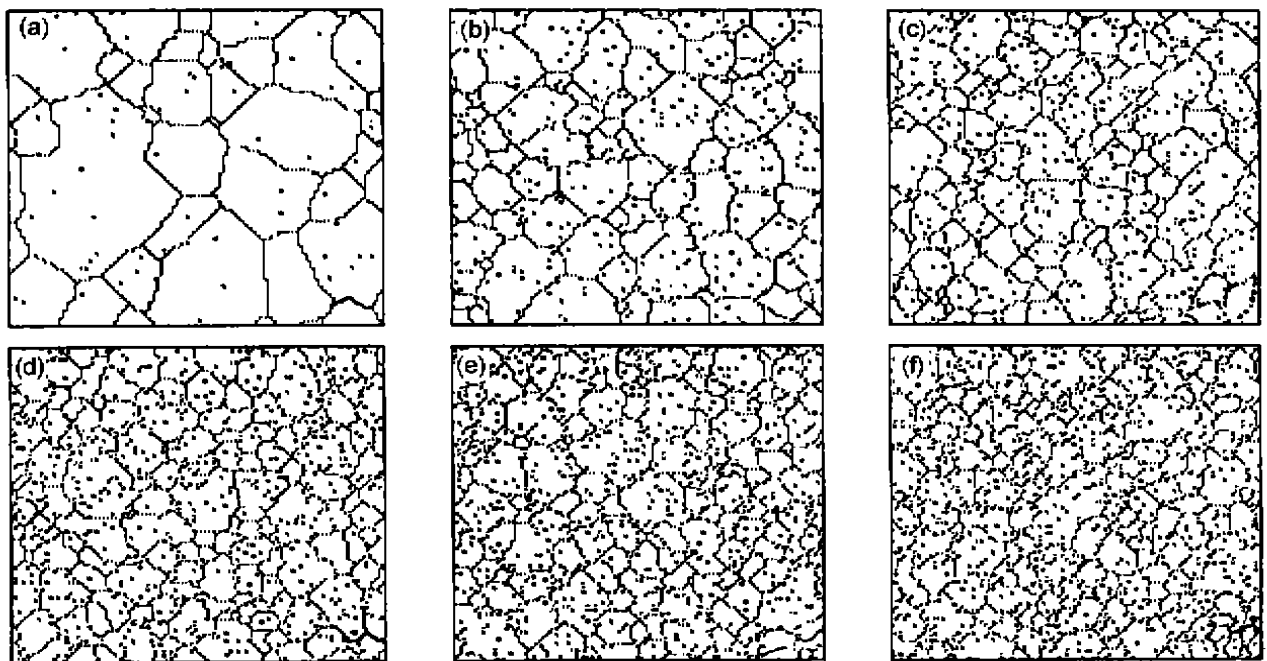


图 1 不同粒子体积分数下复相材料晶粒长大停滞时的组织形态

Fig.1 Microstructures at grain growth stagnation in materials with various volume fractions of second phase (f_V and t_C represent the volume fraction and the limited grain growth time respectively)

- (a) $f_V=0.01$, $t_C=3100$ MCS (b) $f_V=0.05$, $t_C=1000$ MCS (c) $f_V=0.08$, $t_C=750$ MCS
 (d) $f_V=0.10$, $t_C=700$ MCS (e) $f_V=0.12$, $t_C=600$ MCS (f) $f_V=0.15$, $t_C=500$ MCS

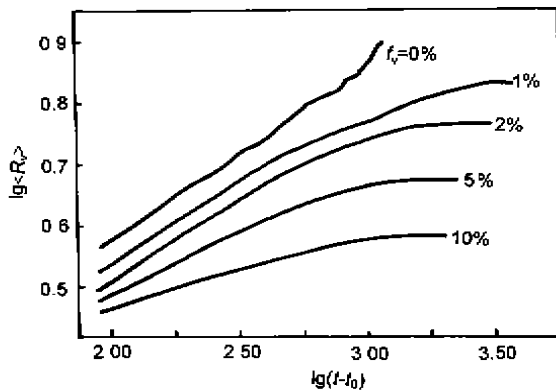


图2 不同粒子体积分数的复相材料中平均晶粒尺寸随时间的变化, t_0 代表形成充满空间的复相组织的起始时间
 Fig.2 Changes of the average grain size with simulating time for different f_v , where t_0 represents the time when the two-phase space-filling microstructure first forms

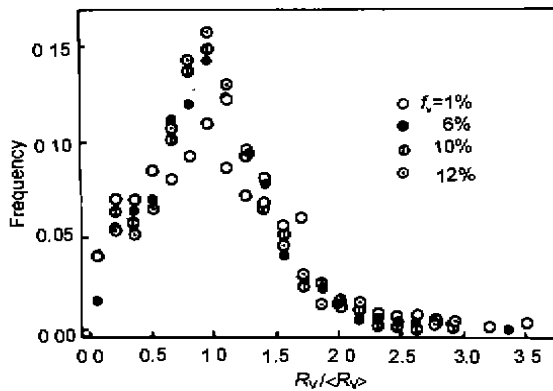


图3 不同粒子体积分数的复相材料中停滞状态的晶粒尺寸分布
 Fig.3 Grain size distributions at grain growth stagnation for different f_v

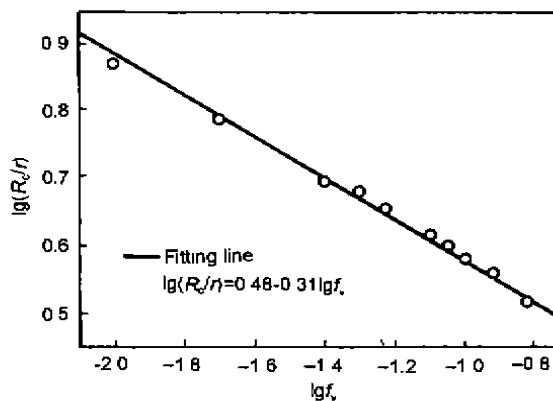


图4 仿真得到的 $\lg(R_C/r)$ 与 $\lg f_v$ 之间的关系
 Fig.4 Simulation result of relation between $\lg(R_C/r)$ and $\lg f_v$

如果晶粒每个角隅存在一个粒子, 则可被稳定钉扎. 假设晶粒为十四面体形状 (共 24 个角隅), 并考虑角隅处四晶

粒间的共享效应, 得到关系^[4]

$$R_C = 6^{\frac{1}{3}}(r/f_v^{\frac{1}{3}}) \quad (4)$$

上述关系因来源于纯粹的几何假设而一直没有受到重视, 而且近年的仿真结果^[11,12,16]已证明此假设并不合理. 首先分析复相材料晶粒长大过程处于停滞时起到钉扎作用的第二相粒子数量及分布特征. 设 n_b , n_e 和 n_c 分别为停滞态位于系统平均晶粒晶界面、晶棱和角隅的粒子个数, n_{pin} 为停滞态平均每个晶粒中起到钉扎作用的粒子总数, 因考虑整个复相材料微观组织的共享效应, n_{pin} 与 n_b , n_e , n_c 三者之和并不严格相等. 以上四个参量与粒子体积分数的关系示于图 5 中. 可见, 四个参量均随 f_v 增加而增大, 但当 f_v 较大时, 随 f_v 增长速度非常缓慢, 并分别趋于稳定数值: $n_b=14$, $n_e=9$, $n_c=3$, $n_{pin}=22$. 由此可以想到, 继续增加第二相粒子数量时, 对系统平均晶粒而言, 真正阻碍其扩展晶界运动的粒子数目将基本保持不变. 不考虑共享效应时可近似认为, 晶粒长大停滞时系统平均晶粒的晶界面、晶棱和角隅最多分别有 14, 9 和 3 个粒子钉扎.

设复相材料单位体积内所含第二相粒子总数为 n_v , 晶粒总数为 N_v , 则

$$n_v = \frac{f_v}{V_p} \quad (5)$$

$$N_v = \frac{1}{V_G} \quad (6)$$

其中, V_p 和 V_G 分别为粒子和基体晶粒的平均体积. 如以等体积球半径表示粒子和基体晶粒的三维尺寸, 忽略两者尺寸分布的影响, 则有

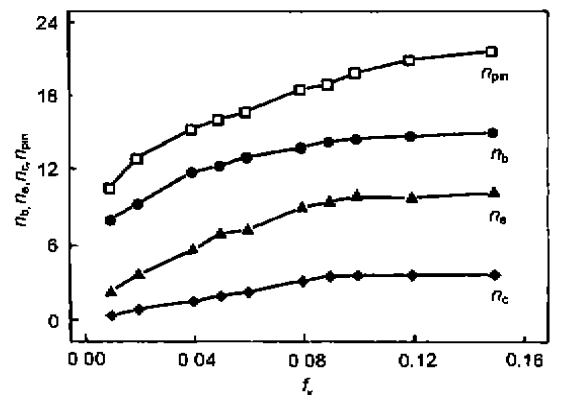


图5 晶粒生长停滞态下位于平均晶粒的晶界面 (n_b)、晶棱 (n_e)、角隅 (n_c) 的粒子数, 及起钉扎作用的平均粒子总数 (n_{pin}) 随 f_v 的变化
 Fig.5 Numbers of SP locating at interfaces (n_b), edges (n_e) and corners (n_c) of the average grain in the system, and n_{pin} , the averaged total number of SP pinned one grain at the grain growth stagnation state, vary with the volume fraction of SP in the system, f_v

$$V_P = \frac{4}{3}\pi r^3 \quad (7)$$

$$V_G = \frac{4}{3}\pi R_V^3 \quad (8)$$

设 P_{pin} 为复相材料晶粒长大停滞时, 起钉扎作用的第二相粒子个数占系统粒子总数的百分数, 结合前面定义的参量, 下列关系成立

$$\frac{n_V \times P_{pin}}{N_V} = n_{pin} \quad (9)$$

代入式 (5) — (8), 并考虑到停滞态下系统晶粒平均尺寸 R_V 即为极限晶粒尺寸 R_C , 以及第二相粒子大小均匀时, 其平均尺寸可用单个粒子尺寸代替, 式 (9) 等价于

$$R_C = \left(\frac{n_{pin}}{P_{pin}}\right)^{\frac{1}{3}} \frac{r}{f_V^{\frac{1}{3}}} \quad (10)$$

n_{pin} 和 P_{pin} 均随 f_V 增加而增大, 如图 6 所示, 但比值 n_{pin}/P_{pin} 随 f_V 增长的速度极为缓慢, 利用最小二乘法拟合的结果为

$$\frac{n_{pin}}{P_{pin}} = 28.95 f_V^{0.06} \quad (11)$$

相关系数为 0.99. 拟合曲线 (图 6) 表明 n_{pin}/P_{pin} 为 f_V 的弱函数, 此比值的立方根对 f_V 的变化更加不敏感, 即

$$\left(\frac{n_{pin}}{P_{pin}}\right)^{\frac{1}{3}} = 3.07 f_V^{0.02} \quad (12)$$

由图 6 可以看到, 在 f_V 变化区间 $(n_{pin}/P_{pin})^{1/3}$ 基本上保持常数, 其值约为 3. 利用式 (11) 或式 (12) 的结果, 式 (10) 转化为

$$R_C = 3.07 \frac{r}{f_V^{0.31}} \quad (13)$$

或直接利用 $(n_{pin}/P_{pin})^{1/3} \approx 3.00$ 的结果, 得到关系

$$R_C = 3.00 \frac{r}{f_V^{1/3}} \quad (14)$$

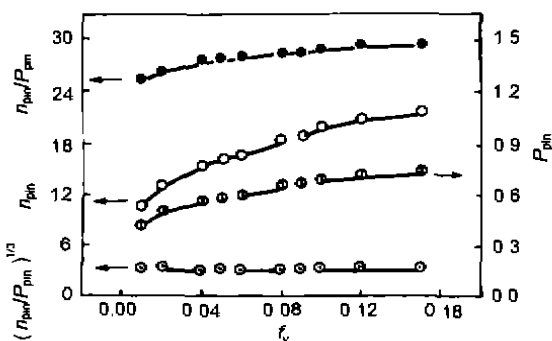


图 6 参量 n_{pin} , P_{pin} , n_{pin}/P_{pin} 和 $(n_{pin}/P_{pin})^{1/3}$ 与 f_V 的关系

Fig.6 Relation between n_{pin} , P_{pin} , n_{pin}/P_{pin} , $(n_{pin}/P_{pin})^{1/3}$ and f_V

式 (13) 或式 (14) 与对仿真过程定量分析所得的经验关系式 (3) 是非常接近的.

几何模型虽然没有给出粒子钉扎阻力的表达式, 但其建立考虑到阻碍晶界面、三晶棱和四晶交点运动的粒子数目达到一定值时, 系统晶粒长大中止, 此观点与单位晶界的驱动力不足以克服逐渐增大的单位晶界上粒子钉扎力时, 晶粒长大即发生停滞的物理基础一致, 与没考虑钉扎粒子个数变化规律的早期几何模型^[4]不同.

考虑到粒子与基体晶粒在三维空间结合位置的几何模型很少, 其预测结果^[4,6]与本仿真及实验数据的比较示于图 7. 实验数据来自 Hellman^[4], Anand^[7] 和 Syn^[17] 的三种碳钢及 Olgaard^[9] 的 $CaCO_3$ 基体 + Al_2O_3 粒子的复相材料, 其中 f_V 的范围为 0.01—0.20. 为增强可比性, 取 R_C 与 r 的相对值. 由图可见, 本仿真与实验结果符合较好. Hellman 和 Hillert 模型^[4]的预测值偏低, 由仿真结果可知, 其假设的使晶粒长大停滞需要位于四晶点处的钉扎粒子数目过多. Hunderi 等的模型^[6]在 f_V 较大时预测结果比较接近实验值, 但在 f_V 较小时远高于测量值. 该模型虽然分别计算了粒子位于晶界面、三晶棱和四晶点处的钉扎力, 但没有区分粒子在这些位置的不同分布概率, 此种影响在 f_V 较小时显得尤为重要.

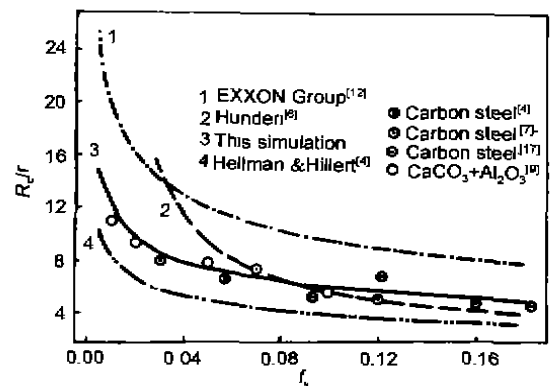


图 7 本文仿真结果与已有理论、实验及仿真结果的比较

Fig.7 Comparison of the present results with existing theoretical models, simulation results and experiments

2 结论

(1) 复相材料的晶粒长大指数随时间逐渐减小, 且粒子体积分数越大, 相同阶段内长大指数越小, 其趋于 0 的时间越短.

(2) 随粒子体积分数增大, 系统内晶粒形状的均匀性增强; 晶粒长大停滞态的尺寸分布宽度减小.

(3) 由仿真结果拟合得到晶粒长大极限尺寸 R_C 与第二相粒子半径 r 、体积分数 f_V 之间符合关系 (仿真进行

的范围 $0.01 \leq f_V < 0.20$)

$$R_C = 3.0012 \frac{r}{f_V^{0.31}}$$

并由相应的几何模型给出证明。

(4) 仿真结果与多种实验数据的比较表明, 本文所得极限晶粒尺寸与粒子参量间的关系较以往几何模型更符合实测结果。

参考文献

- [1] Zener C. *Trans AIME*, 1948; 175: 15
- [2] Hillert M. *Acta Metall*, 1965; 13: 227
- [3] Gladman T. *Proc R Soc A*, London, 1966; 294: 298
- [4] Helfman P, Hillert M. *Scandinavian. J Metall*, 1975; 4: 211
- [5] Hillert M. *Acta Metall*, 1988; 36: 3177
- [6] Hunderi O, Ryum N. *Acta Metall Mater*, 1992; 40: 543
- [7] Anand L, Gurland J. *Metall Trans*, 1975; 6A: 928
- [8] Tweed C J, Hansen N, Ralph B. *Metall Trans*, 1983; 14A: 2235
- [9] Olgaard D L, Evans B. *J Am Ceram Soc*, 1986; 69C: 272
- [10] Srolovitz D J, Grest G S, Sahni P S. *Acta Metall*, 1984; 32: 1429
- [11] Doherty R D, Srolovitz D J, Rollett A D, Anderson M P. *Script Metall*, 1987; 21: 675
- [12] Anderson M P, Grest G S, Doherty R D, Srolovitz D J. *Script Metall*, 1989; 23: 753
- [13] Song X Y, Liu G Q, Gu N J. *Acta Metall Sin*, 1999; 35: 565
(宋晓艳, 刘国权, 谷南驹. 金属学报, 1999; 35: 565)
- [14] Rios P R. *Acta Metall*, 1987; 35: 2805
- [15] Haroun N A. *J Mater Sci*, 1980; 15: 2816
- [16] Hazzledine P M, Oldershaw R D J. *Philo Mag*, 1990; 61A: 579
- [17] Syn C K, Lesuer D R, Sherby O D. *Metall Mater Trans*, 1994; 25A: 1481