

基于晶粒长大拓扑依赖性的准稳态三维晶粒尺寸分布*

王超 刘国权 于海波

(北京科技大学材料科学与工程学院, 北京 100083)

摘要 基于三维个体晶粒表面积的变化率与晶粒拓扑性质之间的定量关系和晶粒尺寸-面数关系的假设, 推导了一个拓扑相关的个体晶粒长大速率方程. 该方程表明, 个体晶粒的尺寸变化率不仅与其自身尺寸有关, 而且也与拓扑特征有关. 在此基础上, 借鉴最新的关于粒子粗化理论中的晶粒长大连续方程, 对三维晶粒长大过程准稳态阶段的晶粒尺寸分布进行了求解. 结果显示, 所得准稳态三维晶粒尺寸分布是一个单参数函数族. 该结论得到了顶点法、基元演化法、相场模型和 Monte Carlo 法这 4 种晶粒长大仿真方法所得三维准稳态晶粒尺寸分布数据的支持.

关键词 晶粒长大, 晶粒尺寸分布, 准稳态, 计算机仿真

中图分类号 TG111.7, TP391 **文献标识码** A **文章编号** 0412-1961(2004)12-1233-05

QUASI-STATIONARY THREE-DIMENSIONAL GRAIN SIZE DISTRIBUTION WITH TOPOLOGY-DEPENDENCY OF GRAIN GROWTH

WANG Chao, LIU Guoquan, YU Haibo

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

Correspondent: LIU Guoquan, professor, Tel: (010)62334012, Fax: (010)62327283,

E-mail: g.liu@ustb.edu.cn or wangchaoyu@etang.com

Supported by National Natural Science Foundation of China (Nos.50171008 and 50334010)

Manuscript received 2003-10-10, in revised form 2004-02-05

ABSTRACT A new topology-related individual grain growth rate equation was derived under the assumption of the **statistical** grain model. It depicts that the changing rate of grains is related to the grain size and topological properties. The continuity equation from the particle coarsening theory was adapted to grain growth. Based on the grain growth rate equation and the continuity equation, an asymptotic solution was obtained. The solution is an one-parameter family of distributions other than a unique distribution function, which is supported by quasi-stationary grain size distributions obtained from simulations of vertex model, surface evolver, phase-field model and Monte Carlo method.

KEY WORDS grain growth, grain size distribution, quasi-stationary state, computer simulation

众多的晶粒长大模型中, Hillert 晶粒长大理论^[1]被广泛接受. 这是一种平均场理论, 并且认为晶粒长大过程是一个尺寸流过程, 个体晶粒的长大或缩小完全取决于其尺寸. 然而, Hillert 提出的三维晶粒长大准稳态晶粒尺寸分布至今未能被实验或仿真研究结果证明.

拓扑特征与演变对晶粒长大有重要意义^[2]. 在二维晶粒长大研究中, 表述晶粒面积变化速率与晶粒边数之间定量关系的 Nuemann-Mullins 方程^[2,3]得到了实验验证和广泛认可; 而三维晶粒长大研究中, 文献中尚无可靠

的拓扑相关晶粒长大的类似模型. 于海波和刘国权等在采用线性假设、均一性假设和局域平衡假设^[4]的基础上, 采用三晶棱线积分的间接积分的方法获得的三维个体晶粒长大速率与晶界面积之间的定量近似关系则视为三维晶粒长大的拓扑依赖性方程^[5-7], 并在此基础上建立起一种统计晶粒长大模型, 初步解得对应的三维准稳态晶粒尺寸分布^[5]. 由于后者多方面交互验证难度极大, 相关内容至今没有正式发表.

近年来, 三维晶粒长大仿真研究成果为验证有关理论模型的合理性创造了有利条件, 本文作者采用其它途径进行的三维晶粒长大理论探索^[8]亦使不同理论模型的相互验证得以实现. 在此基础上, 本文将三维个体晶粒长大速率-晶界面积相关性和三维个体晶粒尺寸-界面数相关性有机结合, 推导出一个拓扑相关的晶粒长大速率方程,

* 国家自然科学基金项目 50171008 和 50334010 资助

收到初稿日期: 2003-10-10, 收到修改稿日期: 2004-02-05

作者简介: 王超, 女, 1972 年生, 博士

再以此为出发点对三维准稳态晶粒尺寸分布 (grain size distribution, 以下简称 GSD) 进行了求解, 同时把所得结果与仿真实验结果进行了比较研究.

1 个体晶粒长大速率方程的推导

假设包括以下两个方面:

(1) 三维个体晶粒晶界面积的变化率与晶粒拓扑性质之间的定量关系^[7]如下

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

式中, S 为晶粒的表面积, m 为晶界迁移率, σ 为晶界能常数, k 为积分常数, F 和 F_c 分别为晶粒面数和临界晶粒面数. 该式首先由理论方法近似导出, 并为计算机仿真研究所证实^[7]. 其意义为: 面数大于 F_c 的晶粒发生长大, 面数小于 F_c 的晶粒发生收缩, 面数为 F_c 的晶粒尺寸无变化.

(2) 三维晶粒尺寸 (等体积球半径) 与拓扑量之间的统计关系^[5]如下

$$F = \beta + 2\beta \frac{\langle R \rangle R}{\langle R^2 \rangle} + \beta \frac{R^2}{\langle R^2 \rangle} \quad (2)$$

式中, R 为晶粒的尺寸, 在三维系统中通常以等体积球半径表示; F 为 R 尺寸组晶粒的平均界面数; β 是一个与晶粒组织特征有关的常数, 且随晶粒长大过程的进行而变化; $\langle R \rangle$ 和 $\langle R^2 \rangle$ 分别为所有晶粒 R 和 R^2 的平均值. 该式源于低碳钢奥氏体晶粒组织的实验测量, 亦可由球晶粒模型导出^[5].

设个体晶粒的表面积 S 与其等体积球半径 R 之间存在如下关系

$$S = \alpha R^2 \quad (3)$$

式中, α 为形状因子. 结合式 (1), 则应有

$$\frac{dR^2}{dt} = \frac{k}{\alpha} m\sigma(F - F_c) \quad (4)$$

将式 (2) 代入式 (4), 得

$$\frac{dR^2}{dt} = \frac{k}{\alpha} m\sigma \left(\beta + 2\beta \frac{\langle R \rangle R}{\langle R^2 \rangle} + \beta \frac{R^2}{\langle R^2 \rangle} - F_c \right) \quad (5)$$

在晶粒长大过程中, 系统的总体积守恒, 即 $dV/dt=0$. 设 $F_s = F_s(R, t)$, 为晶粒尺寸分布函数 (与 F 和 F_c 表示晶粒拓扑量不同, F_s 用于表示晶粒尺寸分布函数, 下标 s 表示尺寸 (size)); $V = \alpha_1 R^3$, 为个体晶粒体积 (α_1 亦称为形状因子). 将式 (5) 两端同乘 $\alpha_1(3/2)RF_s(R, t)dR$, 然后在其两端对所有晶粒尺寸 R 积分, 并考虑到 $F_s(R, t)$ 的归一性, 可得 F_c 与 β 的如下关系^[5]

$$F_c = \beta \left(3 + \frac{\langle R^3 \rangle}{\langle R^2 \rangle \langle R \rangle} \right) \quad (6)$$

可以获得

$$\frac{dR}{dt} = \frac{k(F_c - \beta)m\sigma}{2\alpha} \left[\frac{\beta}{F_c - \beta} \left(\frac{R + 2\langle R \rangle}{\langle R^2 \rangle} \right) - \frac{1}{R} \right] \quad (7)$$

此即导出的三维个体晶粒长大的速率方程. 它表明个体晶粒尺寸的时间变化率不仅与其尺寸密切相关, 而且与 F_c 和 β 相关, 即与组织的拓扑特征相关.

引入相对晶粒尺寸 $u = R/\langle R \rangle$, 相对晶粒尺寸的时间变化率

$$g = \frac{du}{dt} = \frac{d\langle R \rangle}{\langle R \rangle dt} \left[\frac{dR}{dt} \frac{dt}{d\langle R \rangle} - u \right] \quad (8)$$

将式 (7) 代入式 (8), 得

$$\frac{du}{dt} = \frac{2d\langle R \rangle}{\langle R \rangle dt} \frac{1}{2u} \left[\left(\frac{\nu\xi}{u_2} - 1 \right) u^2 + \frac{2\nu\xi}{u_2} u - \nu \right] \quad (9)$$

式中, 参数 ν 为尺寸因子, 对尺寸分布函数的形状具有决定作用, $\nu = (F_c - \beta)/(2\alpha\langle R \rangle \frac{d\langle R \rangle}{dt}) km\sigma$, $\xi = \beta/(F_c - \beta)$, $u_2 = \langle R^2 \rangle / \langle R \rangle^2 = \langle u^2 \rangle$. 令 $a = \nu\xi/u_2$, $b = 2\nu\xi/u_2$, $c = -\nu$. 则式 (9) 可简化为

$$g = \frac{du}{dt} = \frac{2d\langle R \rangle}{\langle R \rangle dt} T(u) \quad (10)$$

式中, $T(u) = (au^2 + bu + c)/(2u)$, $T(u)$ 包含了 F_c , β , ν 和 u_2 等多个参量. 式 (10) 即为本文作者获得的三维相对晶粒尺寸的速率方程, 是以 F_c , β , ν 和 u_2 为参数的函数.

2 连续方程的准稳态求解

2.1 晶粒长大连续方程

Hillert 晶粒长大理论认为晶粒长大过程是一个尺寸流过程, 而个体晶粒的长大或缩小完全取决于其尺寸, 晶粒尺寸的时间变化率满足方程

$$\frac{dR}{dt} = \alpha m\sigma \left(\frac{1}{R_{cr}} - \frac{1}{R} \right) \quad (11)$$

式中, $R_{cr} = \langle R^2 \rangle / \langle R \rangle$, 为临界晶粒尺寸. 以个体晶粒长大速率方程为基础, Hillert 采用经典粒子粗化理论中的晶粒长大连续方程

$$\frac{dF_s}{dt} = -\frac{\partial}{\partial R} \left(F_s \frac{dR}{dt} \right) \quad (12)$$

解得其唯一形式的三维准稳态晶粒尺寸分布^[1]

$$f(r) = \frac{3r(2e)^3 \exp[6/(r-2)]}{(2-r)^5} \quad (13)$$

式中, $r = R/R_{cr}$, $e=2.72828\cdots$. 该式极少得到仿真结果或实验结果的证实. 这很可能与其使用的晶粒长大连续方程未能全面考虑晶粒长大有关因素^[2]有关.

Brown 对经典粒子粗化理论进行了修正^[9], 且其合理性得到 Coughlan 和 Fortes 工作的证实^[10]. 他们认为, 在粒子粗化过程中, 准稳态形式的粒子尺寸分布不是

只有一种形式，而是具有多种形式。本文将采用他们根据“晶粒流”特征推导的晶粒长大连续方程求解准稳态晶粒尺寸分布。

2.2 晶粒长大连续方程的准稳态求解

晶粒长大准稳态是指晶粒长大演化至一定阶段后，其相对晶粒尺寸分布的形式将保持不变，而平均晶粒尺寸仍不断增加的长大状态。

在粒子粗化（或晶粒长大）过程中，粒子相对尺寸分布 $f(= f(u, t))$ 连续变化，可由如下连续方程 [9] 描述

$$\frac{\partial f}{\partial t} = -(fg)_{u=0}f - \frac{\partial(fg)}{\partial u} \quad (14)$$

该方程根据晶粒长大过程中“晶粒流”特征推导而来，能够准确反映晶粒尺寸分布变化的特征。同时， $f(u, t)$ 还必须满足以下两个约束条件

$$\int_0^{u_m} f(u, t)du = 1 \quad (15)$$

$$\int_0^{u_m} uf(u, t)du = 1 \quad (16)$$

式中， u_m 为系统中 u 的最大值。

以下通过对式 (14) 的求解获得准稳态下的晶粒尺寸分布形式。

当晶粒长大演化至准稳态长大阶段时，以相对晶粒尺寸表示的晶粒尺寸分布 $f(u, t)$ 的形式将不随时间变化，即 $\partial f/\partial t=0$ 。相应式 (14) 变为

$$-(fg)_{u=0}f = \frac{\partial(fg)}{\partial u} \quad (17)$$

将 g 由式 (10) 代入式 (17)，有 $-(fT)_{u=0}f = (\partial(fT))/(\partial u)$ 。令 $H(u) = -f(u)T(u)$ ，则

$$H(u) = H_0 \exp\left(H_0 \int_0^u \frac{1}{T} du\right) \quad (18)$$

$$f(u) = \frac{-H_0 \exp\left(H_0 \int_0^u \frac{1}{T} du\right)}{T} \quad (19)$$

式中

$$H_0 = \frac{\nu}{2} \lim_{u \rightarrow 0} \left(\frac{f(u)}{u} \right)$$

式 (19) 的具体形式依赖于 H_0 的取值以及 $\Delta = b^2 - 4ac$ 。

$$f(u) = \left(-\frac{H_0}{T} \right) \left(\frac{au^2 + bu + c}{c} \right)^{H_0/a} \exp \left[\frac{2b}{a\sqrt{-\Delta}} \left(\arctan \frac{b}{\sqrt{-\Delta}} - \arctan \frac{b + 2au}{\sqrt{-\Delta}} \right) \right] \quad (\Delta < 0) \quad (20a)$$

$$f(u) = \left(-\frac{H_0}{T} \right) \left(\frac{au^2 + bu + c}{c} \right)^{H_0/a} \exp \left(\frac{-4uH_0}{2au + b} \right) \quad (\Delta = 0) \quad (20b)$$

$$f(u) = \left(-\frac{H_0}{T} \right) \left(\frac{au^2 + bu + c}{c} \right)^{H_0/a} \left(\frac{u(b - \sqrt{\Delta}) + 2c}{u(b + \sqrt{\Delta}) + 2c} \right)^{b/(a\sqrt{\Delta})} \quad (\Delta > 0) \quad (20c)$$

考虑到 a, b, c 的定义， $f(u)$ 是关于 F_c, β, u_2, ν 和 H_0 的多参量函数。实际上，当晶粒长大演化至准稳态长大阶段时，结构参数 β 趋近于常数 3.1，临界晶粒面数保持在 13.39 左右几乎不变，参量 $u_2 = \langle u^2 \rangle$ ，即 $u_2 = \int_0^{u_m} f(u)u^2 du$ ，同时考虑到约束条件式 (式 (15, 16) 能够自动满足)，采用数值积分可以确定式 (20) 中 H_0 的取值，见图 1。可以看出， H_0 与 ν 之间是一一对应的，只要 ν 确定， H_0 即可唯一确定。而 Δ 的取值与 ν 的取值之间也是相互对应的： $\Delta=0$ ，相应于 $\nu=2.92$ ， u 的取值范围为 (0, 3)； $\Delta > 0$ ，相应于 $\nu > 2.92$ ， u 的最大值小于 3；而 $\Delta < 0$ ，则相应于 $\nu < 2.92$ ， u 的取值范围为 (0, +∞)。因此，式 (20) 是一组以 ν 为单参量的函数族。显然，准稳态晶粒长大条件下的晶粒尺寸分布形式不是唯一的一种形式，而是存在多种可能的尺寸分布形式。式 (20) 的曲线形式见图 2。

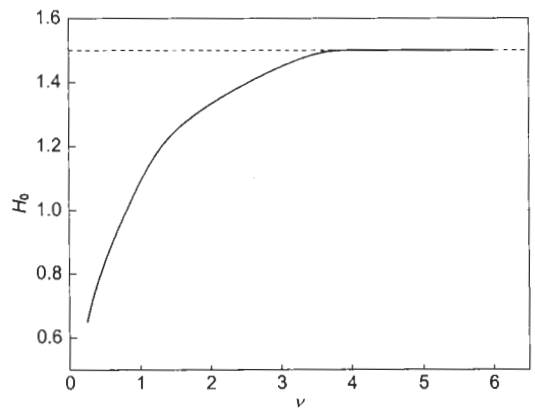


图 1 $H_0 - \nu$ 关系曲线
Fig.1 Curve of H_0 vs ν

3 解析解与仿真结果的比较

从图 2 看出，在 $\nu < 2.92$ (图 2a) 范围内，晶粒长大尺寸分布的范围相当大，曲线表现为峰值左偏；当 $\nu \geq 2.92$ 后，在 ν 较小时，曲线表现为峰值左偏，而在 ν 取较大值时，曲线表现为峰值右偏，但相应的晶粒尺寸的最大值均小于 3。同时，在实际晶粒组织中，相对晶粒尺寸（对平均晶粒尺寸进行归一）的最大值一般在 3 左右。

在实验中，不仅三维晶粒尺寸分布的测量比较困难，而且能演化到准稳态长大状态的试样的获得也非常困难。近年来发展起来的多种图像仿真方法，可以再现晶粒长大过程，而且便于表征显微组织特征。其中，顶点法 (vertex dynamics method)[11]、基元演化法 (surface evolver)[12]、相场模型 (phase field model)[13] 和 Monte Carlo 法 [14] 是非常典型的，并且已为众多研究者所认

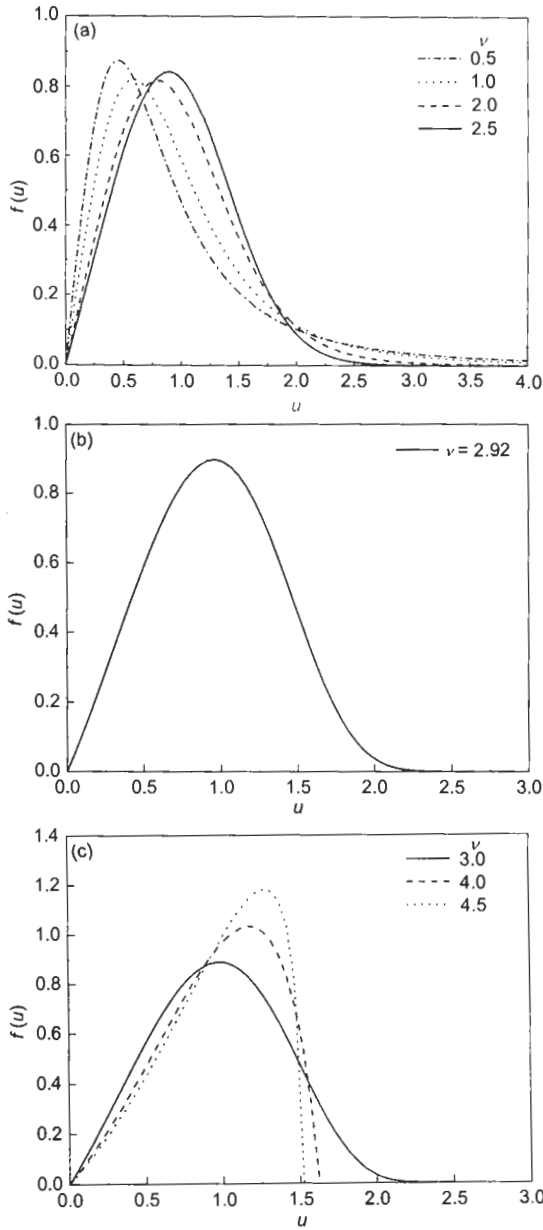


图 2 不同 ν 值的晶粒尺寸分布曲线 (式 (20))

Fig.2 Curves of grain size distribution for different ν values
(a) $\nu < 2.92$ (b) $\nu = 2.92$ (c) $\nu > 2.92$

可. 采用式 (20a) 分别对这 4 种方法所得的准稳态 GSD 进行最小二乘拟合 (见图 3). 在图 3 中, ν 的拟合值分别为 3.73, 3.47, 3.07 和 3.19, 拟合曲线与仿真所得晶粒尺寸分布 (GSD) 非常接近. 为了比较, 在图上还给出了 Hillert 分布的曲线形式 (虚线), 可见采用 Hillert 分布来描述这 4 种不同仿真方法所获得的准稳态晶粒尺寸分布都是不合适的. 仿真所得的准稳态 GSD 可以由 $\nu > 2.92$ 的解析分布近似表示, 并且不同仿真方法获得的 GSD 可由不同 ν 值的解析分布表示, 即可以存在多种不同 ν 值的准稳态晶粒尺寸分布状态. 至于 $\nu < 2.92$ 的解析形式是否具有实际的物理含义, 目前仍不清楚.

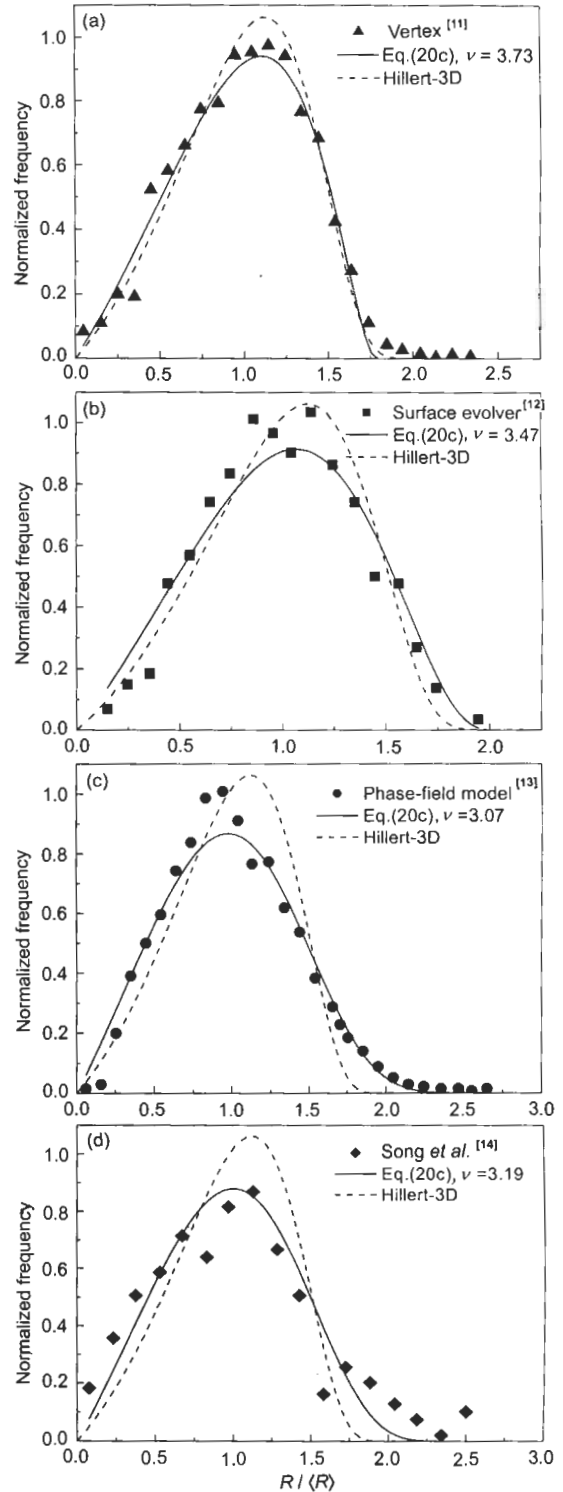


图 3 解析式与不同仿真方法获得的三维准稳态晶粒尺寸分布的比较

Fig.3 Comparisons of the analytical distribution with the different simulated quasi-stationary grain size distributions in three dimensions

- (a) vertex dynamics method
- (b) surface evolver
- (c) phase field model
- (d) Monte Carlo method

4 结论

以三维个体晶粒晶界面积的变化率与晶粒拓扑性质之间的定量关系，以及三维晶粒组织的晶粒尺寸 - 晶粒面数间的抛物线型关系为基础，推导了一个与晶粒拓扑特征相关的个体晶粒长大速率方程。在此基础上，借鉴粒子粗化理论中的晶粒长大连续方程，对三维准稳态晶粒尺寸分布进行了求解，获得了一个含有单参量的解析函数。发现可能存在多种准稳态晶粒尺寸分布形式，而不是 Hillert 原始理论模型所预报的唯一一种。文献中顶点法、基元演化法、相场模型和 Monte Carlo 法这 4 种晶粒长大仿真方法所得三维准稳态晶粒尺寸分布数据均支持上述结论。

参考文献

- [1] Hillert M. *Acta Metall*, 1965; 13: 227
- [2] Atkinson H V. *Acta Metall*, 1988; 36: 469

- [3] Mullins W W. *J Appl Phys*, 1956; 27: 900
- [4] Fradkov V E, Udler D. *Adv Phys*, 1994; 43: 739
- [5] Yu H B. *PhD Thesis*, University of Science and Technology Beijing, 1997
(于海波. 北京科技大学博士学位论文, 1997)
- [6] Yu H B, Liu G Q. *Chin Sci Bull*, 1996; 41: 2000
(于海波, 刘国权. 科学通报, 1996; 41: 2000)
- [7] Liu G Q, Yu H B, Song X Y, Qin X G. *Mater Design*, 2001; 22: 33
- [8] Wang C, Liu G Q. *Sci Chin*, 2004; 47E: 112
- [9] Brown L C. *Acta Metall*, 1989; 37: 71
- [10] Coughlan S D, Fortes M A. *Scr Metall Mater*, 1993; 28: 1471
- [11] Weygand D, Brechet Y. *Philos Mag*, 1999; 79B: 703
- [12] Wakai F, Enomoto N, Ogawa H. *Acta Mater*, 2000; 48: 1297
- [13] Krill C E, Chen L Q. *Acta Mater*, 2002; 50: 3057
- [14] Song X Y, Liu G Q, Gu N J. *Scr Mater*, 2000; 43: 355