

第二相颗粒对多晶材料晶粒生长影响的元胞自动机(CA)模拟

柯常波 , 张新平

(华南理工大学 材料科学与工程学院 , 广州 510640)

摘要 :采用 Moore 型邻域定义的元胞自动机模型模拟研究第二相颗粒对多晶材料晶粒生长的影响。结果表明 : 第二相颗粒的体积分数及尺寸对基体晶粒组织特征的影响很大 ; 第二相颗粒含量增加可以提高晶粒尺寸分布的均匀性 , 而颗粒尺寸增大则导致晶粒尺寸分布的均匀性降低。通过对模拟数据的回归分析获得极限晶粒尺寸(D)与颗粒尺寸(d)和颗粒含量(f)之间的关系 ; 不同的颗粒尺寸(d)对应不同的拟合指数(n)。

关键词 :多晶材料 ; 第二相颗粒 ; 晶粒长大 ; 元胞自动机

中图分类号 : TG146 文献标识码 :

Cellular automata modeling of influence of second-phase particles on two-dimension grain growth in polycrystalline materials

KE Chang-bo, ZHANG Xin-ping

(School of Materials Science and Engineering, South China University of Technology, Guangzhou 510640, China)

Abstract: The influence of second-phase particles on matrix grain growth was simulated by the cellular automata method based on the Moore type neighborhood definition. The modeling results show that the volume fraction and size of the second-phase particles have significant influence on the grain morphology. The increase of volume fraction of second-phase particles can improve the grain size uniformity, while the increase of the particle size deteriorates the uniformity of the grain size distribution. By regression analysis of the simulation data, the correlation among the parameters of limited grain size, mean particle size and particle volume fraction is obtained. Different particle sizes correspond to different fitting exponents.

Key words: poly crystalline materials; second-phase particle; grain growth; cellular automata

在对金属材料进行强化时 , 一种非常有效的方法是向其基体中引入不同尺寸及含量的第二相。该强化功效一是通过弥散分布具有特定性质的第二相颗粒实现 , 二是通过第二相颗粒对基体相晶粒长大过程的抑制来实现 (即细晶强化) 。然而 , 第二相颗粒的几何参数 (尺寸及形状) 、含量及分布状态等对基体材料的性能影响显著 , 尤其是第二相颗粒对基体材料晶粒长大过程的影响非常复杂。采用实验研究时存在较多局限性 , 例如 , 难以对第二相颗粒弥散强化的动态过程进

行观察和调制 , 不易获得理论意义上的第二相的最优几何和体积分数设计 , 且实验周期长、成本高。目前 , 从理论和计算模拟方面阐明第二相颗粒的性质和数量对基体材料晶粒演化过程和长大动力学的影响不仅在金属学方面具有重要的研究意义 , 而且能为材料设计和制备及后续各种热加工提供重要的理论参考 , 具有很好的工程应用价值。

ZENER^[1]首先提出了第二相颗粒对晶粒长大影响的理论模型 , 建立了极限晶粒尺寸与第二相颗粒尺寸、

基金项目 : 国家自然科学基金资助项目 (50671037; 50871039)

收稿日期 : 2008-12-25; 修订日期 : 2009-07-15

通信作者 : 张新平 , 教授 , 博士 ; 电话 : 020-22236396; E-mail: mexzhang@scut.edu.cn

体积分数间的一种定量关系，即经典的 ZENER 理论公式；该经典公式随后被 HELLMAN 和 HILLERT^[2]等进行了修正。然而一些实验研究结果^[3-4]与上述理论模型存在不符；主要原因是由于 ZENER 模型中一些过于简化或不合理的假设以及复杂的实验过程本身所导致的误差。由于理论模型本身的局限性和实验研究工作的复杂性，目前采用计算机模拟研究第二相颗粒对晶粒生长过程的影响以及预测材料的组织形态和性能已愈来愈受到重视。

目前，利用计算机模拟研究第二相颗粒对晶粒长大过程影响的工作还不多见，一直以来采用的主要方法是 Monte Carlo 法^[5-9]；例如，SROLOVITZ 等^[5]运用 MC 方法研究了第二相颗粒对晶粒长大的影响，发现处于钉扎状态的晶粒尺寸分布与颗粒的体积分数无关，且验证了 ZENER 公式的准确性，并随后研究了第二相颗粒含量对最终晶粒尺寸的影响^[6]；还有研究者运用 MC 法研究了处于钉扎状态的晶粒的平均尺寸与第二相颗粒含量 f 和处于晶界的颗粒数占体系颗粒总数的百分比之间的关系^[7]，以及第二相颗粒含量和尺寸对基体晶粒长大的影响^[8-9]。最近，研究人员运用近年发展起来的相场法(Phase field method, PFM)研究弥散分布的第二相颗粒对晶粒长大的影响^[10-11]，主要采用基于扩散界面模型模拟不同尺寸、不同含量的第二相颗粒对具有不同初始尺寸的晶粒长大过程的影响。虽然采用上两种模拟方法所得的研究结果不尽相同，但均能很好地再现存在第二相颗粒情况下极限晶粒尺寸、颗粒尺寸和体积分数之间的一种定量关系。

需要指出的是，基于扩散界面理论的相场模型由于涉及多场耦合，如何提高计算效率问题一直以来困扰着研究者；MC 法与元胞自动机(CA)法均采用局域的相互作用原则模拟结构的演变，两者都以一种概率性的方式进行状态的转变；CA 法适用于多尺度问题的描述，而 MC 法局限于微观领域；相对于 MC 模型，CA 法具有更大的优越性。然而，国际上对 CA 法的应用研究远不及最早发展起来的 MC 方法，虽然也有一些关于 CA 法的早期研究，但利用其模拟晶粒长大则是最近几年才出现，其优越性还没有被研究者们充分认识。与上述研究工作所采用的模型和方法不同，本文作者尝试运用基于 Moore 型邻域定义的元胞自动机模型(Cellular automata model)模拟不同含量及不同尺寸的第二相颗粒对晶粒长大的影响，主要研究第二相颗粒对基体组织和晶粒生长动力学的影响，并运用此模型探索极限晶粒尺寸、颗粒尺寸和颗粒体积分数之间的关系，为模拟第二相颗粒对晶粒长大的影响提供一种新的思路和方法。

1 元胞自动机模型

基于近邻模型的元胞自动机首先由 LIU 等^[12]提出，关小军等^[13]在此基础上将近邻扩展到次近邻，称之为 Moore 型。模拟采用 Moore 型邻域定义元胞模型，其示意图如图 1 所示。元胞 e 由 a, b, c, d 这 4 个近邻元胞和 f, g, h, i 这 4 个次近邻元胞接邻；元胞 e 在 $t+1$ 时刻的状态 $e(t+1)$ 由其本身在上一时刻 t 的状态及其近邻元胞和次近邻元胞在时刻 t 的状态按照确定的规则共同决定：

$$e(t+1) = F\{a(t), b(t), c(t), d(t), e(t), f(t), g(t), h(t), i(t)\} \quad (1)$$

式中： F 为元胞状态的转变规则，在每一元胞自动机时间步(Cellular automata step, CAS)按照以下规则顺序判断是否转变^[12-14]。

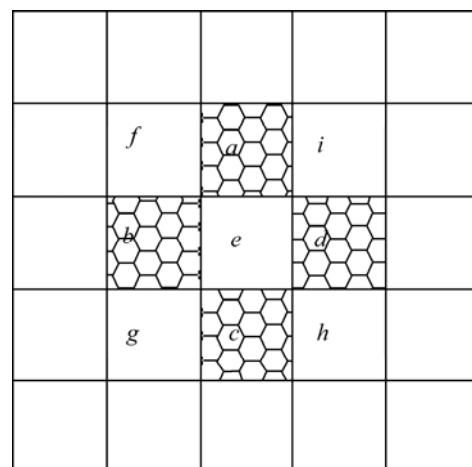


图 1 元胞模型示意图

Fig.1 Schematic diagram of cellular model

规则 1 若时刻 t 时元胞 e 周围的近邻和次近邻 8 个元胞的状态均与其相同，则 e 的状态在下一时间步(CAS)保持不变。

规则 2 若时刻 t 时元胞 e 的最近邻元胞 a, b, c 和 d 中任意 3 个同时为 A 状态，则在下一个 CAS，元胞 e 的状态转变为 A 。

规则 3 若时刻 t 时元胞 e 的次近邻元胞 f, g, h 和 i 中任意 3 个同时为 B 状态，则在下一个 CAS，元胞 e 的状态转变为 B 。

规则 4 模拟中假设晶界能均匀分布，元胞 e 还必须要克服能量壁垒而随机转变为任意邻居的状态，转

变概率为 P 。

上述规则的判断顺序为: 先判断规则 1, 若符合, 则后续规则即可省略, 若不符合, 转为判断规则 2, 以此类推, 若符合其中一个规则, 则此规则后续判断即省略, 不符合则进行下一规则判断。

其中, 规则 1 用于判断元胞是否在晶粒内部, 规则 2 和 3 用于判断晶界的稳定性以及判断曲率对晶界迁移的影响, 规则 4 则用于模拟能量壁垒的影响, 转换概率 P 采用以下再取向概率模型^[14-15]:

$$P = \begin{cases} 1 & \Delta E_{ij} < 0 \\ 0.5 & \Delta E_{ij} = 0 \\ 0 & \Delta E_{ij} > 0 \end{cases} \quad (2)$$

式中: ΔE_{ij} 为元胞 i 的取向转变为元胞 j 的取向后晶界能量的变化。若晶界能各向同性, 则元胞 i 的晶界能 E_i 可以表示为^[16]

$$E_i = J_i^k \sum_k^{nn} (1 - \delta_{S_i} \delta_{S_k}) \quad (3)$$

式中: J_i^k 为元胞 i 和邻居 k 之间的晶界能量度。参考文献[16], J_i^k 取值为 1; k 为元胞 i 的第 k 个邻居; nn 为元胞 i 的邻居总数; 包括最近邻和次近邻; δ 为 Kronecker 符号; S_i 为元胞 i 的取向; S_k 为邻居 k 的取向。

模拟中, 每个元胞的状态用取向值表示, 采用一个特定的取向值表示第二相颗粒; 本模拟中元胞的取向数为 500, 其值在 1~500 之间, 第二相颗粒的特定取向值设为 -100。模型中还需假定整个过程中元胞的状态和第二相颗粒的状态不相互转变, 以保证第二相颗粒的含量及尺寸的不变。

本模拟工作采用 500×500 的四边形网格, 采用周期性边界条件以模拟无限大的区域, $P=1$ 以模拟理想状态下的无限高温情况; 模拟开始前随机赋予每个元胞 1~500 之间的取向值, 并按照第二相颗粒的含量以及尺寸随机分布第二相, 为便于区分第二相颗粒与基体晶粒, 设定被第二相颗粒占据的格点的值, 不同于模拟开始前随机赋予格点的初始值, 本实验中赋值为 -100。模拟中具有相同取向的相邻格点同属一个晶粒。由于 CA 模型具有一定的随机性, 本研究取 5 次模拟结果的平均值作为统计的最终结果, 为获得一定的初始组织, 每次模拟都取第 1 000 时间步作为统计的初始时间步。

2 结果及分析

2.1 第二相颗粒对晶粒组织特征的影响

第二相颗粒对多晶材料的强化作用主要通过其对晶界迁移(及位错移动)的钉扎而实现, 颗粒倾向于分布在晶界处且晶界趋向于平直化。图 2 所示为模拟所

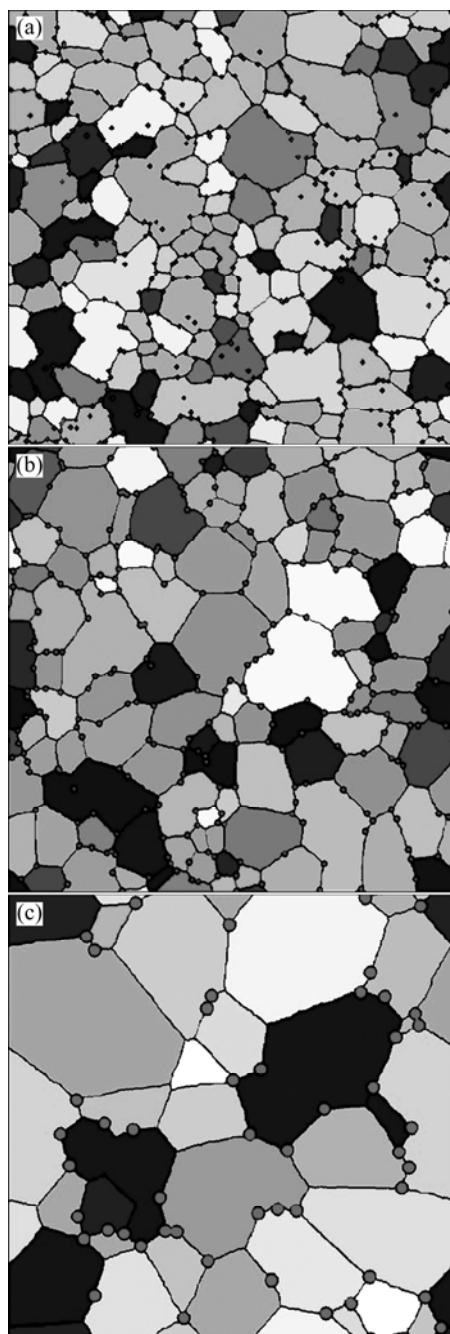


图 2 不同尺寸(r)第二相颗粒作用下晶粒长大处于停滞状态时的模拟晶粒组织

Fig.2 Simulated grain structures in stagnated state with constant particle volume fraction of $f = 0.03$ at different second-phase particle size of 2-7: (a) $r = 2$; (b) $r = 3$; (c) $r = 7$

得的晶粒长大至停滞状态的模拟晶粒组织。模拟条件为第二相颗粒体积分数恒定(即 $f=0.03$)而尺寸 r (采用网格的格点数为计算单位)不同。由此可见,当第二相颗粒尺寸较小时,最终停滞状态下晶粒的数目较多、尺寸较小,且存在部分第二相颗粒在晶界脱离的情况;当第二相颗粒尺寸增大时,晶粒长大停滞时其数目减小而尺寸较大,第二相颗粒在晶界脱离的现象很少,且处于多晶交接点的第二相颗粒比例也较高。

图3所示为与图2对应的第二相颗粒体积分数恒定而尺寸不同时平均晶粒尺寸随时间的变化关系。由图3可知,第二相颗粒尺寸对晶粒尺寸有较大影响,颗粒尺寸越小,相同时刻下平均晶粒尺寸也越小,最终的晶粒尺寸也越小,晶粒长大达到停滞状态所需的时间也越短。这表明在第二相颗粒体积分数不变的情况下,虽然单个大尺寸颗粒的钉扎效果强于单个小尺寸颗粒,但是大量小颗粒的整体钉扎效应则非常明显,对晶粒长大的阻碍效果显著,钉扎效应更取决于颗粒的数量。

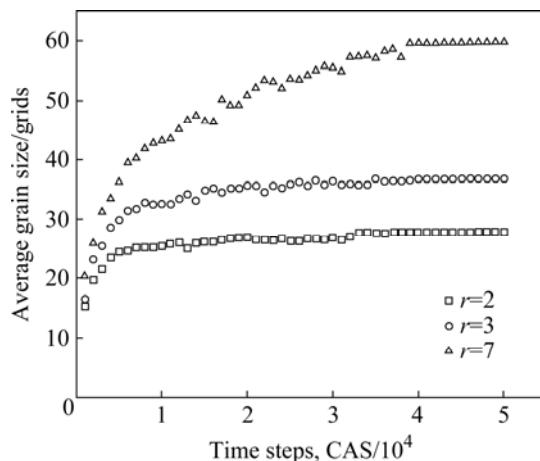


图3 第二相颗粒含量恒定($f=0.03$)而尺寸不同时平均晶粒尺寸随时间的变化曲线

Fig.3 Changing curves of average grain size with time for particles with different sizes at constant particle volume fraction of $f=0.03$

图4所示为第二相颗粒尺寸恒定($r=2$)而含量不同时($f=0.01\sim0.10$)平均晶粒尺寸随时间的变化关系。由图4可知,随颗粒含量增加,晶粒长大过程达到饱和及停滞所需的时间缩短,最终晶粒尺寸减小,钉扎效应越明显;这与其它模拟方法所得出的结论一致^[5-7, 9],并与实验研究结果相符^[2-3]。

2.2 第二相颗粒对晶粒长大动力学的影响

众所周知,在第二相颗粒钉扎作用下的晶粒长大

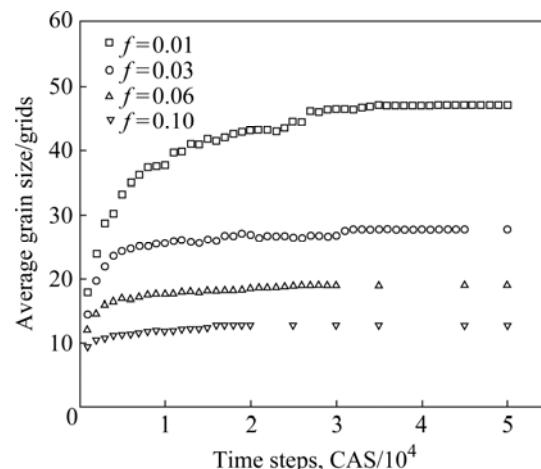


图4 第二相颗粒尺寸恒定($r=2$)而含量不同时平均晶粒尺寸随时间的变化关系

Fig.4 Changing curves of average grain size with time for particle with different volume fractions at constant particle size of $r=2$

过程具有不均匀性,但并不十分清楚第二相颗粒含量如何影响晶粒尺寸的均匀性。本文作者模拟了第二相颗粒含量(f)变化情况下晶粒长大至停滞状态时其尺寸的分布特征,结果如图5所示。由图5可知,随着 f 的增加,晶粒尺寸分布均匀性提高,分布宽度减小,这与Monte Carlo方法模拟出的结果相似^[9];当 f 变化时,具有最高出现频率的晶粒尺寸均处于 $R=R_a$ 附近(其中 R 为当前时刻系统中各晶粒对应时间的晶粒尺寸, R_a 为一定体积分数的第二相颗粒作用下,当前时刻体系对应的平均晶粒尺寸),这与Monte Carlo方法

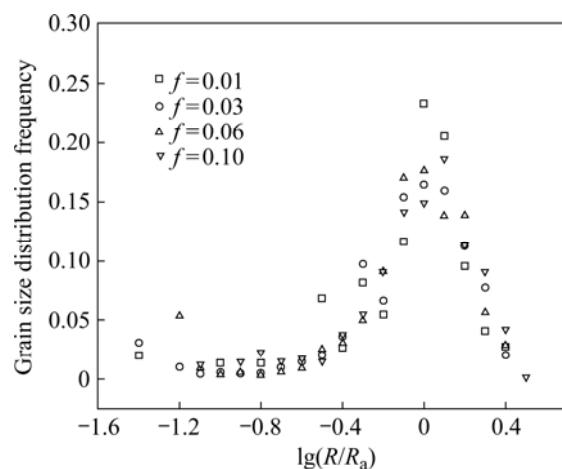


图5 第二相颗粒含量不同时晶粒长大至停滞状态下的尺寸分布概率($r=2$)

Fig.5 Grain size distribution frequency in stagnated state for particles with different volume fractions ($r=2$)

模拟出的结果一致^[5~6]。图6所示为第二相颗粒尺寸变化时晶粒长大至停滞状态所对应的晶粒尺寸分布。由图6可看出, 显然, 颗粒尺寸增大时, 晶粒尺寸分布的均匀性有所降低; 这一方面是由于大尺寸颗粒对晶粒长大的钉扎作用强于单个小颗粒, 造成被钉扎的基体晶粒长大受较大抑制, 另一方面是因为当颗粒含量相同时大尺寸颗粒分布的均匀性(或弥散性)较低, 造成晶粒长大组织的不均匀性, 这也与Monte Carlo方法的模拟结果^[8]一致。此外, 从图6的模拟结果还可知, 第二相颗粒的尺寸变化并不影响晶粒尺寸分布的峰值位置, 即出现频率最高的晶粒尺寸同样均处于 $R=R_a$ 左右。但颗粒尺寸增大时, 其对应的最高频率值增加, 这主要是由于数量较少的大尺寸颗粒的总体综合钉扎效果弱于数量较多的小尺寸颗粒的, 因而当晶粒长大至停滞状态时出现大尺寸晶粒的几率较高。

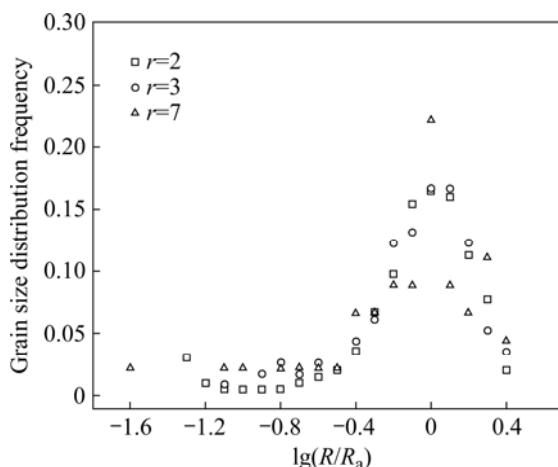


图6 第二相颗粒尺寸不同时晶粒长大至停滞状态下的尺寸分布概率($f=0.03$)

Fig.6 Grain size distribution in stagnated state for particles with different sizes ($f=0.03$)

2.3 D/d 与 f^n 的关系

Zener首先提出了第二相颗粒对晶粒长大影响的理论模型, 即著名的Zener公式:

$$\frac{D}{r} = \frac{4}{3}f^{-1} \quad (4)$$

式中: D 为系统中平均晶粒尺寸; r 为第二相颗粒的平均半径; f 为第二相颗粒的体积分数。但一些研究认为 Zener 公式中的指数 $n=-1$ 偏小, 如 HELLMAN 和 HILLERT 等^[2]基于“韧窝”模型得出 $n=-0.93$, HAROUN^[14]得出 $n=-0.5$, MOELANS 等^[11]运用相场模型得出 n 值处于 $-0.5\sim-0.4$ 之间, 而 OLGAARD 等^[3]由实验得出的 n 值处于 $-0.5\sim-0.33$ 之间。迄今为

止, 关于 Zener 公式中的指数 n 的确切值仍存在争议。

本研究运用元胞自动机方法模拟得到在不同体积分数及颗粒尺寸的第二相作用下晶粒长大过程中 D/r 与 f 的关系, 其结果如图7所示。对模拟数据进行回归处理后得出的 Zener 型表达式也标注在图7中。显

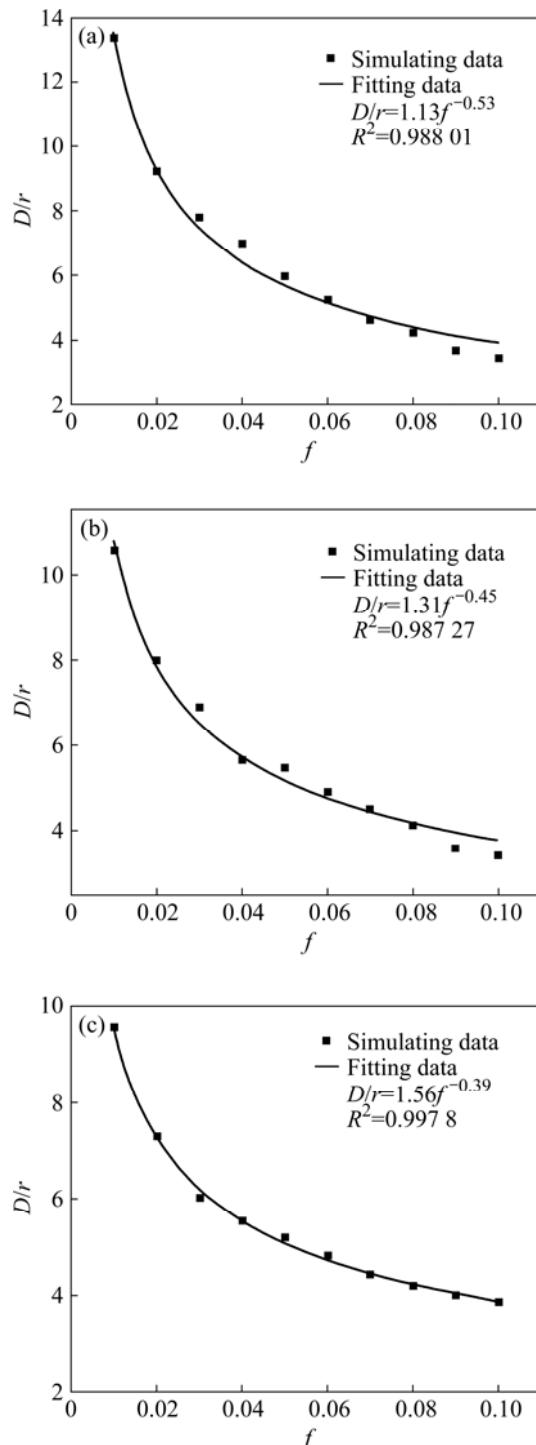


图7 运用元胞自动机模型得到的 D/r 与 f 的关系

Fig.7 Relationship between D/r and f based on CA model:
(a) $r=2$; (b) $r=3$; (c) $r=7$

然拟合具有很好的相关性，相关系数在0.987至0.997之间。从图7可见，由不同第二相颗粒半径得到的n值不同；颗粒半径增大，则n值也变大，对应的比例系数也增大，当r值分别为2、3和7时，对应的n值则分别为-0.53、-0.45和-0.39。计算出的n值虽然大于Zener公式中的n值，但与Olgaard的实验结果($n=-0.5\sim-0.33$)^[3]和MOELANS等的相场法模拟结果($n=-0.5\sim-0.4$)^[11]十分接近。

3 结论

1) 晶粒尺寸分布的均匀性随着第二相颗粒含量的增加而提高；第二相颗粒尺寸越大，晶粒尺寸分布的均匀性越低；体系中出现频率最高的晶粒尺寸为平均晶粒尺寸，其不随第二相颗粒含量及尺寸的改变而变化。

2) 基于CA模型得到的晶粒长大指数n值为随第二相颗粒尺寸变化的常数，当颗粒尺寸增加时，n值也随之增大。

3) 采用元胞自动机模型模拟出的含第二相颗粒多晶材料晶粒长大规律与Monte Carlo方法和相场法模拟结果具有很好的一致性。

REFERENCES

- [1] ZENER C. Private communication to C. S. Smith[J]. Trans AIME, 1948, 175(15): 47-48.
- [2] HELLMAN P, HILLERT M. Effect of second-phase particles on grain growth[J]. Scandinavian Journal of Metallurgy, 1975, 4: 211-219.
- [3] OLGAARD D L, EVANS B. Effect of second-phase particles on grain growth in calcite[J]. Journal of American Ceramic Society, 1986, 69: C272-C277.
- [4] TWEED C J, HANSEN N, RALPH B. Grain growth in samples of aluminum containing alumina particles[J]. Metallurgy Transactions A, 1983, 14: 2235-2243.
- [5] SROLOVITZ D J, ANDERSON M P, GREST G S. Computer simulation of grain growth: influence of a particle description[J]. Acta Metallurgy, 1984, 32: 1429-1438.
- [6] DOHERTY R D, SROLOVITZ D J, ROLLETT A D. On the volume fraction dependence of particle limited grain growth[J]. Scripta Metallurgy, 1987, 21(5): 675-679.
- [7] SOUCAI M, MESSINA R, COSNUAU A, KUBIN L P. Monte Carlo simulation of Zener pinning in two dimensions[J]. Mater Sci Eng A, 1999, 271: 1-7.
- [8] 宋晓艳, 刘国权, 谷南驹. 第二相粒子尺寸对基体晶粒生长影响的仿真研究[J]. 金属学报, 1999, 36(6): 565-568.
SONG Xiao-yan, LIU Guo-quan, GU Nan-ju. Computer simulation of the influence of the second-phase particle size on grain growth[J]. Acta Metallurgica Sinica, 1999, 35(6): 565-568.
- [9] 宋晓艳, 谷南驹, 刘国权, 王宝奇. 第二相粒子含量对基体晶粒长大影响的计算机仿真研究[J]. 金属学报, 2000, 36(6): 592-596.
SONG Xiao-yan, GU Nan-ju, LIU Guo-quan, WANG Bao-qi. Computer simulation of the influence of second-phase particle quantity on matrix grain growth[J]. Acta Metallurgica Sinica, 2000, 36(6): 592-596.
- [10] MOELANS N, BLANPAIN B, WOLLANTS P. A phase field model for the simulation of grain growth in materials containing finely dispersed incoherent second-phase particles[J]. Acta Materialia, 2005, 53: 1771-1781.
- [11] MOELANS N, BLANPAIN B, WOLLANTS P. Phase field simulations of grain growth in two-dimensional systems containing finely dispersed second-phase particles[J]. Acta Materialia, 2006, 54: 1175-1184.
- [12] LIU Y, BAUDIN T, PENELLE R. Simulation of normal grain growth by cellular automata[J]. Scripta Materialia, 1996, 34(11): 1679-1683.
- [13] 关小军, 焦宪友, 周家娟, 张继祥, 刘运腾, 申孝民, 麻晓飞. 单一晶粒长大过程的元胞自动机模拟[J]. 中国有色金属学报, 2007, 17(5): 699-703.
GUAN Xiao-jun, JIAO Xian-you, ZHOU Jia-juan, ZHANG Ji-xiang, LIU Yun-teng, SHENG Xiao-min, MA Xiao-fei. Cellular automata simulation of single grain growth[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2007, 17(5): 699-703.
- [14] HAROUN N A. Theory of inclusion controlled grain growth[J]. Journal of Materials Science, 1980, 15: 2816-2822.
- [15] SONG X Y, LIU G Q. Kinetics and grain size distribution of two dimensional normal grain growth with the modified Monte Carlo simulation[J]. Journal of Materials Science, 1998, 14(6): 506-510.
- [16] 麻晓飞, 关小军, 刘运腾, 申孝民, 王丽君, 宋述同, 曾庆凯. 不同尺寸二相粒子材料晶粒长大的元胞自动机仿真[J]. 中国有色金属学报, 2008, 18(7): 1305-13011.
MA Xiao-fei, GUAN Xiao-jun, LIU Yun-teng, SHEN Xiao-min, WANG Li-jun, SONG Shu-tong, ZENG Qing-kai. Simulation of second phase particles with different sizes on grain growth process[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2008, 18(7): 1305-1311.

(编辑 龙怀中)