

关于晶粒长大过程中织构行为的理论分析*

赵新兵

(浙江大学材料科学与工程系, 杭州 310027)

摘要 基于晶粒几何形状的统计简化和晶界自由能的分析建立了一个晶粒长大统计模型. 该模型对织构在晶粒长大过程中的行为作出了合理的解释, 其分析结果将有助于实际生产中控制材料晶粒尺寸和织构组态.

关键词 晶粒长大 织构 理论模型

晶粒长大的本质是晶界的迁移, 而晶界迁移的速度决定于晶界的迁移率 m 和比界面能 γ . 通常, 小角度晶界的 m 和 γ 值明显小于一般的大角度晶界. 当材料中的晶粒取向完全无序时, 为了简化问题, 一般假设 m 和 γ 为常数. 但是当有较强织构存在时, 必须考虑不同晶界之间 m 和 γ 值的差异. 事实上, 这种差异也是所谓“织构阻碍正常晶粒长大”以及“织构诱导异常晶粒长大”的基本原因.

在 m 和 γ 都等于常数的假设条件下, von Neumann^[1] 采用沿晶界积分的方法导出了单个二维晶粒的长大速度:

$$\frac{dA}{dt} = \frac{\pi}{3} m\gamma(N-6), \quad (1)$$

其中 A 是晶粒面积, N 是晶粒边数. 虽然 von Neumann 模型不涉及晶粒形状的几何假设, 但这种单个二维晶粒的长大模型对实际多晶组织的晶粒长大过程没有太多的实际指导意义. 经典的三维晶粒长大模型是由 Hillert^[2] 提出的统计模型:

$$\frac{dR}{dt} = m\gamma\left(\frac{1}{R_{cr}} - \frac{1}{R}\right), \quad (2)$$

其中 R 是晶粒的等体积球半径(简称晶粒半径), 由下式定义:

$$V = \frac{4}{3} \pi R^3, \quad (3)$$

式中 V 是晶粒的体积. (2) 式中的 R_{cr} 是一个与系统晶粒尺寸分布有关的常数, 一般称为临界晶粒半径. Hillert 模型的主要缺陷是没有考虑织构的作用. 同时, 根据 Abbruzzese 的分析^[3], Hillert 模型实质上是建立在球形晶粒的几何简化基础上的.

随着织构定量分析技术的发展, 80 年代后期, Abbruzzese 和 Lücke^[4] 以及 Bunge 等人^[5] 分别基于球形和正多边形晶粒模型建立了一些考虑织构影响的晶粒长大模型. 除了过于简单的

1994-03-12 收稿, 1994-11-09 收修改稿

* 国家自然科学基金及国家教育委员会留学回国人员科研基金资助项目

几何假设以外, 这些模型的另一个主要缺陷是以某种平均晶界能代替实际的晶界能. 最近, 作者发现了一个新的二维晶粒长大模型^[6]. 该模型采用类似于 von Neumann 模型所用的沿晶界对晶界迁移速度积分的方法, 并考虑了 m 和 γ 值在不同晶界段上的差异. 这种积分方法虽然数学上较为严格, 但难以推广到三维系统. 为此, 本文以下将从分析晶界迁移过程中晶界总能量的变化着手, 推导一个考虑织构作用的三维晶粒长大统计模型, 并以此分析织构在晶粒长大过程中的行为.

1 基本假设和定义

在本文中, 单颗晶粒以希腊字母 v, μ 等表示, 晶粒尺寸组和晶粒取向组分别用小写字母 i, j 等和大写字母 H, K 等编号.

对于如图 1 所示的一颗属于尺寸-取向组 $[i, H]$ 的晶粒 v , 我们把包围 v 的晶界称为 v 的周向晶界. 任两颗与 v 相邻, 且又有共同界面的晶粒, 它们之间的晶界将与 v 的某一棱边相接触, 这种晶界 (相对于 v 而言) 称为 v 的径向晶界.

在以下的推导中, 采用如下基本假设:

(1) 局部平衡假设. 即假设晶界迁移过程中晶界相交处保持动态平衡.

(2) 线性假设. 即晶界的局部迁移速率正比于作用在该局部的晶界移动驱动力:

$$v = mP. \quad (4)$$

(3) 均一性假设. 从统计意义上考虑, 认为属于同一尺寸-取向组的晶粒具有相同的尺寸和取向. 例如在图 1 中, $[i, H]$ 组晶粒 v 的晶粒半径和表面积可分别以组内特征值 R_i 和 S_i 表示, v 和它的一颗 $[j, K]$ 组邻晶 μ 之间晶界的迁移率和比界面能可分别用 m^{HK} 和 γ^{HK} 表示.

(4) 随机性假设. 认为晶粒在系统中的空间位置是完全随机的. 而与其尺寸及取向无关. 因此, 一颗 $[i, H]$ 组晶粒与所有可能相邻的 $[j, K]$ 组晶粒之间的平均晶界面积应为

$$S_{ij}^{HK} = S_i \varphi_j^K S_j / \sum_K \sum_j \varphi_j^K S_j, \quad (5)$$

其中 φ_j^K 是 $[j, K]$ 组晶粒数在系统总数中所占的分数.

(5) 晶界相似性假设. 即假设在任意短时间 Δt 内, 晶界的迁移只引起晶粒尺寸的变化, 而不改变晶粒的形状特征. 因此, 晶界上任意一点 s 到晶粒几何中心 O 点间的距离 $r(s)$ 与其在 Δt 时间内的改变量 $\Delta r(s)$ 之比等于常数:

$$\Delta r(s)/r(s) = C_0 \quad (s \in S^{\mu}). \quad (6)$$

2 晶粒长大速度的推导

首先考虑图 1 中 $[i, H]$ 组晶粒 v 与它的一颗 $[j, K]$ 组邻晶 μ 之间界面 S^{μ} 的迁移行为. 假设在 Δt 时间内 S^{μ} 上某点 s 处的一个无限小面积元 ds 向其法线方向 N 移动了距离 $Z(s)$, 则由

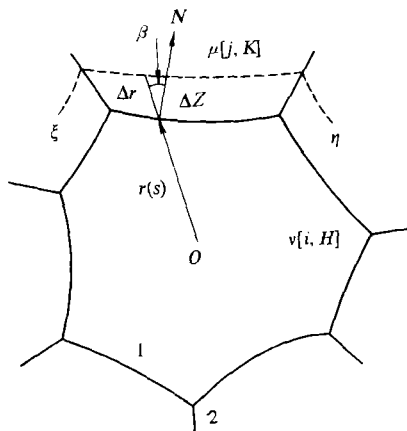


图 1 晶界迁移示意图

1—— v 的周向晶界, 2—— v 的径向晶界

图 1 及 (6) 式可得

$$Z(s) = \Delta r(s) \cos \beta = C_0 r(s) \cos \beta = C_0 r^*(s), \quad (7)$$

其中 $r^*(s) = r(s) \cos \beta$. 如果记 $Z^{\nu\mu}$ 和 $r^{\nu\mu}$ 分别为 $S^{\nu\mu}$ 上 $Z(s)$ 和 $r^*(s)$ 的平均值, 则由 (7) 式可得

$$C_0 = Z^{\nu\mu} / r^{\nu\mu}. \quad (8)$$

由 (6), (8) 式可得 $S^{\nu\mu}$ 在 Δt 时间内的面积改变量:

$$\begin{aligned} \Delta S^{\nu\mu} &= \int_{S^{\nu\mu}} \Delta(ds) = \int_{S^{\nu\mu}} \frac{\partial(ds)}{\partial r} \Delta r = 2 \int_{S^{\nu\mu}} \frac{\Delta r(s)}{r(s)} ds, \\ &= 2 C_0 S^{\nu\mu} = 2 Z^{\nu\mu} S^{\nu\mu} / r^{\nu\mu}. \end{aligned} \quad (9)$$

由此引起的系统界面能变化量为

$$\Delta E_1 = \gamma^{HK} \Delta S^{\nu\mu} = C_1 \gamma^{HK} Z^{\nu\mu} S^{\nu\mu} R_i / S_i, \quad (10)$$

其中无量纲系数 $C_1 = 2 S_i / (r^{\nu\mu} R_i)$ 是为消去 $r^{\nu\mu}$ 而引入的, 它的取值决定于晶粒形状, 对球形晶粒 C_1 等于 8π , 对其他形状晶粒 C_1 大于 8π .

在周向晶界 $S^{\nu\mu}$ 面积变化的同时, 由于 $S^{\nu\mu}$ 的迁移, 还将使 v 的一部分相关的径向晶界发生面积变化. 显然, 其变化量应等于 $S^{\nu\mu}$ 周围棱边长度与棱边径向位移量的乘积的一半. 其中棱边径向位移量应正比于 $Z^{\nu\mu}$, 而棱边长度从统计意义上讲可认为正比于 $S^{\nu\mu}$ 并反比于 v 及 μ 的晶粒尺寸. 由此, 直接写出因径向晶界面积变化而引起的系统界面能变化量:

$$\Delta E_2 = -C_2 \bar{\gamma}^K Z^{\nu\mu} S^{\nu\mu} \left(\frac{1}{R_i} + \frac{1}{R_j} \right), \quad (11)$$

其中 C_2 是一个与晶界形状有关的比例系数, $\bar{\gamma}^K$ 是 $[j, K]$ 组晶粒的平均比界面能 (因为此时 μ 周围其他 v 的邻晶取向尚未确定, 如图 1 中的 η 和 ζ).

上述两项能量为晶界 $S^{\nu\mu}$ 的迁移提供了驱动力. 作用在 $S^{\nu\mu}$ 上的平均驱动力可表达为

$$P^{\nu\mu} = - \frac{\Delta E_1 + \Delta E_2}{C_3 Z^{\nu\mu} S^{\nu\mu}}, \quad (12)$$

其中 C_3 是由于驱动力绝对值在 $S^{\nu\mu}$ 上各点不完全相同而引入的一个系数. 对于球形晶粒 C_3 等于 1, 在其他情况下 C_3 大于 1.

将 (10) 和 (11) 式代入 (12) 式, 考虑到 C_1 和 C_3 都反映了实际晶粒与球形晶粒的偏差, 近似认为 $C_1/C_3 \approx 8\pi$, 同时记 $C_2/C_3 = C'$, 得

$$P^{\nu\mu} = C' \bar{\gamma}^K \left(\frac{1}{R_i} + \frac{1}{R_j} \right) - 8\pi \gamma^{HK} \frac{R_i}{S_i}. \quad (13)$$

根据线性假设 (4), 单位时间内在驱动力 $P^{\nu\mu}$ 作用下, 晶界 $S^{\nu\mu}$ 扫过的体积为

$$\left(\frac{dV}{dt} \right)^{v \rightarrow \mu} = S^{\nu\mu} m^{HK} \left[C' \bar{\gamma}^K \left(\frac{1}{R_i} + \frac{1}{R_j} \right) - 8\pi \gamma^{HK} \frac{R_i}{S_i} \right]. \quad (14)$$

从统计意义上考虑, 由于平均每颗 $[i, H]$ 组晶粒与 $[j, H]$ 组邻晶相邻的界面面积为 S_{ij}^{HK} (参见随机性假设 (5)), 以 S_{ij}^{HK} 取代 (14) 式中的 $S^{\nu\mu}$, 并对 K 和 j 求和, 可得 $[i, H]$ 组晶粒的平均体积增长速率:

$$\left(\frac{dV}{dt}\right)_i^H = C' \sum_K \sum_j m^{HK} \bar{\gamma}^K S_{ij}^{HK} \left(\frac{1}{R_i} + \frac{1}{R_j}\right) - 8\pi \sum_K \sum_j \bar{m}^{HK} \gamma^{HK} S_{ij}^{HK} \frac{R_i}{S_i}. \quad (15)$$

由公式(3), 以晶粒半径 R 取代体积 V , 并近似认为晶粒表面积 S 正比于晶粒半径的平方 R^2 . 则上式可简化为

$$\left(\frac{dR}{dt}\right)_i^H = \frac{\tilde{G}_1^H}{\bar{R}} + \frac{\tilde{G}_2^H}{R_i} - 2 \frac{\tilde{M}^H}{R_i}, \quad (16)$$

其中 $\tilde{G}_1^H$, $\tilde{G}_2^H$ 和 $\tilde{M}^H$ 具有扩散系数的量纲, 被定义为

$$\begin{cases} \tilde{G}_1^H = C \sum_K \sum_j \varphi_j^K R_j \bar{R} m^{HK} \bar{\gamma}^K / \bar{R}^2, \\ \tilde{G}_2^H = C \sum_K \sum_j \varphi_j^K R_j^2 m^{HK} \bar{\gamma}^K / \bar{R}^2, \\ \tilde{M}^H = \sum_K \sum_j \varphi_j^K R_j^2 m^{HK} \gamma^{HK} / \bar{R}^2, \end{cases} \quad (17)$$

其中 $C = C'S_i / (4\pi R_i^2)$ 是一个近似于 1 的几何常数, 可根据晶粒长大过程中总体积守恒条件确定.

3 讨论

上述晶粒长大模型与作者不久前发表的二维晶粒长大模型^[9]很相似. 另外, 如果定义:

$$\begin{cases} \tilde{M}_{\text{eff}}^H = 2\tilde{M}^H - \tilde{G}_2^H, \\ \tilde{R}_{\text{cr}}^H = (2\tilde{M}^H - \tilde{G}_2^H)\bar{R} / \tilde{G}_1^H, \end{cases} \quad (18)$$

则(16)式可写为

$$\left(\frac{dR}{dt}\right)_i^H = \tilde{M}_{\text{eff}}^H \left(\frac{1}{\tilde{R}_{\text{cr}}^H} - \frac{1}{R_i}\right). \quad (19)$$

这在形式上类似于 Hillert 模型(2)式, 其中 $\tilde{M}_{\text{eff}}^H$ 和 $\tilde{R}_{\text{cr}}^H$ 可分别称为 H 组元的等效晶界扩散系数和临界晶粒半径. 不难证明, 若不考虑织构的影响(即认为 m 和 γ 为两个系统常数), 且假设晶粒为球形(此时(17)式中的常数 C 等于 1), 则(19)式完全等同于(2)式. 所以可以认为, Hillert 模型是本文模型的一个特例.

在有织构存在的情况下, 因同取向晶粒之间的小角度晶界的比界面能及迁移率小于一般的大角度晶界, 由(17)式可知, 不同织构组元的晶粒长大行为通常是不同的. 作为一种简单的定量分析, 考虑一个含 A, B 两种织构的二组元系统. 以 m 和 γ 表示一般大角度晶界的迁移率和比界面能, 假设同取向晶粒向小角度晶界的迁移率和比界面能分别为 $0.15m$ 和 0.6γ . 同时, 假设 A, B 两组元的晶粒尺寸分布满足条件: $\bar{R}^A = \bar{R}^B = \bar{R}$, $\bar{R}^{2A} = \bar{R}^{2B} = \bar{R}^2$, $\bar{R}^2 = 1.2\bar{R}^2$. 若不考虑织构影响, 由 Hillert 公式(2)可得

$$M_{\text{eff}} = m\gamma, \quad R_{\text{cr}} = 1.2\bar{R}. \quad (20)$$

在考虑小角度晶界具有较低迁移率和比界面能的情况下, 由(17)式可知, $\tilde{M}_{\text{eff}}^H$ 和 $\tilde{R}_{\text{cr}}^H$ 还与 A, B 两组元的晶粒数含量 φ^A , φ^B ($\varphi^A + \varphi^B = 1$) 有关. 图 2 是根据(17), (18)式计算得到的相对晶界扩散系数 $\tilde{M}_{\text{eff}}^H / m\gamma$ 和相对临界晶粒半径 $\tilde{R}_{\text{cr}}^H / \bar{R}$ 与 A 组元晶粒数含量 φ^A 之间的关系曲线. 图

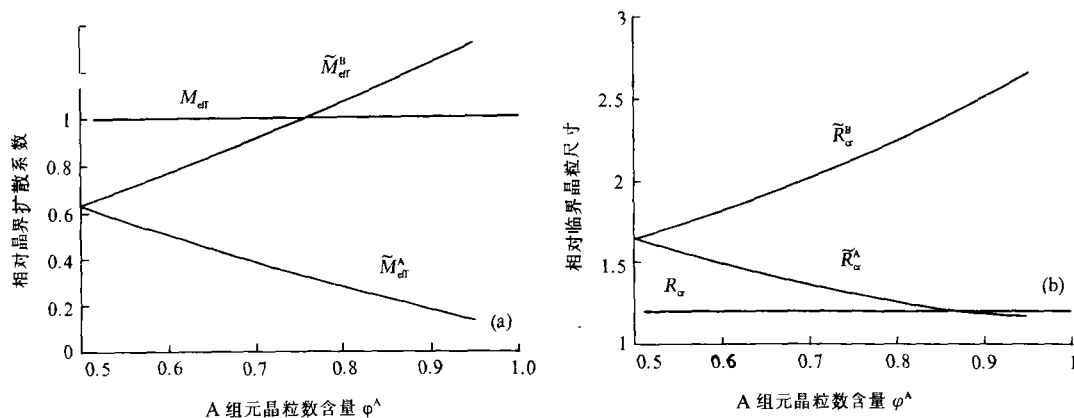


图 2 织构对晶粒长大过程中晶界扩散系数及临界晶粒尺寸的影响

中水平线是根据 Hillert 模型计算得到的值, 即 (20) 式。

由图 2 可见, 当 A、B 两组元晶粒数含量相等时 (即 $\varphi^A = 0.5$ 时), 两组元的晶粒长大特征是相同的, 但因 $\tilde{R}_{\alpha}^A, \tilde{R}_{\alpha}^B$ 均大于 R_{α} 而 $\tilde{M}_{\text{eff}}^A, \tilde{M}_{\text{eff}}^B$ 均小于 M_{eff} , 可以预料, 此时系统的晶粒长大速度将小于无织构系统的晶粒长大速度。随着 φ^A 的上升, 主要织构组元 A 和次要组元 B 之间的差距越来越大。这种由较强织构引起的各组元差异将对系统的晶粒长大过程产生影响:

第一, 当 φ^A 较大时, $\tilde{R}_{\alpha}^A$ 以及 $\tilde{M}_{\text{eff}}^A$ 都较小。这意味着在主要组元 A 中, 尺寸大于 $\tilde{R}_{\alpha}^A$ 而能长大的晶粒较多, 但大晶粒的长大速度以及小晶粒的缩小及消亡速度都较慢, 因而 A 组元的平均晶粒尺寸的上升将很缓慢。由于 φ^A 较大, 系统总的平均晶粒尺寸受其影响也将缓慢上升。这正是织构阻碍正常晶粒长大过程的原因所在。

第二, 当 φ^A 大于 0.7 时, $\tilde{R}_{\alpha}^B$ 明显大于 $\tilde{R}_{\alpha}^A$ 。这意味着次要组元中只有少量大晶粒能够长大, 而其余大部分晶粒因小于 $\tilde{R}_{\alpha}^B$ 而趋于消亡, 而且这种长大或消亡的速度将是很快的 (因 $\tilde{M}_{\text{eff}}^B$ 较大)。由于 B 组元中大量较小晶粒的消亡, 使得次要织构组元平均晶粒尺寸迅速上升, 而其体积含量在一段时期内可能暂时下降。这后者对应于主要织构组元体积含量的上升, 在实验中这种现象被称为“织构集中化过程”^[7, 8]。

第三, 可以预料, 随着晶粒长大过程的进行, 次要织构组元的平均晶粒尺寸将越来越显著地大于主要织构组元。通常, 在这个过程中还将伴随着 φ^B 的下降以及 $\tilde{R}_{\alpha}^B$ 和 $\tilde{M}_{\text{eff}}^B$ 的上升。当这一过程发展到某一阶段后, 个别极大的 B 组元晶粒将迅速吞噬其他晶粒, 从而产生爆发性的二次再结晶 (或称异常晶粒长大)。其主要特征为随着晶粒尺寸较小的 A 组元的消亡, 系统平均晶粒尺寸迅速上升以及系统织构组态的改变。

这里必须指出, 本文所提出的晶粒长大模型是建立在一系列物理及几何简化假设基础上的。某种形式的简化对一个理论模型是必不可少的。我们的任务是不断完善这些简化假设而使之更符合实际情况。同时, 作者也期盼着同行学者在本领域中的新发现。例如, 本文所用线性假设 (4) 被认为只适用于超高纯金属及退火温度接近于熔点时^[9]。在一般情况下, (4) 式应改写为^[10, 11]

$$v = mP^{\zeta}, \quad (4')$$

其中 ζ 是一个大于 1 的指数。但这里为了简化数学推导过程, 仍使用 (4) 式。另外, 本文所用

的晶界相似性假设(6)实质上是认为径向晶界在晶粒棱边处的切面延长交于晶粒几何中心,并且忽略晶粒长大或缩小时因晶粒面数改变而引起的几何突变。虽然这种几何突变只发生在瞬间,(6)式的统计正确性还尚待进一步探讨。

尽管存在种种局限,但根据本文模型所作出的大部分推论(参见关于图2的讨论)是符合受织构影响晶粒长大过程的主要实验结果的^[11]。更重要的是,本文所提出的晶粒长大理论模型对实际生产中控制材料的组织与织构将有重要的指导意义。例如,在高磁感取向硅钢片的生产中,为了获得尽可能集中的 $\{110\}\langle 001 \rangle$ 织构(即Gauss织构),应控制生产工艺使得再结晶完成后为少量 Gauss 织构和大量其他尽可能集中的某种织构。这样,在随后的高温退火中,Gauss 织构晶粒可望获得较高的长大速度,从而在二次再结晶过程完成后获得几乎单一取向的 Gauss 织构硅钢片。再如,超深冲钢板通常希望有较强烈的 $\langle 111 \rangle$ 线织构,高压电解电容器铝箔则要求有几乎单一的 $\{100\}\langle 001 \rangle$ 立方织构。这两种织构正好都是各自材料的再结晶主要织构。通过一定的工艺控制,根据晶粒长大初期主要织构组元有可能进一步强化的原理,可望获得所需的织构组态。除了织构控制以外,对一些不允许加第二相粒子形成元素的材料(如一些形状记忆合金),可考虑采用强化材料织构的方法,借助织构抑制晶粒的粗化。

4 结论

在一定的物理及几何简化假设基础上建立了一个考虑织构作用的晶粒长大统计模型,并以此分析了织构对晶粒长大过程的影响以及织构在此过程中的变化规律。所得到的结论符合晶粒长大过程的主要实验结果,并有助于从理论上指导实际生产过程中材料组织特征的控制及材料性能的优化。

参 考 文 献

- 1 von Neumann J. In: Smith C S ed. Metal Interfaces. Cleveland: ASM, 1952. 108~110
- 2 Hillert M. On the theory of normal and abnormal grain growth. Acta Metall, 1965, 13: 227~238
- 3 Abbruzzese G. Computer simulated grain growth stagnation. Acta Metall, 1985, 33: 1329~1337
- 4 Abbruzzese G, Lücke K. A theory of texture controlled grain growth—I derivation and general discussion of the model. Acta Metall, 1986, 34: 905~914
- 5 Bunge H J, Dahlem E. In: Bunge H J ed. Theoretical methods of texture analysis. Oberursel: DGM, 1987. 301~324
- 6 赵新兵. 一个考虑织构作用的二维晶粒长大模型. 中国科学, A 辑, 1993, 23(4): 443~448
- 7 Zhao X B. The effect of texture on grain growth. Textures and Microstructures, 1993, 21: 147~159
- 8 Heckelmann I, Zhao X B. Texture development during grain growth. Textures and Microstructures, 1991, 14~18: 769~774
- 9 Hu Hsun. Grain growth in zone-refined iron. Canad Metall Quart, 1974, 13: 275~286
- 10 Rath B B, Hu Hsun. In: Hsun Hu ed. The nature and behavior of grain boundaries. New York: Plenum Press, 1972. 405~435
- 11 毛卫民, 赵新兵. 金属的再结晶与晶粒长大. 北京: 冶金工业出版社, 1994. 271~273