

凸形晶粒的各向异性三维 von Neumann 方程研究*

王浩¹⁾ 刘国权^{1)2)†} 栾军华¹⁾

1) (北京科技大学材料科学与工程学院, 北京 100083)

2) (北京科技大学新金属材料国家重点实验室, 北京 100083)

(2011年3月20日收到; 2011年6月9日收到修改稿)

三维晶粒长大规律是材料科学研究的核心问题之一, 本文通过考虑实际多晶组织中晶界能和晶界迁移率的不均匀性和各向异性因素对晶粒三晶棱处两面角大小的影响, 借助经典体视学中晶粒界面积分平均曲率与平均切直径的关系, 经推导得到了适合于凸形晶粒的一般性三维 von Neumann 方程, 结果表明实际凸形晶粒的准确长大速率可以表示为晶粒的平均切直径、三晶棱总长度和三晶棱处两面角的函数. 所得方程经过了 Kelvin 十四面体和 5 种规则多面体验证, 对于三维 von Neumann 方程 (*Nature*, 2007, **446**:1053) 进一步推广并应用于实际金属和陶瓷材料具有重要的意义.

关键词: 三维晶粒长大, 各向异性, von Neumann 方程, 平均切直径

PACS: 81.10.Aj, 61.82.Bg, 81.10.Jt

1 引言

包括金属和陶瓷在内的大部分工程材料都是多晶材料, 这些多晶材料包含了大量的三维个体晶粒, 而个体晶粒之间由晶界分开. 然而, 尽管多晶材料如此普遍的存在, 我们对三维个体晶粒如何长大却知之甚少^[1].

2007 年 MacPherson 和 Srolovitz 提出一种能够准确表达三维个体晶粒体积变化率的速率模型^[2], 即

$$\frac{dV}{dt} = -2\pi M\gamma \left(\ell - \frac{L}{6} \right), \quad (1)$$

式中, V 是三维个体晶粒体积, ℓ 和 L 分别是该晶粒的一种线性尺寸 (the mean width) 和所有三晶棱的总长度, M 为晶界迁移率, γ 是表面张力 (或称晶界能). 物理学中畴和气泡的长大过程也可用上述方程加以描述, 该研究结果是半个世纪以来三维晶粒/畴长大动力学理论领域的重大突破性成果, 重新引起科学界的广泛关注^[3-9]. (1) 式被认为是二维 von Neumann 方程在三维空间的延伸, 因此它也被称为三维 von Neumann 方程. 由于三维 von

Neumann 方程的推导过程极其复杂, 本文作者曾采用一种简便方法独立推导出了适用于凸形多面体个体晶粒的三维 von Neumann 方程^[9].

然而, 正如 Kinderlehrer 在文献 [1] 中指出的一样, 上述三维 von Neumann 方程^[2] 是在各向同性的假设 (假设晶界能和晶界迁移率处处相等, 从而三晶棱处两面角为 60° , 晶棱夹角为 $109^\circ 28' 6''$) 基础上推导而来的, 完全忽略了实际晶粒长大过程中晶界能和晶界迁移率的不均匀性和各向异性. 而事实上, 各向异性广泛存在^[10,11], 在实际晶粒长大过程中更是不可避免的影响因素, 最近许多实验和仿真都已经证明了各向异性因素对晶粒长大的重要影响^[12,13]. 因此, 三维 von Neumann 方程仅适用于各向同性的理想情况, 并不能应用于实际多晶体组织的演变. 例如, 对于一个实际的平面多面体晶粒, 由于其不满足三晶棱处两面角为 60° , 晶棱夹角为 $109^\circ 28' 6''$ 的各向同性的条件, 其晶粒长大速率不能用三维 von Neumann 方程来描述.

鉴于此, 本文基于经典体视学中的一般性关系——凸形晶粒界面积分平均曲率与平均切直径的关系, 考虑了实际多晶组织中晶界能和晶界

* 国家自然科学基金 (批准号: 50901008, 50871017), 中国博士后科学基金 (批准号: 20090460209, 201003050), 高等学校博士学科点专项科研基金 (批准号: 200800080003) 和中央高校基本科研业务费专项资金资助的课题.

† E-mail: g.liu@ustb.edu.cn

迁移率的不均匀性和各向异性导致的一般性两面角, 经推导得到了适合于凸形晶粒的一般性三维 von Neumann 方程, 并通过了 Kelvin 十四面体和 5 种规则的多面体的验证, 对于三维 von Neumann 方程^[2]进一步推广并应用于实际金属和陶瓷材料具有重要的意义.

2 方法与讨论

实际多晶体组织往往具有界面能和晶界迁移率各向异性, 而个体晶粒的三晶棱处的两面角 χ 的大小, 决定于晶界的性质, 并且受到晶界迁移的影响.

我们假设一个各向异性的情况, 基体晶粒包围着某织构晶粒 A, 如图 1 所示, 基体晶粒之间的界面能为 γ , 晶界迁移率为 M ; 织构晶粒 A (黑色部分) 与相邻的基体晶粒 (灰色部分) 之间的界面能为 γ_A , 晶界迁移率为 M_A . 各向异性的存在将直接影响三晶棱处的两面角 χ (定义为三晶棱处 2 个相交界面的法向夹角) 的大小.

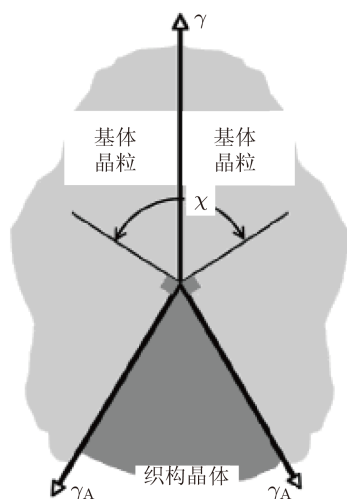


图 1 晶棱上某点处的张力平衡示意图^[14] (灰色部分是两个基体晶粒, 黑色部分是一个织构晶粒. 两个基体晶粒间界面的界面能为 γ , 基体晶粒与织构晶粒间的界面能为 γ_A)

若单独考虑界面能各向异性对两面角 χ 的影响, 可知根据张力平衡, 两面角 χ 的大小决定于 γ_A/γ 的数值. 当 $\gamma_A/\gamma = 1$ (各向同性) 时, 三晶棱处的两面角 χ 为 $\pi/3$; 当 $\gamma_A/\gamma \neq 1$ (各向异性) 时, 三晶棱处的两面角 χ 偏离各向同性的平衡角度 $\pi/3$.

此外, 除了界面能的影响, 不同的晶界迁移率 M, M_A 的不同也将影响两面角 χ 的大小; 而且, 已经有实验和仿真证明三晶棱具有与晶界不同的

有限迁移率 $M_{\text{Edge}}^{[12,13]}$, 这也将导致两面角 χ 的变化, 进而影响晶粒长大的速率. 因此, 两面角 χ 的大小可以反映界面能和迁移率各向异性.

下面我们将两面角 χ 作为表征各向异性的参量, 研究各向异性条件下的三维个体晶粒长大的准确速率. 三维晶粒的总的积分平均曲率 K 包含了晶粒光滑表面集合 Y 和晶粒三晶棱集合 E 两部分的贡献, 角隅可以忽略不计, 因此

$$K = \int \int_{\text{total}} \kappa dS = K(Y) + K(E), \quad (2)$$

式中, $K(Y)$ 和 $K(E)$ 分别为晶界曲面集合和三晶棱集合对晶粒总的积分平均曲率的贡献. 前者为 $K(Y) = \int \int_{\text{Face}} \kappa dS$, 其中 κ 是局部晶界单元的平均曲率, κ 可定义为晶界单元处两个主曲率 κ_1 和 κ_2 之和, 积分遍布给定晶粒的整个光滑曲表面.

对于晶棱, 我们可以将其表示为与两相邻晶界面相切的一个半径很小的光滑圆柱面^[15], 因此, 一个晶粒的棱集合 E 对个体晶粒表面总的积分平均曲率的贡献为

$$K(E) = \int \int_{\text{Edge}} \kappa dS = \int_{\text{Edge}} \chi dL, \quad (3)$$

如同 (1) 式, (3) 式中 L 也是所考虑晶粒的所有三晶棱的总长度. 图 1 中三维个体晶粒 A 的体积随时间的变化率^[2]可由下式表示:

$$\frac{dV}{dt} = \int \int_{\text{Face}} v_n dS = -M_A \gamma_A \int \int_{\text{Face}} \kappa dS, \quad (4)$$

式中, v_n 是曲率驱动下的晶界单元法向移动速度. 根据 (2)–(4) 式,

$$\frac{dV}{dt} = -M_A \gamma_A \left(K - \int_{\text{Edge}} \chi dL \right). \quad (5)$$

对于凸形粒子^[16]

$$\frac{1}{2} \int \int_{\text{total}} \kappa dS = 2\pi \bar{H}, \quad (6)$$

式中, \bar{H} 是凸形晶粒的平均切直径 (晶粒在任意空间方向上的 2 个平行切面间的距离 H 的平均值), 它作为三维多面体晶粒的晶粒尺寸参量已经广泛用于材料科学研究之中^[15–19]. 由 (2) 式和 (6) 式可得

$$K = 4\pi \bar{H}, \quad (7)$$

结合 (5) 式和 (7) 式, 可以得到如下关系:

$$\frac{dV}{dt} = -2\pi M_A \gamma_A \left(2\bar{H} - \frac{1}{2\pi} \int_{\text{Edge}} \chi dL \right). \quad (8)$$

(8) 式即为考虑各向异性因素的凸形晶粒的一般性三维 von Neumann 方程. 该方程表明, 三维个体晶粒长大速率决定于晶粒平均切直径、三晶棱的长度和三晶棱处的两面角大小.

文献中的三维 von Neumann 方程中, MacPherson 和 Srolovitz 定义的晶粒线性尺寸 ℓ 在数值上等于晶粒各个方向上 Euler 尺寸 (Euler width) 平均值的 2 倍 [2]. 对于凸形多面体个体晶粒, 则有 $\ell = 2\bar{H}$. 因此, 在各向同性的理想条件下 (晶界能和迁移率处处相等, 此时晶粒三晶棱处的任意一点的两面角 χ 均为平衡值 $\pi/3$), 将 $\chi = \pi/3$ 代入 (8) 式即可得到三维 von Neumann 方程 ((1) 式); 在各向异性条件下, 三晶棱处的两面角 χ 将偏离平衡值 $\pi/3$, 则 (8) 式可以应用于描述此种情况下的三维个体晶粒长大速率. 因此, 一般性 von Neumann 方程普遍适用于各向同性和各向异性的情况, 而三维 von Neumann 方程可以视做一般性 von Neumann 方程在各向同性条件的一个特例.

实际中常用凸多面体来近似表示晶粒. 对于凸多面体, 一般性 von Neumann 方程可写为

$$\frac{dV}{dt} = -2\pi M_A \gamma_A \left(2\bar{H} - \frac{1}{2\pi} \sum_{i=1}^n \chi_i L_i \right), \quad (9)$$

式中, L_i 是多面体第 i 条三晶棱的长度, χ_i 第 i 条三晶棱处的两面角, n 为晶粒棱边数. 自然界中存在 5 种规则的平面凸多面体, 如图 2 所示, 即正四面体、正六面体 (立方体)、正八面体、正十二面体和正二十面体. 如果一个晶粒具有上述规则多面体形状, 显然由于其不满足各向同性的条件, 三维 von Neumann 方程不能用来计算它的长大速率, 而考虑各向异性的一般性 von Neumann 方程则可以适用于这种情况. 表 1 列出了上述 5 种规则多面体的平均切直径 \bar{H} 、两面角 χ 和棱数 n . 将表 1 中的数值代入 (9) 式即可计算得到这 5 种规则多面体的长大速率 $dV/dt = 0$. 显然这与实际情况是相符的, 因为这些规则多面体的界面都是平面, 根据曲率驱动, 其长大速率必然为 0.

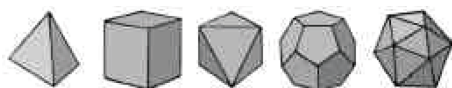


图 2 自然界存在的 5 种规则多面体 [20]

表 1 5 种规则多面体的平均切直径及相关参数 (单条棱长均为 a)

平面多面体	棱数 n	两面角 χ (弧度)	平均切直径 \bar{H}
正四面体	6	$\cos^{-1}(-1/3)$	$0.91a$
正六面体	12	$\pi/2$	$1.50a$
正八面体	12	$\cos^{-1}(1/3)$	$1.175a$
正十二面体	30	$\cos^{-1}(\sqrt{5}/5)$	$2.643a$
正二十面体	30	$\cos^{-1}(\sqrt{5}/3)$	$1.742a$

上述规则多面体晶粒长大速率的计算, 仅仅是一般性三维 von Neumann 方程应用的一个例子. 规则多面体的两面角处处相等, 并且界面为平面, 而在实际情况下, 由于各向异性的存在会出现各种晶粒形状, 例如两面角随棱边的不同而变化、界面为曲面等情况, 一般性三维 von Neumann 方程同样适用. 例如对于 Kelvin 十四面体, 它有 36 条棱, 其中 12 条棱的两面角为 $\cos^{-1}(1/3)$, 另外 24 条棱的两面角为 $\cos^{-1}(1/\sqrt{3})$, 并且我们知道其平均切直径为 $3a$, 将这些参数代入 (9) 式即可计算出其长大速率为 0, 与实际情况相符. 综上所述, 一般性三维 von Neumann 方程, 由于考虑了各向异性的因素, 可望应用于金属或陶瓷材料等实际多晶体组织中个体晶粒的长大规律研究.

本文是以凸形晶粒为例, 比较简便的推导得出了考虑各向异性因素的一般性三维 von Neumann 方程; 对于凹形晶粒, 一般性三维 von Neumann 方程仍然适用, 只是推导过程相对复杂 [21], 并且, 对于凹形晶粒和凸形晶粒, 线性尺寸参量的名称有所不同 (凸晶粒: 平均切直径 \bar{H} ; 凹晶粒: Euler 尺寸).

在各向同性条件下, von Neumann 方程和经典的 Hillert 方程 [22] 是两种不同类型晶粒长大速率方程, 前者适用于预测三维个体晶粒的准确长大速率, 后者则描述了尺寸分组内晶粒的平均长大速率, 二者的适用范围不同. 本文将 von Neumann 方程由各向同性推广到了各向异性的一般情况, 而对于 Hillert 方程, 如何将其推广到各向异性值得下一步深入探讨.

需要指出的是, 本文仅是对各向异性三维 von Neumann 方程的初步研究, 采用两面角 χ 来表达晶界能和晶界迁移率各向异性, 在后续的工作中, 需要利用实验观测或仿真确定各向异性程度, 即测出物理常数 M, M_A, γ, γ_A 的大小, 进而确定它们与两面角 χ 的准确定量关系, 最终有望用晶界能和晶界迁移率各向异性参量取代参量 χ , 简化一般性三维 von Neumann 方程.

3 结论

本文通过考虑实际多晶体组织中存在的各向异性因素, 提出了适用于实际多晶体组织的一般性三维 von Neumann 方程, 该方程表明凸形晶粒长大的准确速率决定于晶粒的平均切直径、三晶棱总长度和三晶棱处两面角的大小.

- [1] Kinderlehrer D 2007 *Nature* **446** 995
- [2] MacPherson R D , Srolovitz D J 2007 *Nature* **446** 1053
- [3] Barrales Mora L A , Gottstein G , Shvindlerman L S 2008 *Acta Mater.* **56** 5915
- [4] Wang H , Liu G Q 2008 *Appl. Phys. Lett.* **93** 131902
- [5] Glicksman M E , Rios P R , Lewis D J 2009 *Int. J. Mat. Res.* **100** 536
- [6] Wang H , Liu G Q , Yue J C , Luan J H , Qin X G 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** S137 (in Chinese) [王浩, 刘国权, 岳景朝, 栾军华, 秦湘阁 2009 物理学报 **58** S137]
- [7] Wang H , Liu G Q , Qin X G 2008 *Acta Metall. Sin.* **44** 13 (in Chinese) [王浩, 刘国权, 秦湘阁 2008 金属学报 **44** 13]
- [8] Wang H , Liu G Q 2008 *Acta Metall. Sin.* **44** 769 (in Chinese) [王浩, 刘国权 2008 金属学报 **44** 769]
- [9] Wang H , Liu G Q 2008 *Acta Metall. Sin.* **44** 1332 (in Chinese) [王浩, 刘国权 2008 金属学报 **44** 1332]
- [10] Zhao D W , Li J F 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 7094 (in Chinese) [赵达文, 李金富 2009 物理学报 **58** 7094]
- [11] Wang Z J , Wang J C , Yang G C 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 1246 (in Chinese) [王志军, 王锦程, 杨根仓 2008 物理学报 **57** 1246]
- [12] Barrales Mora L A , Mohles V , Shvindlerman L S , Gottstein G 2008 *Acta Mater.* **56** 1151
- [13] Gottstein G , Shvindlerman L S 2006 *Scrip. Mater.* **54** 1065
- [14] Glicksman M E , Rios P R , Lewis D J 2007 *Acta Mater.* **55** 4167
- [15] Hilliard J E 1967 *Stereology* (Elias H, ed. New York, Springer-Verlag) 221
- [16] Cahn J W 1967 *Trans. TMS-AIME* **239** 610
- [17] DeHoff R T , Liu G Q 1985 *Metall. Trans.* **16A** 2007
- [18] Wang H , Liu G Q , Luan J H , Yue J C , Qin X G 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** S132 (in Chinese) [王浩, 刘国权, 栾军华, 岳景朝, 秦湘阁 2009 物理学报 **58** S132]
- [19] Hilgenfeldt S , Kraynik A M , Koehler S A , Stone H A 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 2685
- [20] Russ J C , DeHoff R T 1999 *Practical Stereology* (2nd edition) (New York: Plenum Press) p117
- [21] Thinh Le , Qiang Du 2009 *Commun. Math. Sci.* **7** 551
- [22] Hillert M 1965 *Acta Metall.* **13** 227

Study on 3D von Neumann equation with anisotropy for convex grains*

Wang Hao¹⁾ Liu Guo-Quan^{1)2)†} Luan Jun-Hua¹⁾

1) (School of Materials Science and Engineering, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China)

2) (State Key Laboratory for Advanced Metals and Materials, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China)

(Received 20 March 2011; revised manuscript received 9 June 2011)

Abstract

Understanding the laws of grain growth in three dimensions is one of the classic problems of materials science. By considering the anisotropy in real polycrystalline structure and the relationship between the integral of surface mean curvature and the mean caliper diameter of a convex individual grain, three-dimensional von Neumann equation for accurate grain growth rate is studied. The result shows that accurate grain growth rate of a convex grain is related to the grain mean caliper diameter, the sum of the length of grain edges and the corresponding dihedral exterior angles. This result is verified by Kelvin tetrakaidecahedron and the only five convex regular polyhedra.

Keywords: three-dimensional grain growth, anisotropy, von Neumann relation, mean caliper diameter

PACS: 81.10.Aj, 61.82.Bg, 81.10.Jt

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 50901008, 50871017), the China Postdoctoral Science Foundation (Grant Nos. 20090460209, 201003050), the Doctoral Program Foundation of Institute of Higher Education of China (Grant No. 200800080003), and the Fundamental Research Funds for the Central Universities.

† E-mail: g.liu@ustb.edu.cn