

晶体相场法研究晶粒缩小过程中的位错湮灭与晶界迁移*

李尚洁[†] 陈铮 员江娟 张静

(西北工业大学, 凝固技术国家重点实验室, 西安 710072)

(2013年12月30日收到; 2014年2月18日收到修改稿)

通过晶体相场法模拟了与基体三种不同取向圆形晶粒在缩小过程中晶界上的位错湮灭机制与晶界迁移机制. 研究表明: 当圆形晶粒和基体的取向差 17° 时, 圆形晶粒和基体形成位错核心重叠的大角晶界, 用位错模型难以解释该演化过程, 但结果表明圆形晶粒半径的平方与演化时间成线性关系, 该关系与弯曲晶界迁移理论相互印证; 当取向差为 4° 时, 圆形晶粒和基体形成由分离位错构成的小角晶界, 在该晶粒缩小的过程中, 位错以径向攀移为主且会发生晶粒转动以调整位错间距, 随着位错间距的减小相互靠近的位错发生反应; 当取向差为 10° 时, 晶界既有位错核心重叠较小的部分也有由分离位错构成的部分, 在晶粒缩小时晶界演化表现为位错径向攀移和切向运动, 两种运动的耦合运动使得能相互反应的位错相互靠近并发生反应.

关键词: 晶体相场法, 位错湮灭, 晶界迁移**PACS:** 81.10.Aj, 61.43.Bn, 81.30.Fb**DOI:** 10.7498/aps.63.128101

1 引言

晶体材料大多数是多晶体, 多晶体中含有大量晶界. 由于晶界处严重的点阵畸变, 当晶粒间相对取向差较小时表现为位错; 当取向差较大时, 位错核心有重叠, 原子具有较高的动能, 可向相邻晶粒扩散. 正是由于晶界的特殊性, 使得晶界对多晶体的物理化学性质有重要影响^[1]. 而且晶粒越细小, 晶界在多晶体材料的物理化学性质上所起的作用越为重要, 以至于晶界的研究在材料研究中一直处于很重要的地位^[2]. 传统的晶界演化过程研究侧重于晶粒的长大, 诸如温度梯度对晶粒长大的影响^[3], 然而从晶粒缩小角度的研究不多. 在本文的研究中更侧重晶粒缩小过程中的晶界演化及位错湮灭; 以缩小晶粒为考察重点, 研究晶粒缩小过程中的位错湮灭以及晶界迁移机制. 经典晶界迁移理论中, 弯曲晶界的法向移动速度与晶界的平均曲

率成比例^[4], 晶界曲率是晶粒长大、晶界迁移的主要驱动力. 但该理论是在实验及生产实践中提炼出来的, 而在原子尺度对该规律的验证少之又少, 这就使得对该理论在原子层面的研究显得迫切且意义重大. 同样, 对于晶界结构而言, 也提出相应的理论模型去解释相应的物理现象, 晶界上位错的变化情况也是相应理论的推演, 很难从实验中准确确定晶界结构以及位错的变化情况. 在实验中已证明晶界迁移可以引起晶格的切向运动^[5]; 龙建等^[6]研究了不同对称性下晶界结构演化, 分析了小角对称与非对称晶界和大角对称与非对称晶界在变形过程中的演化及微观机理; 最近Cahn和Taylor^[7]的研究表明晶粒长大过程中晶界中的位错存在切向运动和法向运动的耦合运动. 虽然该结果使人们对晶粒长大过程中位错的运动情况有了更深入的了解, 但是也未能从原子细节研究晶界演化过程中的位错变化情况.

为了阐明晶粒间晶界的迁移机制, 最好能在原

* 国家自然科学基金 (批准号: 51274167, 51174168) 和高等学校博士点专项科研基金 (批准号: NDYD0008) 资助的课题.

[†] 通讯作者. E-mail: 502410925@qq.com

子尺寸呈现晶界结构. 得益于计算机技术的快速发展, 本文对晶界迁移理论从原子尺度进行了验证, 同时从原子尺度研究了晶界迁移过程中位错的变化情况. 在传统的模拟方法中, 分子动力学方法虽然能够展现晶界的原子级结构, 然而时间尺度太小; 传统相场法时间尺度较大, 然而不能展现原子级别的晶界结构. 基于以上两种模拟方法的优缺点, 2002年 Elder 等^[8]提出晶体相场模型, 该模型引入周期原子密度状态使得自由能最小化来模拟原子尺寸和扩散时间尺度的物理现象. 从该模型的提出到现在, 已经成功运用于异质外延^[9]、晶界能量^[10]、调幅分解^[11]等一系列模拟.

本文利用晶体相场模型在原子尺度和扩散时间尺度的优点构建一个嵌入基体的圆形晶粒, 该圆形晶粒生长和基体形成圆形的晶界; 研究了该圆形晶粒相对于基体三种不同取向下的缩小过程中的位错湮灭及晶界迁移机制.

2 模拟方法

2.1 晶体相场模型

本文使用 Elder 等^[8]构建的晶体相场模型, 该模型的无量纲自由能表达式

$$F = \int d\mathbf{r} \left\{ \varphi [\varepsilon + (\nabla^2 + 1)^2] \frac{\varphi}{2} + \frac{1}{4} \varphi^4 \right\}, \quad (1)$$

其中 F 是无量纲的自由能, φ 是保守场序参量表示局域原子密度, ε 表示与温度有关的常数, ∇^2 表示拉普拉斯算子. 由于 φ 是保守场序参量, 根据 Chan-Hilliard 方程得出其无量纲动力学方程为

$$\frac{\partial \varphi}{\partial t} = \nabla^2 [\varepsilon \varphi + (\nabla^2 + 1)^2 \varphi + \varphi^3], \quad (2)$$

在该模型中, 系统自由能泛函的基态对应于具有某种晶体对称的周期性结构有三种平衡相-液相、条状相、三角相. 关于该模型具体的热力学相图, 文献^[12]中有过深入讨论, 本文的计算区域就是该相图上靠近液相线的六角相区域.

2.2 数值计算方法

对动力学方程(2)中的算符 ∇^2 采用半隐式傅里叶谱方法^[11]来求解, 其离散形式为

$$\frac{\hat{\varphi}_{n+1} - \hat{\varphi}_n}{\Delta t} = -k^2 \{ [\varepsilon + (1 - k^2)^2] \hat{\varphi}_{n+1} + \hat{\varphi}_n^3 \}, \quad (3)$$

其中 $\hat{\varphi}_n, \hat{\varphi}_n^3$ 分别为(2)式中 φ_n, φ_n^3 的傅里叶变换, \mathbf{k} 为傅里叶空间下的波矢. 在本文的模拟中时间步长 $\Delta t = 0.5$; 空间步长为 $\Delta x = \Delta y = \pi/4$, 计算区域大小为 $1024\Delta x \times 1024\Delta y$. 采用二维三角相作为研究对象, 对方程(2)单模近似

$$\varphi_t = A \left[\cos(q_0 x) \cos(q_0 y / \sqrt{3}) - \frac{1}{2} \cos(2q_0 y / \sqrt{3}) \right] + \varphi_0, \quad (4)$$

其中 $A = \frac{4}{5}(\varphi_0 - \sqrt{-15\varepsilon - 3\varphi_0^2}/3)$ 为密度波的振幅, $q_0 = \sqrt{3}/2$ 为倒易晶格矢量的模, φ_0 为平均密度. 为保持很高的晶界运动性, 在相图^[12]中采用靠近固液共存区的点, 取 $(\varepsilon, \varphi_0) = (-0.25, 0.285)$. 在本文的研究中两晶粒的三种取向分别为 $17^\circ, 10^\circ, 4^\circ$, 对应于较大取向、居中取向、较小取向.

3 双晶组织晶界演化过程中的位错湮灭及晶界迁移机制

3.1 双晶取向差较大的演化过程

从较大取向演化图1和较小取向演化图3的对比中可以得出结论: 当两晶粒的取向差很大, 这时晶界中的位错核心重叠, 已经是大角度晶界. 晶界迁移理论指出, 原子跨越晶界跳跃是大角度晶界迁移的主要机制. 在描述晶界迁移的理论中, 晶界法向的运动速度与晶界曲率的关系如(5)式所示:

$$v_n = M\gamma\alpha, \quad (5)$$

其中 v_n 为晶界法向的运动速度, M 晶界迁移率, γ 是单位长度的晶界能, α 是晶界曲率. 由(5)式可以看出, 弯曲晶界的法向移动速度与晶界的平均曲率成比例增大或缩小 (M, γ 不变). 由于本文中采用圆形晶粒嵌入基体中形成的晶界(如图1), 所以晶界曲率 $\alpha = 1/R$, R 为圆形晶粒的半径. 对于本文的圆形晶界在缩小过程中(5)式 v_n 用晶粒半径对演化时间 t 的微分表示:

$$dR/dt = -M\gamma/R, \quad (6)$$

对上式积分可得

$$R^2(t) = R^2(0) - 2M\gamma t. \quad (7)$$

从(7)式可以得出: 对于经典的晶界迁移理论, 当 M, γ 不变时圆形晶粒半径的平方与演化时间成线

性关系. 以下内容是用晶体相场法对该理论进行验证.

在晶体相场法模拟中, 设置圆形晶粒和被嵌入基体的取向差为 17° , 演化过程如图1所示. 由图1(b), (c), (d)可得出在圆形晶粒缩小的过程中并未发生晶粒转动, 始终都是 17° ; 由于晶粒并未发生转动, 所以晶界结构并没有发生质的改变, 由此可以得出单位长度晶界能 γ 并未改变, 同时晶粒缩小过程中和温度相关的常数 ε 并未改变, 所以 M 不

变; 从以上对模拟结果、模拟条件的分析可以得出, (7)式中的变量具有成线性关系的条件. 本文拟合了圆形晶粒半径和时间的演化关系(图2), 进一步直观表现模拟结果, 其中横坐标是时间 t , 纵坐标是圆形晶粒半径的平方(圆形晶粒的半径是准确测量位错核心到该晶粒中心点的距离, 单位是原子间距 b). 图2中所示黑点为模拟所得结果, 直线为黑点拟合出的直线, 从而从原子角度验证了(5)式的正确性, 模拟结果和晶界迁移理论相互印证.

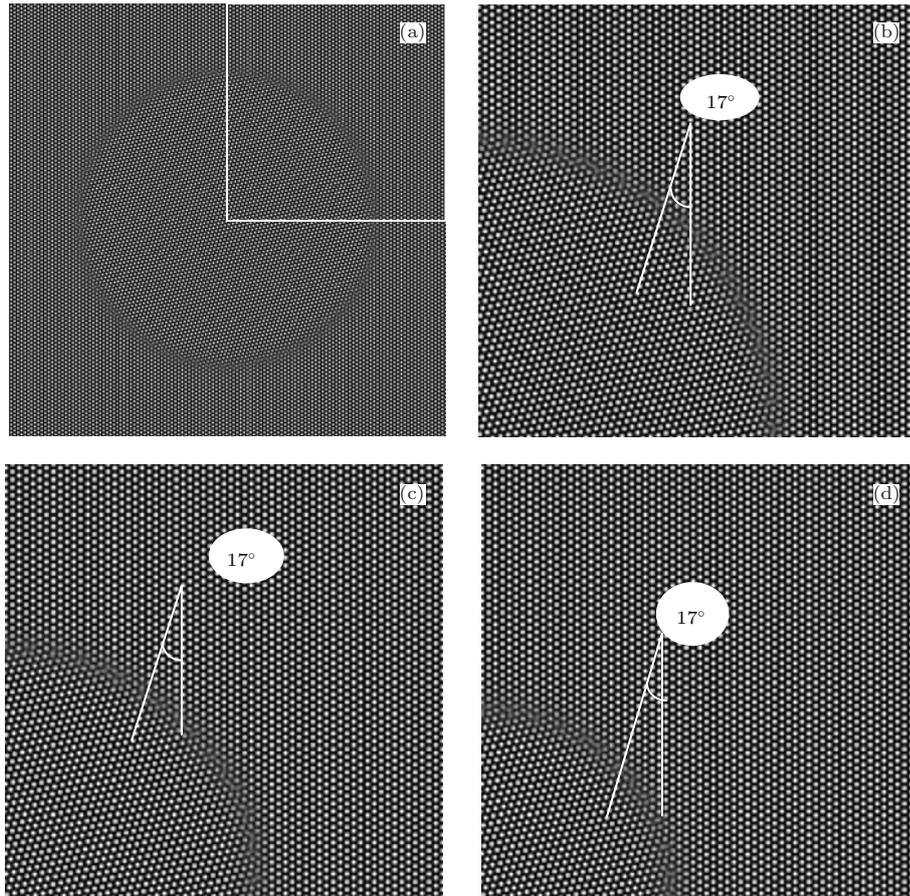


图1 取向差为 17° 的晶界演化过程 (a) $t = 0$; (b) 白色方框的放大图; (c) $t = 30000$; (d) $t = 60000$

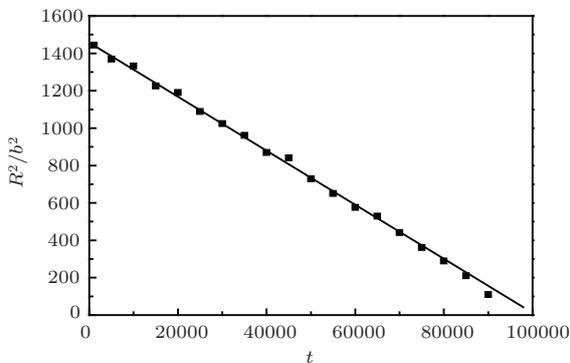


图2 取向差为 17° 圆形晶粒半径的平方与晶界演化时间的模拟关系

3.2 双晶取向差较小的演化过程

当圆形晶粒和基体取向差很小时, 圆形晶粒和基体形成小角晶界, 根据传统小角晶界的结构模型, 可以知道小角晶界的结构主要是由位错构成. 在晶体相场模型的模拟中, 当设置初始状态两晶粒取向差(4°)很小时, 可以验证晶界的结构由一系列离散位错构成, 这点可以从图2(a)和图3(a)的对比中看出, 图中所示颜色较深部分即为两晶粒边界形成的位错.

从图3的四幅图中可以得到圆形的晶粒逐渐

减小, 直至某一时刻完全消失. 比较图 3(a), (b), (c) 和 (d), 可以知道图 3(a), (b), (c) 中的位错数量并没有发生变化, 都是 18 个, 而图 3(d) 中的位错数量减小至 16 个. 由此可以得出在圆形晶粒缩小的过程中发生了位错反应, 直至位错全部消失形成一个晶粒. 还可以从图 3 中得出的结论是: 位错的移动在该模拟条件下是以攀移为主要机制, 位错大致攀移方向是沿径向向圆形晶粒的中心点移动; 随着位错的运动, 位错间距逐渐减小, 临近的几个位错会发生反应. 具体的位错反应过程示于在图 4 中, 白色箭头是位错的柏氏矢量方向, 图 4(a) 中用白色椭圆圈起来的两个位错发生反应, 结果 (a) 图中标出的三个位错变为 (b) 图中白色圈内的两个位错. 随着时间的推移, 还存在位错反应, 位错的数量进一步减少, 直到位错完全消失.

当两晶粒的取向差较小时, 在演化的过程中存在圆形晶粒的转动, 模拟结果如图 5 所示. 初始取向是 4° , 随着演化的进行取向有增大的趋势. 对

于该转动的解释可以从对称倾侧晶界两晶粒取向角 θ 、两相邻位错间距 D 以及柏氏矢量 \mathbf{b} 的关系式 ($\mathbf{b}/D = \sin \theta \approx \theta$) 中得到启示. 该式中在没有发生位错反应时柏氏矢量 \mathbf{b} 是不变的, 所以 $D\theta = \mathbf{b}$. 在该圆形晶粒的演化过程中, 位错间距 $D = 2\pi R/N$, 式中 R, N 为圆形晶粒的半径和位错数量; 在发生位错反应之前, 位错的数量是不变的, 半径 R 逐渐减小导致 D 也随之减少; 由 $D\theta = \mathbf{b}$ 可得 θ 逐渐增大, 表现为模拟中的晶粒转动. 该模拟结果与文献 [6] 中的研究结果一致.

3.3 双晶取向差居中的演化过程

当圆形晶粒和基体的取向差为 10° 时, 两晶粒形成的晶界既有单个的位错 (图 6 中椭圆内的位错), 也有位错核心重叠较小的部分 (图 6 中长方形内的位错). 动力学表现为既有大取向晶界的特征又有小取向晶界的特征.

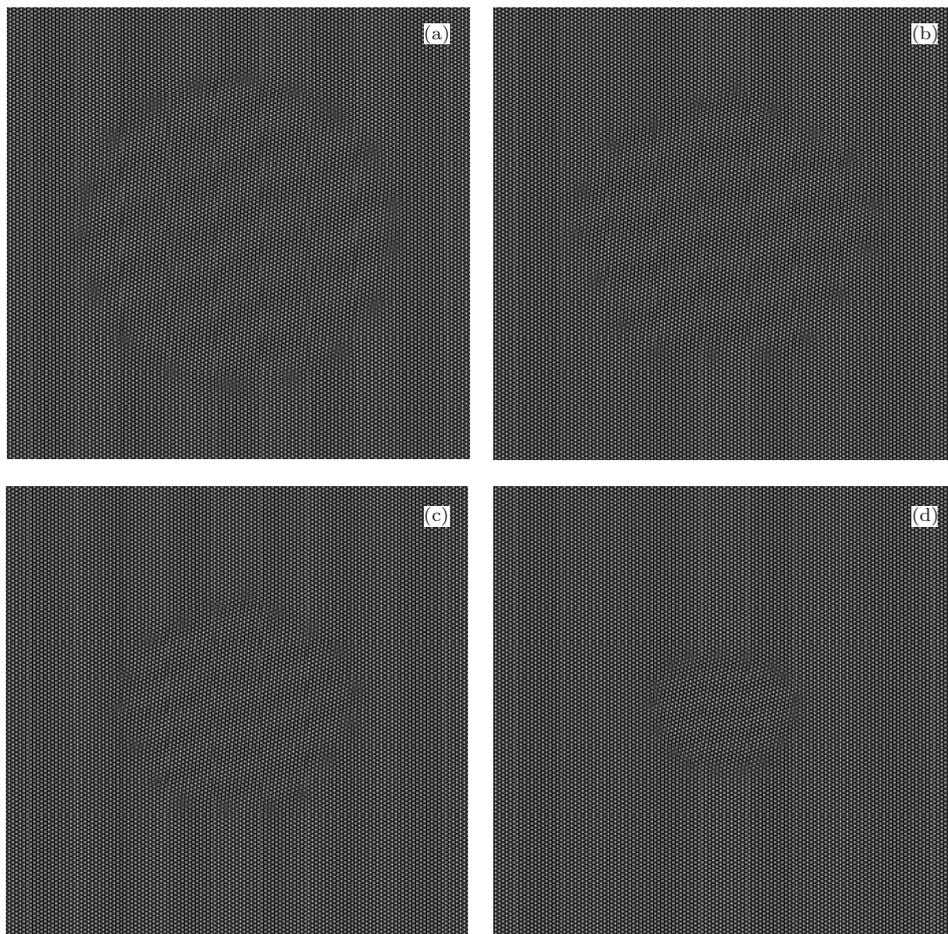


图 3 取向差为 4° 时晶界上位错湮灭过程 (a) $t = 1000$; (b) $t = 100000$; (c) $t = 250000$; (d) $t = 400000$

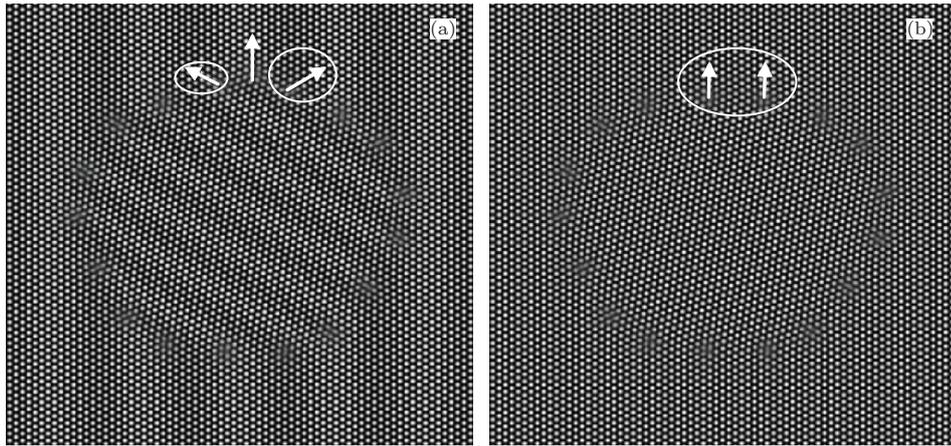


图4 取向差为 4° 时晶界演化过程中的位错反应

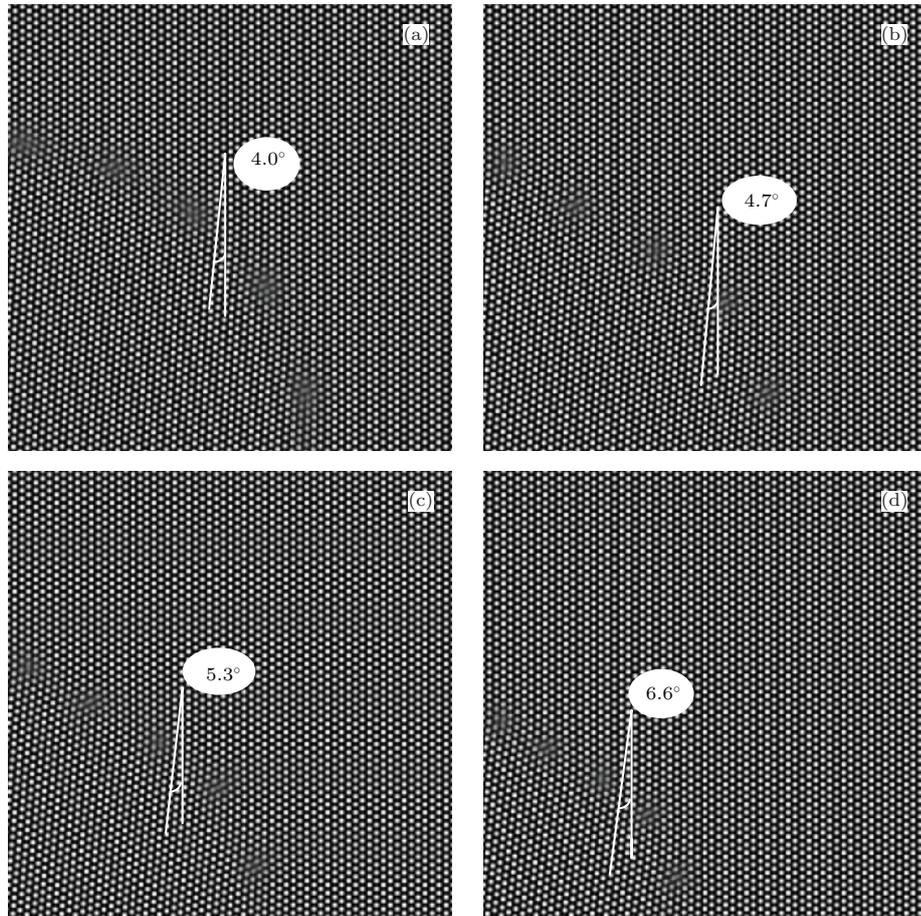


图5 初始取向差为 4° 时的晶粒转动 (a) $t = 1000$; (b) $t = 100000$; (c) $t = 200000$; (d) $t = 320000$

在该取向的模拟中,晶界形成三种具有不同柏氏矢量的位错,图7(a)中矩形、椭圆、菱形中的箭头指向三种位错的柏氏矢量的方向.比较图7(b),(c)白色方框内的六个位错,可明显得出演化过程中不但有位错的径向攀移还有位错沿晶界的切向运动,该模拟与文献[7]中研究位错演化的结果一致.比较图7(a),(d)中的位错,可以发现位错数量减小了

一个,这是发生位错反应的缘故.具体的位错反应可由图7(b),(c),(d)看出,发生反应的位错是(b),(c)中的两虚线椭圆内的位错,随着趋向于平衡的演化,虚线椭圆内的两位错沿圆形晶粒切线运动,两位错的间距越来越小,直到两位错相遇时发生反应;比较图7(c),(d)可以看出,位错反应形成的位错是实线椭圆内三个位错之一.

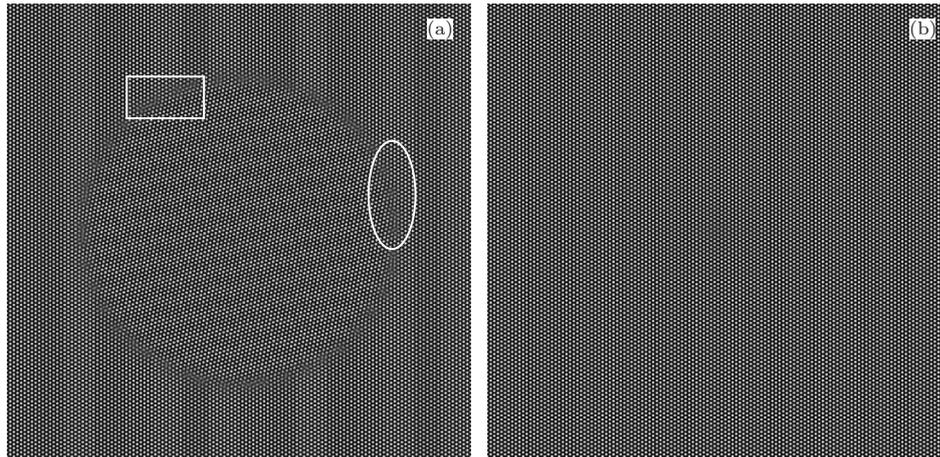


图6 取向差为 10° 时的演化初始态(a)和终了态(b)

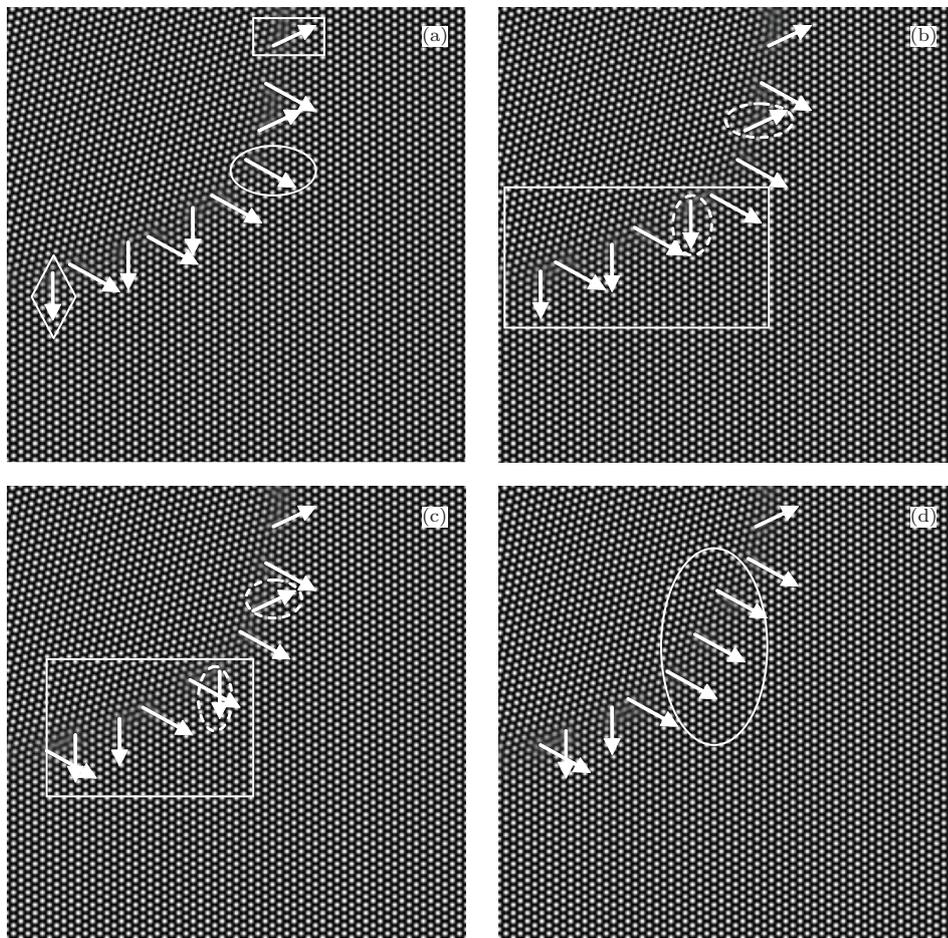


图7 取向为 10° 时位错的演化细节 (a) $t = 65000$; (b) $t = 70000$; (c) $t = 75000$; (d) $t = 80000$

4 结 论

本文通过晶体相场模型研究了圆形晶粒嵌入基体中三种不同取向的晶界演化过程, 得到如下结论:

1) 当两晶粒取向很大时, 形成位错核心重叠的大角晶界且圆形晶粒半径的平方与演化时间成线性关系, 与经典晶界迁移理论相互印证;

2) 当两晶粒取向很小时, 晶界由相互分离的位错构成, 表现为小角晶界; 在圆形晶粒缩小过程中, 位错以径向攀移为主; 同时圆形晶粒为调整位错间

距会发生晶粒转动, 保持低能态; 随着位错间距的减少、圆形晶粒的转动, 具备反应条件的位错发生反应;

3) 当两晶粒取向居中时, 皆有大取向和小取向的晶界形态学特征; 位错不但会向径向攀移还会沿切向运动, 切向运动和径向攀移的耦合运动以至能发生反应的位错逐渐靠近并发生反应.

参考文献

- [1] Chen W M, Wang Z D 2013 *Chin. Phys. B* **22** 098104
- [2] Chen W M, He G W, Chen X Y, Wang Z D 2012 *Chin. Phys. B* **21** 106802
- [3] Wei C Y, Li S Y 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 100701 (in Chinese)[魏承炆, 李赛毅 2011 物理学报 **60** 100701]
- [4] Sutton A P, Balluffi R W 1995 *Interfaces in Crystalline Materials* (Oxford: Oxford University Press) p325
- [5] Li C H, Edwards E H, Washburn J, Parker E R 1953 *Acta Metall.* **1** 223
- [6] Long J, Wang Z Y, Zhao Y L, Yang T, Chen Z 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 218101 (in Chinese)[龙建, 王诏玉, 赵宇龙, 杨涛, 陈铮 2013 物理学报 **62** 218101]
- [7] Cahn J W, Taylor J E 2004 *Acta Mater.* **52** 4887
- [8] Elder K R, Katakowski M, Haataja M, Grant M 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 245701
- [9] Chen C, Chen Z, Zhang J, Yang T 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 108103 (in Chinese)[陈成, 陈铮, 张静, 杨涛 2012 物理学报 **61** 108103]
- [10] Ren X, Wang J C, Yang Y J, Yang G C 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 3595 (in Chinese)[任秀, 王锦程, 杨玉娟, 杨根仓 2010 物理学报 **59** 3595]
- [11] Yang T, Chen Z, Zhang J, Dong W P, Wu L 2012 *Chin. Phys. Lett.* **29** 078103
- [12] Elder K R, Grant M 2004 *Phys. Rev. E* **70** 051605

Phase-field crystal method investigated the dislocation annihilation and grain boundary migration in grain shrink process*

Li Shang-Jie[†] Chen Zheng Yun Jiang-Juan Zhang Jing

(State Key Laboratory of Solidification Processing, Northwest Polytechnical University, Xi'an 710072, China)

(Received 30 December 2013; revised manuscript received 18 February 2014)

Abstract

The phase-field crystal method is used to analysis the dislocation annihilation and grain boundary migration mechanism in the grain shrink process of the circular grain which has three different misorientations from the matrix grain. Results show that when the misorientation between the circular grain and the matrix grain is 17° , the structure of grain boundary is composed of dislocations whose cores is so near that can not find a single dislocation. This grain boundary can not be explained by the dislocation model. However the circular grain area decreases linearly with time, which is in good agreement with the classical boundary migration theory. When the misorientation is 4° , the grain boundary structure is composed of discrete dislocations. Dislocations climb along the radial direction and the grain rotation occurs for the circular grain to adjust the space of dislocations in the process of circular grain shrinkage. Reactions may take place with the dislocations becoming closer. For the misorientation of 10° , portion of the grain boundary is composed of discrete dislocations and portion of dislocations with cores overlapped. Dislocations climb along the radial direction and tangential motion occurs at the same time in the grain shrinkage process. The coupled motion lead to the dislocations becoming close and reacting with each other.

Keywords: phase field crystal, dislocation annihilation, grain boundary migration

PACS: 81.10.Aj, 61.43.Bn, 81.30.Fb

DOI: [10.7498/aps.63.128101](https://doi.org/10.7498/aps.63.128101)

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 51274167, 51174168) and the Specialized Research Fund for the Doctoral of Universities, China (Grant No. NDYD0008).

[†] Corresponding author. E-mail: 502410925@qq.com