

初始原子排列对亚晶界湮没影响的晶体相场模拟*

Simulation of the Influence of Initial Atomic Arrangement to Sub-grain Boundary Annihilation by Phase Field Crystal Method

邓芊芊¹, 华平¹, 欧梅莲¹, 白新源¹, 高英俊^{1,2**}

DENG Qian-qian¹, HUA Ping¹, OU Mei-lian¹, BAI Xin-yuan¹, GAO Ying-jun^{1,2}

(1. 广西大学物理科学与工程技术学院, 广西南宁 530004; 2. 广西大学广西有色金属及特色材料加工重点实验室, 广西南宁 530004)

(1. College of Physics Science and Engineering, Guangxi University, Nanning, Guangxi, 530004, China; 2. Guangxi Key Laboratory for Non-ferrous Metal and Featured Materials, Nanning, Guangxi, 530004, China)

摘要:【目的】研究初始原子对亚晶界湮没机制的影响。【方法】采用晶体相场模型模拟亚晶界结构在应力作用下的湮没过程,并从位错运动和能量变化角度对湮没过程进行分析,同时讨论初始原子在两晶粒交界处的对齐程度对其后亚晶界湮没的影响。【结果】研究表明,初始晶界原子排列错位 $1/4$ 晶格常数时,首先位错在晶界处攀移,然后位错同时分离成两个,一个分离出的位错停留于原位,另一个则进入亚晶内部进行攀移和滑移直至相遇湮没,之后原来停留于原位的位错在攀移一段时间后也进入亚晶内部进行攀移和滑移,最终相遇湮没,形成单晶。而初始晶界原子排列错位 $1/2$ 晶格常数时,湮没过程与初始晶界原子排列错位 $1/4$ 晶格常数时的情况存在很大的差异。【结论】亚晶界湮没过程中,位错直接进入亚晶内部进行攀移和滑移,位错间发生复杂的相互作用,最终位错全部湮没,形成单晶。同时体系能量将随应力的增加而波动下降,形成 4 个明显的峰谷。

关键词:晶体相场模型 亚晶界 初始原子对齐程度 应力诱发湮没

中图分类号: TG111.2 **文献标识码:** A **文章编号:** 1005-9164(2014)03-0252-05

Abstract:【Objective】The aim of this study is researching the influence of initial atomic arrangement to sub-grain boundary annihilation.【Methods】The phase field crystal model is employed to simulate the annihilation process of sub-grain boundary (SGB) under strain. We have analyzed the process from two aspects of dislocation movement and system energy, then discussed the influence of initial atomic arrangement on the subgrain annihilation.【Results】The simulation result show that, as the lattice misfit is $a/4$ (a : The distance between atoms), dislocations firstly climb along the SGB under strain, then all dislocations break up into two new dislocations. One of the two dislocations climb and glide into the grain. For a while, the dislocation crosses the grain until it is annihilated with another dislocation moving along opposite direction. At this moment, the other continues to move in the style of climbing. When getting enough energy, they climb and glide into the grain, too. Finally, they are annihilated with another dislocation and the two grain systems with SGB become one grain

收稿日期:2014-01-20

修回日期:2014-02-13

作者简介:邓芊芊(1990-),男,硕士研究生,主要从事材料微结构演化及物理性能的研究。

* 国家自然科学基金(51161003,50661001,50061001),广西自然科学基金(2012GXNSFDA053001)、广西大学广西有色金属及特色材料加工重点实验室开放基金(GXKFJ12-01)和 2013 年广西大学本科实验技能与科技创新能力训练项目资助。

** 通讯作者:高英俊(1962-),男,教授,博士生导师,主要从事新材料设计与计算机模拟实验研究。E-mail: gaoyj@gxu.edu.cn.

and the two grain systems with SGB become one grain

system. As the lattice misfit is $a/2$, the annihilation process changes largely compared with that of lattice misfit being $a/4$. **【Conclusion】** Although all dislocations climb and glide into the grain at the beginning of the simulation, a complex interaction appear during the process, finally all dislocation are annihilated and the two grain systems with SGB become one grain system. The system energy of the process decreases with strain increasing, and 4 peaks and valleys appear during this process.

Key word: phase field crystal model, sub-grain boundary, initial atomic arrangement, annihilation under strain

【研究意义】 实际应用的金属和合金的宏观特性来源于其微观结构, 研究物质的微观结构以改善其宏观性能对于设计与制造新材料具有重要意义。金属和合金大多以多晶形式存在。多晶的性能与晶界结构密切相关, 而亚晶界作为一类重要的晶界, 对多晶材料有着重要影响^[1,2]。**【前人研究进展】** 亚晶界由一系列位错按特定方式排列构成。亚晶界的结构及其迁移方式对材料的力学行为有重要的作用^[3~5]。通常认为, 亚晶界是一种位错源, 应力作用时的位错迁移会导致亚晶界的湮没^[6~10]。在现有的实验条件下很难直接观察到亚晶界上的位错分布及其在外力作用下的运动。随着计算机技术的发展, 计算机模拟完全可以揭示原子尺度的现象和纳米尺度下亚晶界结构的变化, 弥补实验的不足。相场法是当今研究微观组织演化的重要的数值计算方法^[11]。与传统相场法不同, 基于密度泛函理论的晶体相场模型可以反映原子空间尺度和扩散时间尺度上的现象, 具有明显的优势。晶体相场模型还可以自洽地耦合弹性应变、各向异性和对称性等原子信息, 自提出以来已有较多应用^[12~14]。**【本研究切入点】** 目前, 运用晶体相场模拟亚晶界演化的研究主要针对的是共格孪晶界^[15~20], 而对于非共格孪晶界演化的研究还比较少。**【拟解决的关键问题】** 本文采用晶体相场模型研究纳米尺度下初始原子排列情况对亚晶界湮没的影响, 从位错运动和能量变化两个角度揭示两晶粒交界处的位错对的湮没机制。

1 模型与方法

1.1 晶体相场模型

晶体相场模型采用具有周期性局部时间的平均密度作为序参量。这个序参量构造出的自由能密度泛函自洽地包括了弹性应变等由周期性决定的性质。对于晶相, 其原子的位置是周期性排列的, 因此采用周期性对称的原子密度描述, 即

$$\rho = \sum_{n,m} c_{n,m} e^{i\vec{G}\cdot\vec{r}} + \rho_0, \quad (1)$$

上式与晶体点阵的周期性一致, ρ 的最大值表示实际

空间中原子的位置。对于液相中的原子, 其原子位置随时间变化, 运动规律随机, 故采用恒定的平均密度 ρ_0 来描述。

系统中的无量纲纯物质自由能可以构造为

$$F = \int \left\{ \frac{\rho}{2} [\epsilon + (1 + \nabla^2)^2] \rho + \frac{\rho^4}{4} \right\} dV, \quad (2)$$

式中, dV 为空间单位体积, ϵ 是与系统温度有关的参量, ∇^2 为 Laplace 算子, 系统的周期性由自由能中的梯度项 $\nabla^2 \rho$ 和 $\nabla^4 \rho$ 决定。

系统演化的动力学方程为

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \nabla^2 \frac{\delta F}{\delta \rho} + \zeta = \nabla^2 \{ [r + (1 + \nabla^2)^2] \rho + \rho^3 \} + \zeta, \quad (3)$$

式中, t 为时间变量, δ 为 Dirac 函数, ζ 为 Gauss 随机噪声。

对(1)式的二维解进行单模近似可以得到

$$\rho = A \left[\cos(qx) \cos\left(\frac{qy}{\sqrt{3}}\right) - \frac{1}{2} \cos\left(\frac{2qy}{\sqrt{3}}\right) \right] + \rho_0, \quad (4)$$

式中, ρ_0 为平均密度, A 为振幅, 波数 $q = \sqrt{3}/2$ 。

由这个简单相场模型所构造的自由能函数存在 3 种平衡相: 液相、条状相和三角相。通过单模近似法可以得到这 3 种相的平衡自由能密度, 然后根据 Gibbs 自由能公切线法确定相图, 如文献[2]中的图 1 所示。

1.2 数值计算与参数设置

对动力学方程(3)中的梯度项进行半隐式 Fourier 谱方法求解, 其离散形式为

$$\frac{\rho_{\vec{k}, t+\Delta t} - \rho_{\vec{k}, t}}{\Delta t} = -k^2 \{ [r + (1 - k^2)^2] \rho_{\vec{k}, t+\Delta t} + (\rho^3)_{\vec{k}, t} \},$$

整理合并可以得到如下形式

$$\rho_{\vec{k}, t+\Delta t} = \frac{\rho_{\vec{k}, t} - k^2 \Delta t (\rho^3)_{\vec{k}, t}}{1 + k^2 \Delta t [r + (1 - k^2)^2]}, \quad (5)$$

式中, $\rho_{\vec{k}, t+\Delta t}$ 和 $\rho_{\vec{k}, t}$ 分别为 Fourier 空间中 $t + \Delta t$ 和 t 时刻的原子密度, 其中 \vec{k} 为 Fourier 空间的波矢。

在本文的模拟中, 采用三角相表征晶体相。所选

参数 $r = -0.25$, $\rho_0 = 0.285$, 位相差 $\theta = 6.5^\circ$, 空间步长 $\Delta x = \Delta y = \pi/4$, 时间步长 $\Delta t = 0.5$, 边界条件为周期性边界条件。初始条件按如下方法给出: 对于 $L_x \times L_y = 256\Delta x \times 256\Delta y$ 的区域, 通过(4)式设置三角相的取向在 $0 < x < L_x/4$ 和 $3L_x/4 < x < L_x$ 的范围内为 $\theta/2$, 在 $L_x/4 < x < 3L_x/4$ 的范围内为 $-\theta/2$ 。同时, 为了不影响晶界的性质, 让体系经历 $T = 90000$ 时间步演化直至系统达到稳定。

在变形模拟过程中采用等体积条件假设。施加的应变 $\epsilon = \epsilon n \Delta t$, 其中 n 为时间步数, ϵ 为无量纲的应变速率, 在本文的模拟中取 $\epsilon = 6 \times 10^{-6}$ 。根据等体积条件假设

$$S = \Delta x \Delta y = \Delta x' \Delta y'$$

式中, Δx 和 Δy 为初始空间步长, $\Delta x'$ 和 $\Delta y'$ 为变形后的空间步长。经 n 个时间步长后, 空间步长分别为

$$\Delta x' = (1 + \epsilon) \Delta x = \Delta x + n\epsilon \Delta t \Delta x,$$

$$\Delta y' = \frac{\Delta x \Delta y}{\Delta x'} = \frac{\Delta y}{1 + n\epsilon \Delta t}$$

1.3 初始晶界结构的设置

在初始状态下对两个晶粒中的任一个沿晶界上下平移, 便可以得到在两晶粒交界处原子排列的错位。为了对这种错位程度进行量化, 本文采用原子偏离对齐位置的距离 d 占两排晶粒相对 y 轴的距离的百分比 G 描述两块晶粒的对齐程度。

图 1 为两个晶粒交界处的晶界示意图。图 1(a) 和 (b) 分别为原子在晶界处错位 $1/4$ 和 $1/2$ 晶格常数的情况。其中令两行晶粒的垂直距离为 h , 经过推算可以得到 $h = 2\pi = \sqrt{3}a/2$ (a 为晶格常数)。令两行晶粒相对 y 轴的距离为 g , 由边角关系可以得到 $g = h/\cos(\theta/2) = 2\pi/\cos(\theta/2)$ 。如图 1 所示, 右方的晶粒向下平移了一段长度为 d 的距离, 那么此时晶粒的对齐程度就可以用 $d = G \cdot 2\pi/\cos(\theta/2)$ 来表示。

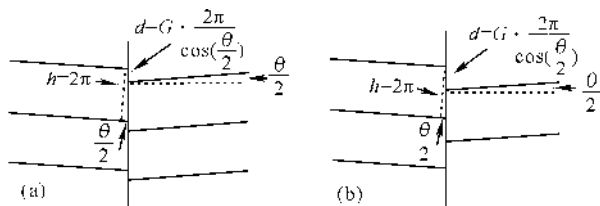


图 1 晶粒边界处示意图

Fig. 1 Diagrammatic sketch of SGB

(a) 原子在晶界处错位 $a/4$ 的情况, (b) 原子在晶界处错位 $a/2$ 的情况

(a) Lattice misfit of initial atomic arrangement equal $a/4$, (b) Lattice misfit of initial atomic arrangement equal $a/2$

2 结果与分析

2.1 晶界原子对齐的湮没情况

当体系中的初始原子在两晶粒交界处完全对齐, 也就是 $G = 0$ 时, 该情况与文献[16]中方案 A 的情况类似。晶界湮没能量曲线由两个峰和两个谷构成, 与文献[16]报道的过程一致, 见文献[16]中的图 4 和图 5(a)。

2.2 晶界原子在晶粒交界处错位 $1/4$ 晶格常数的湮没情况

初始条件下原子在两块晶粒交界处错位 $a/4$ 晶格常数, 也就是 $G = 0.25$ 时, 亚晶界的湮没方式与 $G = 0$ 的情况相比发生了明显变化。

体系达到平衡后, 每条亚晶界上依然会存在 4 个位错, 体系内仍存在 8 个位错(图 2(a), 箭头表示位错的运动方向)。这 8 个位错经过一段时间的攀移后同时发生分离(图 2(b))。分离出的位错其中一个停留于原位(图 2(b)中的 A1、B2、C1、D2、E2、F1、G2、H1), 另一个进入亚晶内部进行攀移和滑移(图 2(b)中的 A2、B1、C2、D1、E1、F2、G1、H2)。这些进入亚晶内部的位错在移动至晶粒中部后, 两两相互吸引, 改变了原来的运动方向并逐渐靠近(图 2(c)和(d)中的 A2、B1、C2、D1、E1、F2、G1、H2)。这些相互吸引的位错相遇后便湮没消失(图 2(e))。这时, 体系还存在 8 个分解后的位错: A1、B2、C1、D2、E2、F1、G2、H1。这 8 个位错在体系发生第一次湮没后, 进入亚晶内部进行攀移和滑移(图 2(f), (g))。当它们两两相遇后发生湮没消失, 体系形成单晶(图 2(h))。

从能量角度分析该情况的整个过程(图 2(i))。在 8 个位错第一次攀移的过程中, 体系畸变程度不断增加, 畸变能上升, 总能量也随之升高。当 8 个位错同时分离时, 位错进入亚晶内部, 使体系的畸变程度减小, 畸变能下降, 总能量开始降低。在第一次位错相遇湮没时, 总能量达到极小值。之后, 剩余的位错进行了一小段时间的攀移, 总能量略有上升。剩余的位错进入亚晶内部以后, 总能量再次下降。待位错相遇湮没后, 体系形成单晶, 总能量也下降至最低。

2.3 晶界原子在晶粒交界处错位 $1/2$ 晶格常数的湮没情况

初始条件下原子在两块晶粒交界处错位 $a/2$ 晶格常数, 也就是 $G = 0.5$ 时, 与 $G = 0.25$ 的情况相比亚晶界的湮没过程存在新的特点。

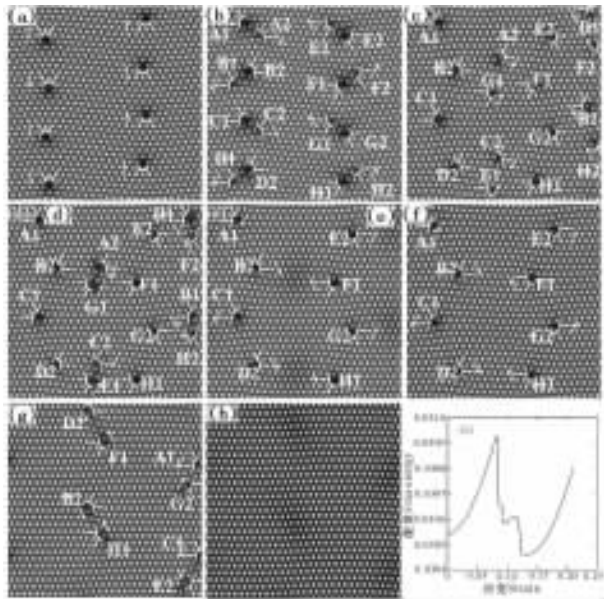


图2 初始晶粒错开1/4时的亚晶界湮没情况(a~h)和体系能量随应变增加的变化(i)

Fig. 2 Annihilation process (a~h) and system energy variety with the increasing strain (i) when lattice misfit of initial atomic arrangement equal $a/4$

弛豫至平衡状态后,亚晶界上的位错并未对称出现,左边晶界出现4个位错,而在右边的晶界上出现了5个位错(图3(a))。这些位错在湮没过程开始时便进入亚晶内部并相互发生反应。首先位错B和H合并形成BH(图3(b),(c)),之后D和F合并形成DF(图3(d),(e)),然后DF与G合并形成DFG(图3(f),(g)),BH与E合并形成BEH(图3(h),(i)),接着BEH与C合并形成BCEH(图3(j),(k)),DFG与A合并形成ADFG(图3(l),(m)),接下来BCEH与I合并形成BCEHI(图3(n),(o)),最后BCEHI与ADFG相遇湮没消失,体系形成完整单晶(图3(p),(q))。

从能量角度分析该情况(如图3(r)所示)。在整个湮没过程中,能量以波动形式逐渐下降,存在明显4个波动的深谷特征。直至体系形成单晶,能量下降至最小值。

3 结论

本文采用晶体相场方法研究了初始条件下晶界的原子排列的对齐程度对之后亚晶界湮没过程的影响。结果表明:

(1)若将两晶粒的晶界原子排列错位,使晶界处的原子排列不对齐,将使亚晶界的湮没机制发生变化。

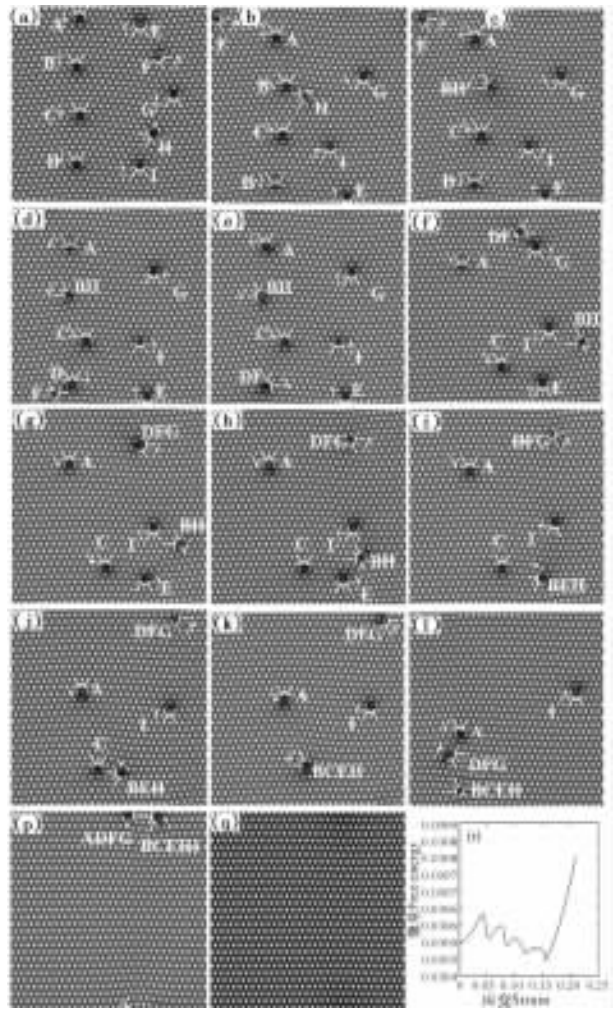


图3 初始晶粒错开1/2时的亚晶界湮没情况(a~q)和体系能量随应变增加的变化(r)

Fig. 3 Annihilation process (a~q) and system energy variety with the increasing strain (r) when lattice misfit of initial atomic arrangement equal $a/2$

(2)当原子在晶界处错位1/4晶格常数时,亚晶界的湮没变为两个阶段,位错分离与湮没的方式也发生了变化:在第二阶段,8个位错同时分离出2个位错,分离出的两个位错中,其中一个停留于原位,而另一个进入亚晶内部进行攀移和滑移。这些进入亚晶的位错在两两相遇后湮没。原来停留于原位的8个位错在攀移一段较短的时间后也进入亚晶内部,之后它们两两相遇后湮没,最后体系形成单晶。

(3)当原子在晶界处的错位增加至1/2晶格常数时,整个湮没过程出现多个细节。样品的两条晶界上,左边晶界上存在4个位错,右边的晶界出现了5个位错,位错在湮没过程中直接进入亚晶内部并相互发生反应,直至位错完全湮没,体系形成单晶,而能量在整个过程中波动下降,出现4个明显的峰谷。

参考文献:

[1] 卢柯. 纳米晶体材料的研究进展[J]. 中国科学基金, 广西科学 2014年6月 第21卷第3期

- 1994,8(4):245-251.
- Lu K. Progress in investigation on nanocrystalline materials[J]. Bulletin of National Science Foundation of China,1994,8(4):245-251.
- [2] 余永宁. 材料科学基础[M]. 北京:高等教育出版社,2006.
- Yu Y N. Fundamentals of materials science[M]. Beijing:Higher Education Press,2006.
- [3] Varma S K,Willits B L. Subgrain growth in aluminum during static annealing[J]. Metallurgical Transactions A,1984,15:1502-1503.
- [4] 林永新. 钛合金中亚晶的电子显微镜观察[J]. 稀有金属材料与工程,1992,21(1):30-32.
- Lin Y X. Microscopic examination of the subgrain in the Ti alloy[J]. Rare Met Mater Eng,1992,21(1):30-32.
- [5] Hayakawa M,Yamaguchi K,Kimura M. Visualization of subgrain structure for a ferritic 12Cr-2W steel using backscattered scanning electron microscopy[J]. Materials letters,2004,58:2565-2568.
- [6] Zhou L,Wei X Q,Zhou N G. Nano size effect in grain boundary migration of copper [J]. Acta Metallurgica Sinica;English letters,2004,17(2):11-15.
- [7] Bobylev S V,Gutkin M Y,Ovid'ko I A. Transformations of grain boundaries in deformed nanocrystalline materials[J]. Acta Materialia,2004,52:3793-3805.
- [8] Bobylev S V,Gutkin M Y,Ovid'ko I A. Decay of low-angle tile boundaries in deformed nanocrystalline materials[J]. Journal of Physics D:Applied Physics,2004,37:269-272.
- [9] Caturla M J,Nieh T G,Stolken J S. Differences in deformation processes in nanocrystalline nickel with low and high-angle boundaries from atomistic simulations [J]. Applied Physics Letters,2004,84:598-600.
- [10] Stefanovic P,Haataja M,Proatas N. Phase field crystal study of deformation and plasticity in nanocrystalline materials[J]. Physical Review E,2009,80:046107.
- [11] 于艳梅,杨根仓,赵达文,等. 过冷熔体中枝晶生长的相场法数值模拟[J]. 物理学报,2001,50(12):2423-2427.
- Yu Y M,Yang G C,Zhao D W,et al. Numerical simulation of dendritic growth in undercooled melt using phase-field approach[J]. Acta Phys Sin,2001,50(12):2423-2427.
- [12] Elder K R,Katakowski M,Haataja M,et al. Modeling elasticity in crystal growth[J]. Physical Review Letters,2002,88(24):245701.
- [13] Elder K R,Grant M. Modeling elastic and plastic deformations in nonequilibrium processing using phase field crystals[J]. Physical Review E,2004,70:051605.
- [14] Tomoyuki H,Tomohiro T,Yoshihiro T. Development of numerical scheme for phase field crystal deformation simulation[J]. Computational Materials Science,2009,44:1192-1197.
- [15] 任秀,王锦程,杨玉娟,等. 纯物质晶界结构及运动的晶体相场法模拟[J]. 物理学报,2010,59(5):3595-3600.
- Ren X,Wang J C,Yang Y J,et al. Simulation of the structure and motion of grain boundary in pure substances by phase field crystal model[J]. Acta Phys Sin,2010,59(5):3595-3600.
- [16] 杨涛,陈铮,董卫平. 应力诱发双位错组亚晶界湮没的晶体相场模拟[J]. 金属学报,2011,47(10):1301-1306.
- Yang T,Chen Z,Dong W P. Phase field crystal simulation of stress-induced annihilation of sub-grain boundary with double-array dislocation[J]. Acta Metall Sin,2011,47(10):1301-1306.
- [17] 高英俊,王江帆,罗志荣,等. 晶体相场方法模拟纳米孪晶结构[J]. 计算物理,2013,30(4):577-581.
- Gao Y J,Wang J F,Luo Z R,et al. Nano-twin structure simulation with phase field crystal method[J]. Chinese Journal of Computational Physics,2013,30(4):577-581.
- [18] 卢成健,叶吉丽,全四龙,等. 位错运动和湮没过程的晶体相场模拟[J]. 广西物理,2012,33(4):6-9.
- Lu C J,Ye J L,Quan S L,et al. Phase field crystal simulation of dislocation movement and annihilation process[J]. Guangxi Physics,2012,33(4):6-9.
- [19] 罗志荣,黄世叶,茹谢辛,等. 晶体相场法模拟大角度晶界的变形过程[J]. 广西科学,2013,20(4):311-315.
- Luo Z R,Huang S Y,Ru X X,et al. Phase field crystal modeling for deformation process of high-angle grain boundaries[J]. Guangxi Sciences,2013,20(4):311-315.
- [20] 卢成健,蒋丽婷,王玉玲,等. 晶体相场法模拟小角度的位错结构及其演化[J]. 广西科学,2013,20(4):316-320.
- Lu C J,Jiang L T,Wang Y L,et al. Simulating structure of dislocation and its evolution in low angle grain boundary by phase field crystal method[J]. Guangxi Sciences,2013,20(4):316-320.

(责任编辑:陈小玲)