

高温应变作用下小角度晶界湮没过程的晶体相场模拟*

Phase Field Crystal Simulation of Annihilation Process of Small-grain Boundary under Stress at High Temperature

周文权¹,黄世叶¹,王震¹,罗志荣^{1,2},黄创高^{1,2},高英俊^{1,2**}

ZHOU Wen-quan¹,HUANG Shi-ye¹,WANG Zhen¹,LUO Zhi-rong^{1,2},HUANG Chuang-gao^{1,2},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】采用晶体相场模型模拟应变作用下晶界的变形过程。【方法】分别模拟了对称倾侧双晶体系在远离熔点温度和接近熔点温度时,在外加应力作用下小角度晶界的湮没过程。【结果】研究表明,小角度晶界同一侧晶界处相邻位错组的柏氏矢量夹角为 60° ,并且当体系接近熔点温度时,晶界处位错组周围出现预熔区域。【结论】晶界处的位错组在应力作用下进行滑移运动,两种情况中晶界位错的湮没规律基本相同,但由于预熔情况的出现,使得位错运动的阻力降低,位错运动的速度较快,湮没时体系能量减小得更多。

关键词:晶体相场模型 晶界预熔 应变 湮没

中图分类号:TG111.2 **文献标识码:**A **文章编号:**1005-9164(2014)03-0247-05

Abstract:【Objective】Grain boundary(GB) deformation process under stress was modeled with the phase-field crystal approach.【Methods】We simulate the structure of symmetric tilt GB and its annihilation process under stress when the system temperature far from the melting point and close to the melting point, respectively.【Results】The Burgers vector of the two adjoining double-array dislocations along the small-angle GB has an angle about 60° ,and a local premelting occurs around the dislocations as the premelting point is approached from below.【Conclusion】Dislocations of the GB begin to glide under stress,and the process of annihilation is similar in the two kinds of conditions. As premelting occurs,it diminishes the resistance and leads to a faster movement of the dislocations,and it also causes more energy reduction of the system during the process of annihilation.

Key words: phase field crystal model, grain boundary premelting, strain,annihilation

收稿日期:2013-10-10

修回日期:2013-12-08

作者简介:周文权(1988-),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2012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.

【研究意义】通常晶体物质由许多晶粒组成,晶界(grain boundary,GB)就是取向不同的晶粒之间的交界面^[1]。晶界上由于原子排列不规则而造成结构比较疏松,因而使晶界具有不同于晶粒内部的特性。晶界结构随温度的改变所发生的变化尤为引起研究者的关注,特别是当晶界在低于材料块体熔点温度

时,会出现晶界预熔现象^[2]。预熔的出现对多晶材料的强度和断裂等力学行为,以及热学现象都有重要的影响^[3]。利用晶界的这些特性,通过控制晶界组成、结构和相转变等性质来改造金属材料的性能是材料科学工作者的研究重点。由于晶界通常只有几个原子层厚,在现有的实验条件下较难观察,因此采用计算机模拟可以弥补实验的不足。【前人研究进展】目前已有学者采用分子动力学方法^[4]或 Monte-Carlo 方法^[5]研究晶界在材料块体熔点附近的演化行为,模拟计算结果均表明晶界在低于材料块体熔点时会出现晶界预熔现象。近年来,Elder 等^[6,7]基于密度泛函理论首次提出了晶体相场模型(phase field crystal model),该模型能够在原子尺度和扩散时间尺度上模拟材料的微观结构转变。目前应用晶体相场方法研究晶界及位错预熔区的宽度以及晶界能,取得了一些有意义的结果^[8-11]。【本研究切入点】对于体系在熔点附近受外加应力作用时晶界的演化行为目前未见报道。【拟解决的关键问题】针对高温条件下的晶界预熔,本文采用晶体相场模型研究在外加应力作用下预熔小角度晶界的湮没以及位错的运动。

1 模拟方法

1.1 晶体相场模型

晶体相场模型自提出以来受到广泛关注,已被用于材料微观组织演变^[12-14]、裂纹扩展^[15]、晶界迁移^[16,17]等现象的研究。该模型采用周期性的局部原子密度 φ 作为序参量。在晶体相中,序参量 φ 的局部最大值对应原子位置, φ 的周期性 with 晶体点阵周期性一致。在液相中,原子位置随时间随机变化, φ 为常数。在液/固系统中无量纲纯物质的自由能 F 可以构造为^[6]:

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

式中, φ 为原子密度, r 表征体系的过冷度,绝对值小的 r 对应较高的温度。 ∇^2 为 Laplace 算子。

体系无量纲 Cahn-Hilliard 动力学方程为:

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

对动力学方程(2)进行单模近似可以得到平衡时二维三角相 φ_T 的解

$$\varphi_T = A_T [\cos(qx)\cos(qy/\sqrt{3}) - \cos(2qy/\sqrt{3})/2 + \varphi_0], \quad (3)$$

式中, φ_0 为平均密度, $q = \sqrt{3}/2$, $A_T = \frac{4}{15}(3\varphi_0 - \sqrt{-36\varphi_0^2 - 15r})$ 。

由方程(1)、(3)可以求解得到三角相的平衡自由能密度,然后根据 Gibbs 自由能公切线法来确定相图^[7],结果如图 1 所示。

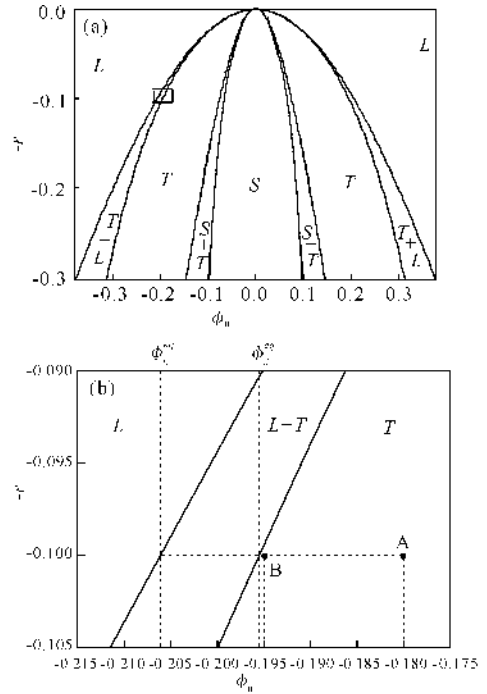


图 1 单模近似得到的二维相 (L, T 和 S 分别代表液相、三角相、条状相)

Fig. 1 Two-dimensional phase diagram obtained by using one-mode approximation (L, T and S represent liquid phase, triangular phase and strip phase, respectively)

(a) 二维相, (b) 图(a) 方形区域的放大

(a) Two-dimensional phase diagram, (b) Magnified image of box in Fig. 1(a)

1.2 数值计算与参数设置

动力学方程(2)等式左边的部分是与时间有关的项,可以采用显式欧拉法求解,而对等式右边含有 Laplace 算子的项可以采用九点格子离散化处理,也可以通过半隐式 Fourier 谱法求解^[16]。本文采用半隐式 Fourier 谱法求解。方程(2)的离散形式为

$$\hat{\varphi}^{t+\Delta t} = \frac{\hat{\varphi}_t - k^2 \Delta t \hat{\varphi}_t^3}{1 + k^2 \Delta t \{r + (1 - k^2)^2\}}, \quad (4)$$

式中, k 为 Fourier 空间上的波矢, $\hat{\varphi}$ 为原子密度 φ 的 Fourier 变换形式。

在本文的模拟中,体系空间步长设为 $\Delta x = \Delta y = \pi/4$, 时间步长设为 $\Delta t = 0.5$, 边界条件为周期性边界条件。初始条件按如下方法给出:对于周期性的计算区域 $L_x \times L_y = 512\Delta x \times 512\Delta y$, 通过式(3)给出, 对于 $0 < x < L_x/4$ 和 $3L_x/4 < x < L_x$ 范围内, 设置三角相 φ_T 的取向为 θ (θ 为三角相原子面与 x 轴的夹角), 在 $L_x/4 < x < 3L_x/4$ 范围内取向设置为 $-\theta$, 其中 $0 < y < L_y$ 。同时,为了形成较稳定的晶界,在两晶粒之间取为液相区 φ_0 , 液相区宽度 $d = 8\Delta x$ 。

体系温度的设定参考图 1, 图 1 中 φ_L^e , φ_S^e (图 1b 中虚线与相图边界的交点) 分别代表平衡液相密度和平衡固相密度, 根据图 1 可以得出当参数 r 保持不变时, 减小 φ_0 相当于靠近液相区, 可以看成升高温度^[8,9]。

1.3 样品制备

样品制备过程分为两个阶段。第一阶段制备低温下的双晶样品, 对于 A、B 两样品, 分别选取表 1 中第一阶段所对应的参数值, 按本文 1.2 中所述的方法设置初始条件, 该阶段体系弛豫时间步长为 5000 步, 此时双晶间的初始液相区迅速凝固形成稳定的晶界。第二阶段将低温下所制备的 A、B 样品分别升高到一定温度, 选取表 1 中第二阶段所对应的参数值, 该参数值分别对应图 1b 中的 A 点和 B 点, 此时 A 样品处于远离熔点温度, 双晶晶界为固固界面, B 样品处于接近熔点温度, 双晶晶界将会出现预熔现象^[8,9]。该阶段体系弛豫 10^5 时间步长, 直至达到平衡状态。制备好的双晶样品如图 2(a 和 b) 所示

表 1 样品制备参数

Table 1 Parameters for sample preparation

样品 Sample	第一阶段 First stage		第二阶段 Second stage	
	r	φ_0	r	φ_0
	A	-0.3	-0.18	-0.1
B	-0.3	-0.195	-0.1	-0.195

注: r —与温度有关的变量, φ_0 —平均原子密度。

Note: r —variable related to temperature, φ_0 —average atomic density.

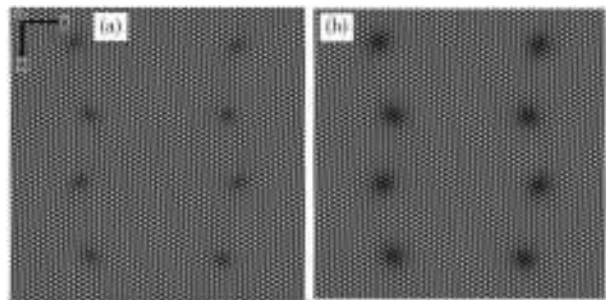


图 2 小角度晶界在取向差为 4° 时不同温度下的晶界形貌

Fig. 2 Snapshots of small-angle grain boundary with misorientation angle 4° at different temperatures

(a) A 样品, (b) B 样品。 (a) Sample A, (b) Sample B

图 2a, 2b 分别对应样品 A 和样品 B 所模拟的对称倾侧小角晶界形貌图。比较图 2a 和图 2b 可以看出, 两种温度下的小角晶界形貌图基本相同, 所不同的是图 2b 中出现由单独液相区域所环绕的位错组, 这说明体系在接近熔点温度时晶界处的位错组首先诱发晶界出现预熔化现象。

1.4 应变的施加

变形模拟过程作用于所制备好的样品, 采用等体

积条件假设^[16,18], 设 $\dot{\epsilon}$ 为无量纲应变速率 (本文取 $\dot{\epsilon} = 6 \times 10^{-6} / \Delta t$), 应变 $\epsilon = \dot{\epsilon} n \Delta t$, n 为时间步长数。根据等体积条件假设

$$S = \Delta x \Delta y = \Delta x' \Delta y', \quad (5)$$

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。经过 n 个时间步长后, 空间步长为^[15]

$$\Delta x' = \Delta x / (1 + \epsilon) = \Delta x / (1 + n\dot{\epsilon}\Delta t), \quad (6)$$

$$\Delta y' = \Delta y (1 + \epsilon) = \Delta y (1 + n\dot{\epsilon}\Delta t). \quad (7)$$

2 模拟结果与分析

2.1 A 样品在应变作用下的晶界湮没过程

图 3 代表 A 样品在应力作用下的晶界湮没过程, 图中箭头所示为位错运动的方向。图 4 所示曲线对应图 3 中体系能量变化情况。

由图 3a 可以看出, 体系在没有受到应力作用时, 同一侧晶界处相邻位错组 Burgers 矢量夹角为 60°, 相间位的位错组 Burgers 矢量相同。随着应力的施

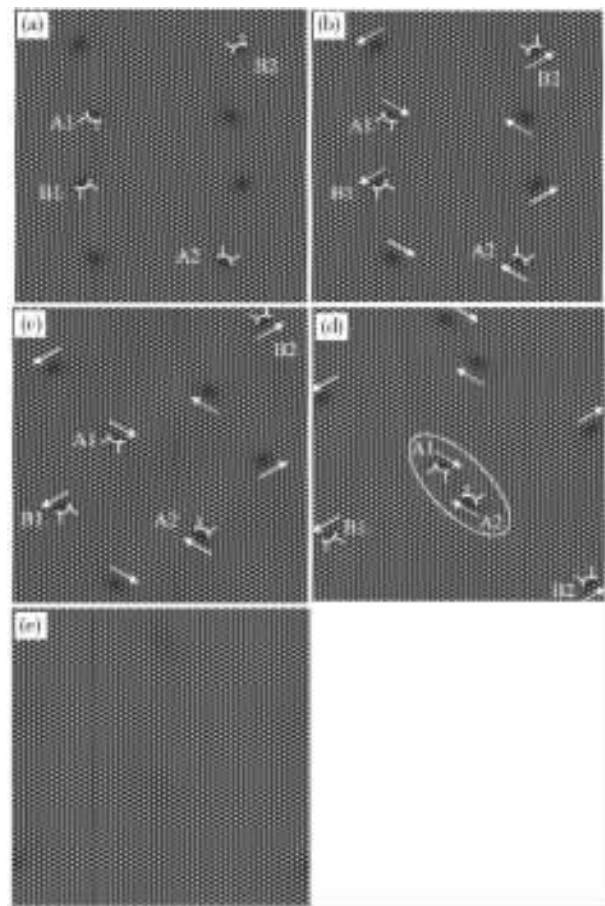


图 3 A 样品的晶界湮没过程模拟

Fig. 3 The process of GB annihilation simulated by using sample A

(a) $\epsilon = 0$, (b) $\epsilon = 0.003$, (c) $\epsilon = 0.0324$, (d) $\epsilon = 0.0486$, (e) $\epsilon = 0.0545$

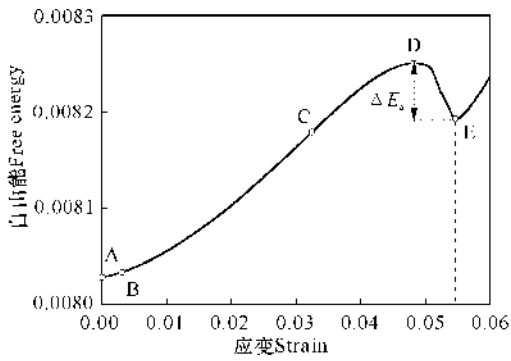


图4 A样品的应变自由能曲线

Fig. 4 Strain-energy curve of sample A

加,左右晶界处的双位错组在应力作用下发生运动(图3(b~e))。由于相邻位错组的柏氏矢量方向的不同,并且晶界的迁移方向与位错组柏氏矢量方向共线,故在应力的作用下,晶界在迁移过程中只会发生位错组的滑移过程,并且运动方向相反的位错组在滑移的过程中不断靠近,如图3b中的A1、A2与B1、B2所示。随着应变的继续增加,4对位错组相遇抵消(图3d椭圆所示),晶界湮没过程完成,如图3e和图4曲线的E点所示。由图4可见,位错组在滑移过程中,体系的能量不断增加,表明体系的应变能在增加。当 $\epsilon = 0.0481$ 时,体系能量开始下降,表明畸变能下降,这时位错组两两靠近,相互吸引,晶格畸变能不断减小,当位错完全湮没时,体系能量降到极小值,晶粒内部畸变消失,这一过程所经历的能量变化为 $\Delta E_a = 5.72 \times 10^{-5}$ 。

2.2 B样品在应变作用下的晶界湮没过程

图5代表B样品在应力作用下的晶界湮没过程。图6所示曲线对应图5中体系能量变化情况。比较图3a和图5a可以看出,体系在没有受到应力作用时,两种温度下晶界处位错组的结构基本相同,并且当体系受到应力作用时,图5(b~e)中晶界迁移过程中位错组滑移的方式以及湮没过程与图3(b~e)也基本类似。所不同的是图5中体系处于预熔状态,左右晶界处位错组周围的单独液相区域伴随位错组运动,直至位错组发生湮没,单独液相区域也随即消失,系统最终演化为单晶。比较图4与图6(虚线所对应的位置)可以看出,当体系远离熔点温度时,整个湮没过程所需的应变 $\epsilon = 0.0545$,而体系处于预熔时所需的应变 $\epsilon = 0.0509$ 。这说明晶界处位错组周围的单独液相区域会减小位错组的滑移阻力,这是因为当体系接近熔点温度时,单独液相区域的存在使得原子的振动较剧烈,原子的振动会松弛位错组周围的原子晶格,减小了位错组在整个滑移过程中所需克服的晶格阻力。比较图4与图6还可以看出,A样品中体

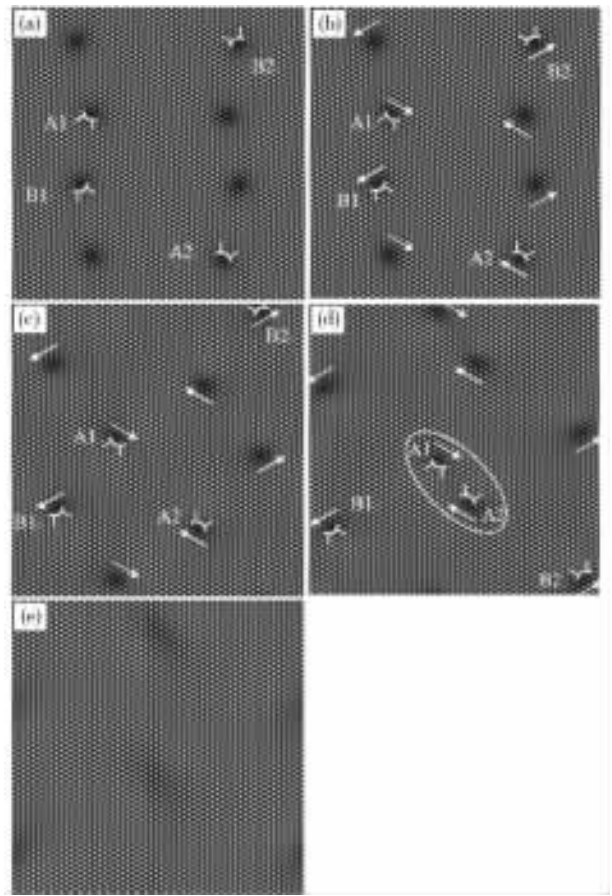


图5 B样品的晶界湮没过程模拟

Fig. 5 The process of GB annihilation simulated by using sample B

(a) $\epsilon = 0$, (b) $\epsilon = 0.003$, (c) $\epsilon = 0.0324$, (d) $\epsilon = 0.0444$, (e) $\epsilon = 0.0509$

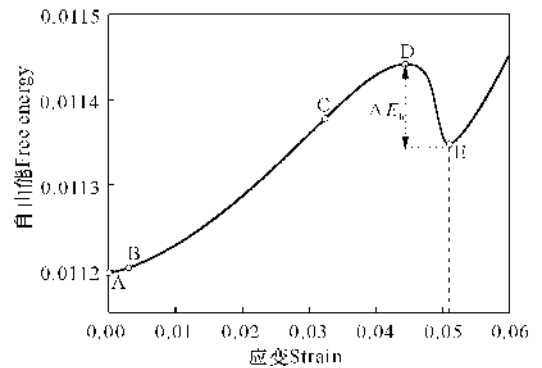


图6 B样品的应变自由能曲线

Fig. 6 Strain-energy curve of sample B

系从能量最高点下降到极小值E点时经历的能量变化为 $\Delta E_a = 5.72 \times 10^{-5}$,而B样品在这一过程中经历的能量变化为 $\Delta E_b = 9.38 \times 10^{-5}$,这说明具有预熔化的体系,位错组在相互吸引到湮没的过程中能量降低得更多,这是因为预熔化的体系具有较大的晶格畸变能,因此,当位错组湮没时,预熔区域随之消失的过程中释放出较多的能量。

3 结论

本文采用晶体相场模型,分别模拟了体系在远离熔点温度和接近熔点温度时,在外加应力作用下小角度晶界的湮没过程。结果表明:两种情况中晶界位错的湮没规律基本相同,但由于预熔情况位错组周围存在单独液相区域,使得位错运动的阻力降低,位错运动的速度较快,湮没时体系能量减小得更多,位错周围的预熔区域,随着位错的湮没而消失。

参考文献:

[1] 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.

[2] Alsayed A M, Islam M F, Zhang J, et al. Premelting at defects within bulk colloidal crystals[J]. Science, 2005, 309:1207-1210.

[3] 张林,王绍青,叶恒强,等. 大角度 Cu 晶界在升温、急冷条件下晶界结构的分子动力学研究[J]. 物理学报, 2004, 53(8):2497-2502.
Zhang L, Wang S Q, Y H Q, et al. Molecular dynamics study of the structure changes in a high-angle Cu grain boundary by heating and quenching[J]. Acta Phys Sin, 2004, 53(8):2497-2502.

[4] Keglinski P, Phillpot S R, Wolf D, et al. Amorphous structure of grain boundaries and grain junctions in nanocrystalline silicon by molecular-dynamics simulation[J]. Acta Materialia, 1997, 45(3):987-998.

[5] Besold G, Mouritsen O G. Grain-boundary melting: a monte carlo study[J]. Physical Review B, 1994, 50(10): 6573-6576.

[6] Elder K R, Katakowski M, Haataja M, et al. Modeling elasticity in crystal growth[J]. Phys Rev Lett, 2002, 88: 245701.

[7] Elder K R, Grant M. Modeling elastic and plastic deformations in nonequilibrium processing using phase field crystals[J]. Physical Review E, 2004, 70(5):051605.

[8] 卢艳丽,牧虹,侯华欣,等. 晶体相场模拟晶界预熔及熔化[J]. 金属学报, 2013, 49(3):358-364.
Lu Y L, Mu H, Hou H X, et al. Phase field crystal simulation for the premelting and melting of grain boundary [J]. Acta Metall Sin, 2013, 49(3):358-364.

[9] Mellenthin J, Karma A, Plapp M. Phase-field crystal study of grain-boundary premelting[J]. Physical Review B, 2008, 78(18):184110.

[10] Berry J, Elder K R, Grant M. Melting at dislocations and grain boundaries: a phase field crystal study[J].

Physical Review B, 2008, 77(22):224114.

[11] Adland A, Karma A, Spatschek R, et al. Phase-field-crystal study of grain boundary premelting and shearing in bcc iron[J]. Physical Review B, 2013, 87(2): 024110.

[12] 高英俊,罗志荣,黄创高,等. 晶体相场方法研究二维六角相向正方相结构转变[J]. 物理学报, 2013, 62(5): 050507.
Gao Y J, Luo Z R, Huang C G, et al. Phase-field-crystal modeling for two-dimensional transformation from hexagonal to square structure[J]. Acta Phys Sin, 2013, 62(5):050507.

[13] 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]. Acta Phys Sin, 2013, 30(4):577-581.

[14] 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.

[15] 高英俊,罗志荣,黄礼琳,等. 韧性材料的微裂纹扩展和连通的晶体相场模拟[J]. 中国有色金属学报, 2013, 23(7):1892-1899.
Gao Y J, Luo Z R, Huang L L, et al. Phase-field-crystal modeling for microcrack propagation and connecting of ductile materials[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2013, 20(4):316-320.

[16] 卢成健,蒋丽婷,王玉玲,等. 晶体相场法模拟小角度晶界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.

[17] 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.

[18] 高英俊,罗志荣,黄礼琳,等. 变形合金的亚晶组织演化的相场模型[J]. 金属学报, 2012, 48(10):1215-1222.
Gao Y J, Luo Z R, Huang L L, et al. Phase field model for microstructure evolution of subgrain in deformation alloy[J]. Acta Metall Sin, 2012, 48(10):1215-1222.

(责任编辑:陈小玲)