

三叉晶界迁移的晶体相场研究*

Phase Field Crystal Study of Triple Junction Migration

罗志荣¹, 卢成健¹, 黄礼琳¹, 高英俊^{2**}

LUO Zhirong¹, LU Chengjian¹, HUANG Lilin¹, GAO Yingjun²

(1. 玉林师范学院, 广西高校复杂系统优化与大数据处理重点实验室, 广西玉林 537000; 2. 广西大学物理科学与工程技术学院, 广西南宁 530004)

(1. Guangxi Colleges and Universities Key Lab of Complex System Optimization and Big Data Processing, Yulin Normal University, Yulin, Guangxi, 537000, China; 2. College of Physics Science and Engineering, Guangxi University, Nanning, Guangxi, 530004, China)

摘要:【目的】研究三叉晶界对晶界迁移的影响。【方法】采用晶体相场(Phase Field Crystal, PFC)方法模拟包含一个环形晶粒的三晶系统中三叉晶界的迁移过程。【结果】环形晶粒在演化过程中不断收缩, 三叉晶界迁移具有自相似性; 三叉晶界迁移速率与晶界曲率成正比。【结论】三叉晶界对晶界迁移有拖曳作用, 且晶界曲率越小, 拖曳作用越明显。

关键词: 三叉晶 晶界迁移 晶体相场方法

中图分类号: TG111 **文献标识码:** A **文章编号:** 1005-9164(2017)06-0529-05

Abstract: 【Objective】The effects of triple junction on grain boundary migration was studied. 【Methods】The phase field crystal (PFC) method was used to simulate the migration process of triple junction in a tricrystal system containing a loop grain crystal. 【Results】The results showed that the loop grain was constantly shrinking during evolution, and the triple junction had a self-similar property. The migration rate of triple junction was proportional to the grain boundary curvature. 【Conclusion】The triple junction had a drag effect on the grain boundary, and the smaller the grain boundary curvature, the more remarkable the drag effect.

Key words: triple junction, grain boundary migration, phase field crystal method

0 引言

【研究意义】三叉晶界是三条晶界相遇时形成的

线缺陷, 具有不同于晶界的独特热力学和动力学性质^[1]。三叉晶界作为新相形核、空洞和腐蚀的首选位置以及溶质原子扩散的有利通道^[2], 在晶粒长大及塑性变形过程中起重要作用。因此研究三叉晶界的迁移过程及其影响因素具有重要意义。【前人研究进展】目前, 已有学者对三叉晶界迁移进行实验研究。1998年, Czubayko等^[3]利用电子背散射衍射(EBSD)原位观察金属锌(Zn)的三叉晶界运动过程, 并观察到三叉晶界迁移动力学向晶界迁移动力学的转变。2001年, Protasova等^[4]研究发现金属铝(Al)中三叉晶界的缓慢移动能够控制晶界系统的运动。2005年, Mattissen等^[5]利用扫描电镜(SEM)原位研究Al中三叉晶界对晶粒长大动力学的影响, 发现三

收稿日期: 2017-07-19

作者简介: 罗志荣(1981-), 男, 博士, 副教授, 主要从事材料微结构演化及物理性能研究。

* 国家自然科学基金项目(51561031), 广西自然科学基金项目(2015GXNSFBA139240), 广西高校科研项目(KY2015YB243)和广西高校复杂系统优化与大数据处理重点实验室开放基金项目(2016CSOBDP0101)资助。

** 通信作者: 高英俊(1962-), 男, 教授, 博士生导师, 主要从事材料纳微结构的设计与模拟实验研究, E-mail: gaoyj@gxu.edu.cn。

又晶界对晶界运动和晶粒长大动力学均有显著影响。2017年,尹文红等^[6]采用EBSD技术研究不同变形量高纯Al退火后三叉晶界及晶界的迁移行为。结果表明,三叉晶界及其晶界的迁移量随着变形量的增加而增大,且三叉晶界的迁移距离比晶界的小。但上述研究尚未达到原子尺度。由于晶界通常只有几个原子层厚,难以通过实验直接原位观测,因此计算机模拟已经成为研究该问题的重要方法。在三叉晶界的原子尺度模拟方面,分子动力学(Molecular Dynamics, MD)是常用方法之一。1999年,Upmanyu等^[7]利用MD研究了单个三叉晶界的迁移过程,结果表明动态三叉晶界角度与晶粒尺寸和晶界取向差有关。2009年,Frolov等^[1]采用MD模拟了三叉晶界的自扩散过程,研究表明三叉晶界扩散比晶界扩散更快。2014年,Trautt和Mishin^[8]采用MD研究了三晶系统中晶界运动和晶粒旋转现象,结果表明三叉晶界不能阻止晶粒旋转,但可以显著减缓旋转过程。

【本研究切入点】尽管MD在材料的原子尺度模拟方面取得了很多进展^[9],但该方法主要适用于原子振动的的时间尺度($10^{-14} \sim 10^{-12}$ s),难以扩展到原子扩散的时间尺度(10^{-6} s)。2002年,Elder等^[10]基于经典密度泛函理论(CDFT)提出的晶体相场(Phase Field Crystal, PFC)模型克服了MD的上述缺点,不仅能够原子空间尺度和扩散时间尺度上研究材料微观结构演化,还能够自洽地耦合弹性能和各向异性等特征^[11]。因此,PFC模型自提出以来得到了广泛应用和发展,已被用于研究晶体形核^[12]、准晶生长^[13]、动态回复^[14]、裂纹扩展^[15-17]和金属互连电迁移^[18-19]等现象。目前,虽然已有学者利用PFC方法研究了将一个圆形晶粒嵌入双晶系统中圆形晶粒的收缩过程,以及三叉晶界处位错的反应及应变^[20-21]。但利用PFC方法研究恒定曲率条件下三叉晶界的迁移过程,还未见报道。**【拟解决的关键问题】**本研究采用PFC方法研究包含一个环形晶粒的三晶系统中三叉晶界的迁移过程,探究晶界曲率对三叉晶界迁移的影响。

1 模型与方法

1.1 PFC模型

PFC模型采用具有周期结构特征的局域原子密度作为序参量。在固液系统中,无量纲的自由能函数 F 可以构造为^[11]

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

式中, γ 为与温度相关的唯象参数; ∇^2 为Laplace算

符; ψ 为原子密度,其通用形式可表示为^[11]

$$\psi(r, t) = \sum_{n, m} a_{n, m} e^{i\vec{G}_{n, m} \cdot \vec{r}} + \psi_0, \quad (2)$$

式中,右边第1项反映晶格原子的周期结构特征,第2项 ψ_0 为平均原子密度,反映液相的原子均匀无序特征; \vec{r} 为空间位置矢量; t 为时间; $a_{n, m}$ 为Fourier系数; $\vec{G}_{n, m} = n\vec{b}_1 + m\vec{b}_2$,其中 \vec{b}_1 和 \vec{b}_2 为倒格子基矢。对于二维三角格子(三角相), \vec{b}_1 和 \vec{b}_2 可以表示为

$$\vec{b}_1 = \frac{2\pi}{r_0\sqrt{3}/2} (\sqrt{3}/2\hat{x} + \hat{y}/2), \vec{b}_2 = \frac{2\pi}{r_0\sqrt{3}/2} \hat{y}, \quad (3)$$

式中, r_0 为最近邻原子间距, \hat{x} 和 \hat{y} 分别表示 x 方向和 y 方向的单位矢量。

二维情况下,三角相的原子密度 ψ 的表达式为^[11]

$$\psi = A [\cos(q_t x) \cos(q_t y / \sqrt{3}) - \cos(2q_t y / \sqrt{3}) / 2] + \psi_0, \quad (4)$$

式中, A 为反映原子密度周期结构的振幅; q_t 为波数,满足 $q_t = 2\pi / r_0$ 。将(4)式代入(1)式,并对 A 和 q_t 分别求导,求出自由能密度函数的极值,便可求得 A 和 q_t 的值^[11]

$$A = 4/15 (3\psi_0 + \sqrt{-15\gamma - 36\psi_0^2}), q_t = \sqrt{3}/2, \quad (5)$$

1.2 动力学方程

原子密度 ψ 是一个保守场变量,其随时间演化用Cahn-Hilliard动力学方程描述^[11]

$$\frac{\partial \psi}{\partial t} = \nabla^2 \frac{\delta F}{\delta \psi} + \zeta = \nabla^2 \{ \psi^3 + [\gamma + (1 + \nabla^2)^2] \psi \} + \zeta, \quad (6)$$

式中, ζ 为满足两点相关性的Gauss噪声。在本研究中不考虑噪声的作用。

为提高计算效率,可采用半隐式Fourier谱方法^[22]求解动力学方程,可得

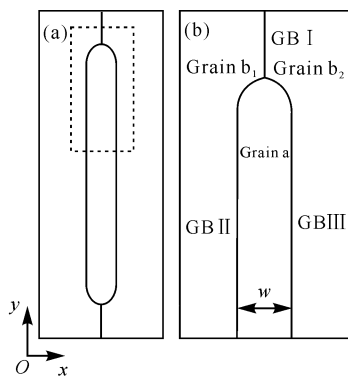
$$\hat{\psi}_{n+1} = \frac{\hat{\psi}_n - k^2 \Delta t \hat{\psi}_n^3}{1 + k^2 \Delta t [\gamma + (1 - k^2)^2]}, \quad (7)$$

式中, $\hat{\psi}_{n+1}$ 为Fourier空间中第 $n+1$ 步的原子密度, $\hat{\psi}_{n+1} = \int \psi_{n+1} e^{-i\vec{k} \cdot \vec{r}} dr$; \vec{k} 为Fourier空间的波矢,满足 $k^2 = |\vec{k}|^2$ 。

1.3 参数设置

图1中将一个环形晶粒(晶粒a)嵌入到双晶(晶粒 b_1 和 b_2)系统中,组成一个三晶系统。晶粒a、 b_1 和 b_2 三者相交形成三叉点,其中晶粒a的宽度为 w ,其顶部的晶界曲率为 κ ($\kappa = 2/w$)。计算时将连续空间

离散为四方网格,计算区域网格为 $L_x \Delta x \times L_y \Delta y$,取空间步长 $\Delta x = \Delta y = \pi/4$,时间步长 $\Delta t = 0.5$,时间步用 ts 表示。具体参数设置:采用三角相表征晶体相,选取 $(\varphi_0, \gamma) = (0.21, -0.12)$;尺寸 $L_x \times L_y$ 为 800×1600 ,晶粒 a 、 b_1 和 b_2 的取向角度分别为 0° 、 22.5° 和 -22.5° 。晶粒 a 与晶粒 b_1 、 b_2 之间的晶界(GB II 和 GB III)为非对称倾侧晶界,取向差分别为 $\pm 22.5^\circ$;晶粒 b_1 和 b_2 之间的晶界(GB I)为对称倾侧晶界,取向差为 45° 。

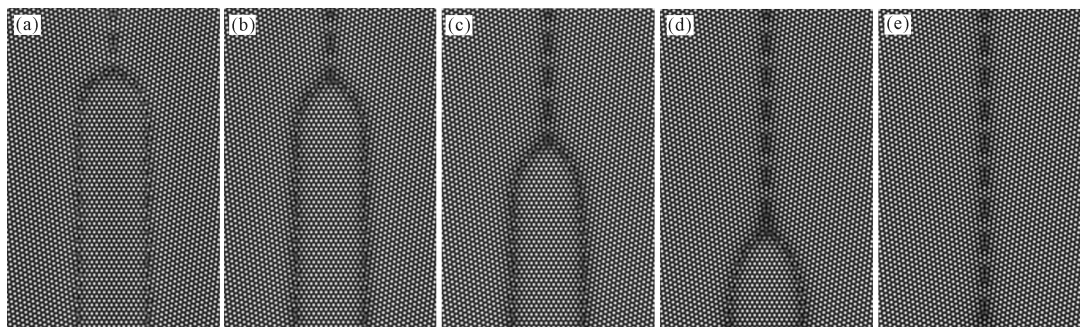


(b)为(a)中方框的放大图

(b) is the magnified image of the box in (a)

图1 模拟所用的几何构型示意图

Fig. 1 Schematic diagram of the geometry employed in the simulation



(a) $t = 250 ts$; (b) $t = 2000 ts$; (c) $t = 12000 ts$; (d) $t = 26000 ts$; (e) $t = 43000 ts$

图2 三叉晶界的演化过程 ($w = 14r_0$)

Fig. 2 The evolution process of a triple junction at $w = 14r_0$

2.2 三叉晶界拖曳效应

为了研究三叉晶界对晶界运动的影响,将图1中晶粒 b_1 和 b_2 的取向角度取相同值(都为 22.5°),则系统变为双晶系统(无三叉晶界)。双晶和三晶系统的晶界运动分别为晶界迁移和三叉晶界迁移。在相同条件下,双晶和三晶系统中环形晶粒面积 A 与演化时间 t 的关系曲线 ($A-t$ 曲线)如图3所示。可见,两种情况下 $A-t$ 曲线均线性下降,其中三晶系统的下降速度明显小于双晶系统,可见前者的晶界迁移速率明显低于后者。这说明了三叉晶界对晶界迁移具有拖拽作用,与 Czubayko 等^[3] 和尹文红等^[6] 的实验结果吻合。

为了清晰地显示三叉晶界的迁移过程,重点对图1b所示区域进行观测,其尺寸为 400×600 ,约 3.23×10^3 个原子。从图1b可见,晶界 I (GB I) 是一条平直晶界,晶界 II (GB II) 和晶界 III (GB III) 都是由一段弧形晶界和平直晶界组成。

2 结果与分析

2.1 三叉晶界迁移过程

图2为环形晶粒宽度 $w = 14r_0$ 时三叉晶界的迁移过程。由图2可见,在演化初期环形晶粒顶部的晶界曲率发生了部分变化(图2a和b),之后晶界曲率保持稳定(图2b~d)。这是因为初态的三叉晶界为不稳定状态(相邻晶界夹角不为 120°),当相邻晶界夹角达到 120° 的稳态时,三叉晶界形状保持稳定。由于环形晶界曲率的驱动作用,环形晶粒顶部的弧形晶界不断向其曲率中心收缩(图2a~d),直至三叉晶界消失,变成一条平直晶界(图2e)。在整个演化过程中,晶界 II 和晶界 III 中平直晶界始终保持平直,说明三叉晶界迁移具有自相似性。从图2还可见,3个晶粒的取向角度在演化过程中均保持不变,表明晶粒均未发生旋转。

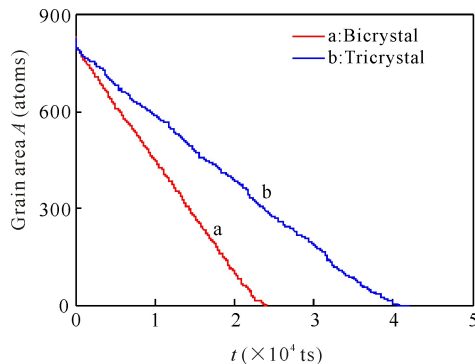


图3 双晶和三晶系统中环形晶粒的面积与时间的关系 ($w = 14r_0$)

Fig. 3 Curves between loop grain area A and time t in bicrystal and tricrystal system at $w = 14r_0$

为了研究环形晶粒宽度 w 对三叉晶界拖曳作用的影响, 环形晶粒宽度设为 $8r_0 \leq w \leq 26r_0$, 并计算 $A-t$ 曲线的斜率, 统计结果如图 4 所示。图 4 中纵坐标 $\sigma = k_{ij}/k_{gb}$, 其中 k_{ij} 和 k_{gb} 分别为三晶和双晶系统中 $A-t$ 曲线的斜率。从图 4 可见, w 取不同值时, 比值 σ 均小于 1, 且随着宽度 w 的增加, σ 值不断减小。说明环形晶粒尺寸越大(晶界曲率越小), 曲率驱动晶界迁移的速率越小, 三叉晶界的拖曳作用就越明显。

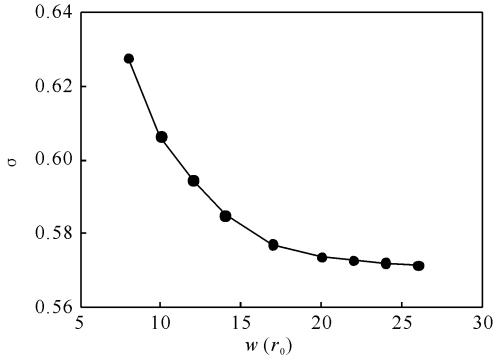


图 4 斜率比 $\sigma (= k_{ij}/k_{gb})$ 与环形晶粒宽度 w 的关系

Fig. 4 The curve between slope ratio $\sigma (= k_{ij}/k_{gb})$ and loop grain width w

2.3 晶界曲率的影响

为了研究三叉晶界曲率对晶界迁移的影响, 环形晶粒宽度设为 $8r_0 \leq w \leq 26r_0$ 。从图 5a 可见, 随着环形晶粒宽度的增加, 三叉晶界迁移速率不断减小。

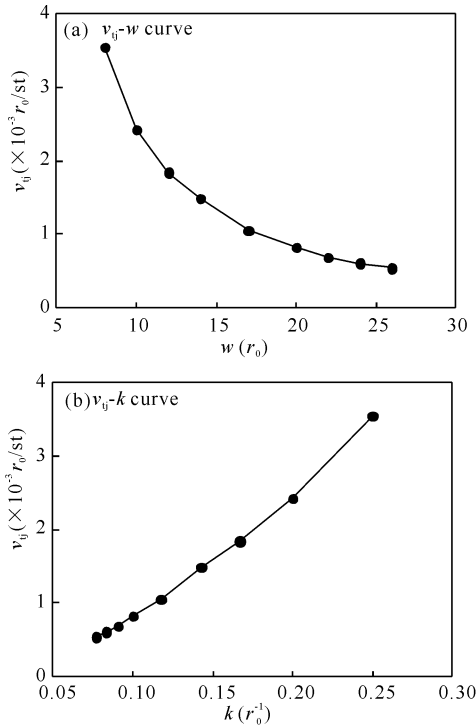


图 5 三叉晶界迁移速率 v_{ij} 与环形晶粒宽度 w 及其晶界曲率 k 的关系

Fig. 5 Curves between migration rate v_{ij} of triple junction and loop grain width w , and its grain boundary curvature k

这是由于环形晶粒宽度越大, 晶界迁移的驱动力就越小, 导致晶界迁移越慢。由图 5b 可见, 随着晶界曲率 k 的增加, 三叉晶界迁移速率 v_{ij} 近似呈线性增加, 表明三叉晶界迁移速率与晶界曲率成正比。该结果与经典晶界迁移理论^[23]吻合。

3 结论

本研究采用 PFC 方法研究了将一个环形晶粒嵌入到双晶系统中三叉晶界的迁移过程, 讨论了晶界曲率对三叉晶界迁移的影响。得到如下结论: 1) 在演化过程中, 三叉晶界迁移具有自相似性, 未发生晶粒旋转现象。2) 晶界曲率影响三叉晶界迁移速率, 并且两者成正比关系。3) 三叉晶界对晶界迁移有拖曳作用, 晶界曲率越小, 三叉晶界的拖曳作用越明显。

参考文献:

- [1] FROLOV T, MISHIN Y. Molecular dynamics modeling of self-diffusion along a triple junction[J]. Physical Review B, 2009, 79(17): 174110.
- [2] GOTTSTEIN G, SHVINDLERMAN L S, ZHAO B. Thermodynamics and kinetics of grain boundary triple junctions in metals: Recent developments [J]. Scripta Materialia, 2010, 62(12): 914-917.
- [3] CZUBAYKO U, SURSAEVA V G, GOTTSTEIN G, et al. Influence of triple junctions on grain boundary motion [J]. Acta Materialia, 1998, 46(16): 5863-5871.
- [4] PROTASOVA S G, GOTTSTEIN G, MOLODOV D A, et al. Triple junction motion in aluminum tricrystals [J]. Acta Materialia, 2001, 49(13): 2519-2525.
- [5] MATTISSEN D, MOLODOV D A, SHVINDLERMAN L S, et al. Drag effect of triple junctions on grain boundary and grain growth kinetics in aluminium [J]. Acta Materialia, 2005, 53(7): 2049-2057.
- [6] 尹文红, 王卫国, 方晓英, 等. 轧制变形量对高纯铝三叉晶界、晶界形变及退火行为的影响[J]. 上海大学学报: 自然科学版, 2017, 23(3): 414-421.
YIN W H, WANG W G, FANG X Y, et al. Effect of cold rolling reduction on deformation and annealing behavior of triple junctions and grain boundaries in high-purity aluminum [J]. Journal of Shanghai University: Natural Science, 2017, 23(3): 414-421.
- [7] UPMANYU M, SROLOVITZ D J, SHVINDLERMAN L S, et al. Triple junction mobility: A molecular dynamics study [J]. Interface Science, 1999, 7(3): 307-319.
- [8] TRAUTT Z T, MISHIN Y. Capillary-driven grain boundary motion and grain rotation in a tricrystal: A molecular dynamics study [J]. Acta Materialia, 2014, 65: 19-31.

- [9] RAPAPORT D C. The art of molecular dynamics simulation[M]. 2nd ed. Cambridge: Cambridge University Press, 2004.
- [10] ELDER K, KATAKOWSKI M, HAATAJA M, et al. Modeling elasticity in crystal growth[J]. Physical Review Letters, 2002, 88(24): 245701.
- [11] ELDER K R, GRANT M. Modeling elastic and plastic deformations in nonequilibrium processing using phase field crystals [J]. Physical Review E, 2004, 70 (5): 51605.
- [12] TANG S, WANG J C, SVENDSEN B, et al. Competitive bcc and fcc crystal nucleation from non-equilibrium liquids studied by phase-field crystal simulation[J]. Acta Materialia, 2017, 139: 196-204.
- [13] SCHMIEDEBERG M, ACHIM C V, HIELSCHER J, et al. Dislocation-free growth of quasicrystals from two seeds due to additional phasonic degrees of freedom [J]. Physical Review E, 2017, 96(1): 12602.
- [14] GAO Y J, HUANG L L, DENG Q Q, et al. Phase field crystal simulation of dislocation configuration evolution in dynamic recovery in two dimensions[J]. Acta Materialia, 2016, 117: 238-251.
- [15] GAO Y, DENG Q, HUANG L, et al. Atomistic modeling for mechanism of crack cleavage extension on nanoscale[J]. Computational Materials Science, 2017, 130: 64-75.
- [16] 毛鸿, 罗志荣, 黄世叶, 等. 材料裂纹扩展分叉机理的晶体相场法研究[J]. 广西科学, 2015, 22(5): 499-505.
MAO H, LUO Z R, HUANG S Y, et al. Phase-field-crystal modeling for crack propagation and branch of materials[J]. Guangxi Sciences, 2015, 22(5): 499-505.
- [17] 卢昱江, 孔令一, 邓芊芊, 等. 微裂纹起裂扩展机理的晶体相场模拟[J]. 广西科学院学报, 2017, 33(4): 240-245.
- LU Y J, KONG L Y, DENG Q Q, et al. Phase field crystal simulation of nucleation and propagation of micro-cracks [J]. Journal of Guangxi Academy of Sciences, 2017, 33(4): 240-245.
- [18] CHEN C, CHEN Z, ZHANG J, et al. Phase-field crystal modeling of shape transition of strained islands in heteroepitaxy[J]. Science China Physics, Mechanics and Astronomy, 2012, 55(11): 2042-2048.
- [19] 黄礼琳, 华平, 王玉玲, 等. 凸曲率衬底外延生长界面演化的晶体相场模拟[J]. 广西科学, 2014, 21(3): 241-246.
- HUANG L L, HUA P, WANG Y L, et al. Simulation of epitaxial growth interface on convex substrate using phase field crystal method[J]. Guangxi Sciences 2014, 21(3): 241-246.
- [20] WU K A, VOORHEES P W. Phase field crystal simulations of nanocrystalline grain growth in two dimensions[J]. Acta Materialia, 2012, 60(1): 407-419.
- [21] MCREYNOLDS K, WU K A, VOORHEES P. Grain growth and grain translation in crystals[J]. Acta Materialia, 2016, 120: 264-272.
- [22] CHENG M W, WARREN J A. An efficient algorithm for solving the phase field crystal model[J]. Journal of Computational Physics, 2008, 227(12): 6241-6248.
- [23] SUTTON A P, BALLUFFI R W. Interfaces in crystalline materials [M]. Oxford: Oxford University Press, 1995.

(责任编辑: 陆雁)