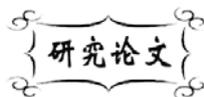


中图分类号: TB34
文献标识码: A

文献编号: 1005-1198 (2016) 06-0434-08
DOI: 10.16253/j.cnki.37-1226/tq.2016.07.002



晶粒正常生长的 Monte Carlo 模拟

王 岗¹, 刘 艳¹, 徐宗畅¹, 肖 岗², 张耀予¹, 谭 凯², 林一歆^{1,2}

¹ 华中科技大学 中欧清洁与可再生能源学院, 武汉 430074

² 华中科技大学 能源与动力工程学院, 武汉 430074

摘 要: 本文建立了晶界能各向同性情况下晶粒生长的二维 Monte Carlo 模型, 并对等温情况下的晶粒生长过程进行了模拟。在模拟过程中, 对传统 Monte Carlo 方法中能量与概率统计方法进行了改进。为了更加直观地显示出晶粒生长过程中系统能量的变化, 统计了在整个晶粒生长过程中能量的变化趋势, 结果与晶粒尺寸变化相符合。模拟得到的晶粒生长指数在 0.35 ~ 0.45 之间, 与理论值相符, 证明了改进方法的可靠性。

关键词: 计算机模拟; 晶粒生长; Monte Carlo 方法

Monte Carlo (MC) 方法是研究晶粒生长以及其相关过程的一种有效方法。使用 MC 方法研究晶粒生长的模型实际上是从 Ising 模型和 Potts 模型演化出来的, 这两种方法最初被用于研究铁磁体系统。使用 MC 方法研究晶粒生长实际上就是将不同取向的晶体赋予不同的取向数, 根据概率性原则来决定晶粒生长这一传播过程。

最早将 MC 方法运用到微观结构演化过程的人是 Anderson 等人^[1]。后来, Anderson 等人又将这种方法应用到晶粒生长^[2]、含有杂质粒子时的晶粒生长^[3]、异常晶粒生长^[4-6]等过程。随后, Q-state Potts 模型开始被用于研究两相晶粒生长的机理^[7,8]、晶粒生长过程中晶体结构的变化^[9]以及外部条件对晶粒尺寸分布的影响^[10]等。近年来, 关于晶粒生长的 MC 模拟的研究主要着眼于对传统晶粒生长模型的修改以使其更加贴合实际的晶粒生长过程, 例如: Mason 等人^[11]对模型中 Hamiltonian 函数以及转换概率进行了修改, 模拟了动力学各向异性晶粒生长; Fang 等人^[12]运用新的模拟算法模拟了单相和两相陶瓷材料在烧结过程中材料组织结构的演化; Wang 等人^[13]通过改进的 MC 算法模拟了晶体的初次再结晶过程和退火孪晶现象; Allen 等人^[14]运用统计学方法, 量化晶粒各向异性的程度, 然后通过 MC 方法模拟了单相材料的各向异性生长。

收稿日期: 2016-06-20

收到修改稿日期: 2016-10-31

基金项目: 国家自然科学基金 (21203069)。

第一作者: 王 岗 (1991 -), 男, 河南汤阴人, 硕士研究生。E-mail: wanggangty44@gmail.com。

通讯作者: 林一歆 (1982 -), 女, 湖北武汉人, 副教授。E-mail: yixinlin@hust.edu.cn。

国内学者对晶粒生长 MC 模拟的研究也取得了一些显著的进展。秦湘阁等人^[15]运用 MC 方法对单相多晶体各向同性颗粒组织进行了三维建模并模拟其生长过程；钟晓征等人^[16,17]运用 MC 方法模拟了多晶材料晶粒生长，并模拟了正常晶粒生长和异常晶粒生长两种情况；张继祥等人^[18]提出了一种“择优转换”方法对 MC 方法进行了改进，模拟了晶粒的生长过程；王海东等人^[19]根据晶粒生长机理建立改进的转换概率模型模拟焙烧过程中的晶粒生长，并对不同温度，不同焙烧时间以及不同激活能条件下的晶粒生长过程进行了模拟；王浩等人^[20]运用 MC 方法对 3 种现存的三维个体晶粒生长速率拓扑依赖性方程进行了仿真验证；马非等人^[21]采用改进的 MC 模拟方法对不同烧结温度和保温时间下的晶粒生长演化过程进行计算机模拟，并使用多孔 Al_2O_3 陶瓷烧结实验过程中的晶粒生长数据对模型进行了验证。

在实际应用中，传统的 MC 方法存在效率低下的问题，这是因为在传统 MC 方法中，格点取向改变范围是在 $1 \sim Q$ 之间取一随机数作为转变取向。在实际的晶粒生长过程中，晶粒生长实际上只受其相邻格点影响，其余格点对其取向转变影响微乎其微。如果将所有格点取向都考虑进去，难免会造成计算效率低下的情况。因而，本文根据实际情况对晶粒取向转变的算法进行了改进，在格点重新定向时，不再考虑所有的取向值 Q ，而仅考虑其邻近格点的取向值，这样就大大缩减了计算时间，提高了计算的准确率。

1 生长动力学

1952 年，Burke 发现晶粒的平均尺寸 R 与晶粒生长时间 t 之间存在一定的关系：

$$R^m - R_0^m = k_1 t \quad (1)$$

式中， k_1 是一个与温度和晶界移动率有关的常数， R_0 是系统在初始时刻的平均晶粒尺寸， m 是晶粒生长指数。关于晶粒生长指数 m 的取值历来都有争议，因为在不同实验条件、不同模型条件下模拟出的结果都不相同，一般而言，在不考虑二相粒子以及晶粒纯度对于晶粒生长的影响的条件下， m 值一般趋近于 2。

晶粒生长速率与晶粒尺寸之间的关系是由 Hillert^[22] 提出的，其关系式如下：

$$\frac{dR}{dt} = -k \left(\frac{1}{R} - \frac{1}{R_{cr}} \right) \quad (2)$$

其中， k 是一个与晶界迁移率和晶界能有关的常数， R 是单个晶粒的半径， R_{cr} 是临界半径。

晶界全都是高能量区域，晶界的存在会增加系统的自由能，从而使系统处于一种亚稳定的状态^[23]。当外界提供一定的能量波动（例如退火过程），系统中的晶界就会通过自身调节，使晶界处于新的（亚）稳定状态，从而降低整个系统的能量。

按具体形貌讨论总的晶界能可以更简单地讨论每一个晶界对结合点的作用力，从而获得晶界结合点的平衡条件。如图 1 所示，晶界结合点的平衡条件可以表示为：

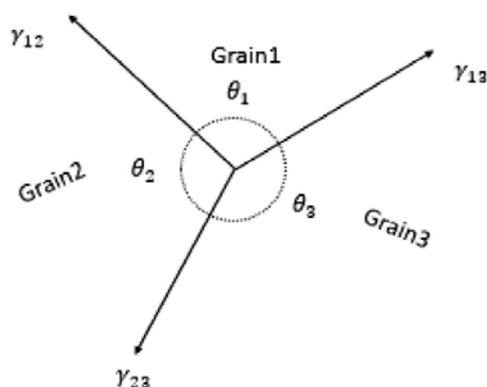


图 1 晶界稳定条件

Figure 1 Stable grain boundary conditions

$$\frac{\gamma_{23}}{\sin \theta_1} = \frac{\gamma_{13}}{\sin \theta_2} = \frac{\gamma_{12}}{\sin \theta_3} \quad (3)$$

晶界张力在三叉点处的平衡使晶界发生弯曲。在弯曲界面上存在一个指向界面曲率中心的力, 作用在单位面积上的力用 P 表示, 在这里称为晶界移动驱动力, 大小由 Laplace's 方程给出:

$$P = \gamma \left(\frac{1}{\rho_1} + \frac{1}{\rho_2} \right) \quad (4)$$

其中, ρ_1 和 ρ_2 为晶界的两个主曲率半径, γ 为界面张力。在二维系统中, $\rho_2 \rightarrow \infty$, 故上式可简化为:

$$P = \gamma / \rho \quad (5)$$

设在驱动力 P 作用下, 晶界移动一段距离 d , 则能量变化 ΔE 为

$$\Delta E = -Pd \cos \theta = -\frac{\gamma d}{\rho} \cos \theta \quad (6)$$

其中 θ 为晶界迁移方向与 P 方向的夹角。

假设系统中界面张力 γ 为常数, 由于驱动力 P 的作用, 晶粒长大过程中晶界将始终朝其曲率中心方向移动, 所以具有内凹型晶界的晶粒将长大, 晶界外凸的晶粒将缩小, 而平直晶界因其曲率半径无限大, 驱动力等于零, 将静止不动。

图 2 所示为一系列等边长的 n 边型晶粒。由图 2 可见, 大于六边的结构具有内凹边界, 他们在退火过程中会不断长大; 而小于六边的为外凸晶界, 在退火过程中不断减小。这就是所谓的 $n-6$ 规则。Mullins^[24] 指出晶体面积 A 的变化率与其拓扑关系存在如下的线性关系:

$$\frac{dA}{dt} = \frac{\pi\mu}{3}(n-6) \quad (7)$$

其中 n 是指定晶粒的边界数, μ 是一个与晶界迁移率和晶界能成比例的常数。式 (7) 表明, 当晶粒边界数 n 大于 6 时, 晶粒长大; 相反, 当 n 小于 6 时, 晶粒将收缩; 当边界数等于 6 时, 晶粒将不生长。

2 模拟方法

MC-Potts 模型是一种离散的统计方法。因为它十分适用于多相系统 (例如固相与液相), 所以它被广泛应用于扩散、离子传输、相变等现象的模拟研究。

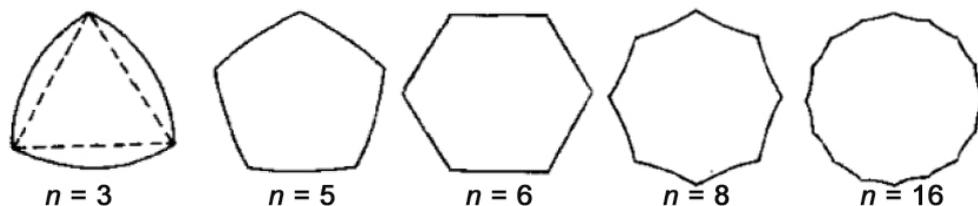


图 2 晶粒拓扑结构

Figure 2 Grain topological structures

利用 Potts 模型模拟晶粒生长时, 首先应把晶粒形貌离散化, 如图 3 所示^[25]。每一个离散格点都被赋予 1~ Q 之间的数值, 这个数值对应于晶粒在微观下的取向。研究表明, Q 的取值应当大于 32^[25], 因为只有这样才能减少取向数对于模拟结果的影响。

晶界的能量由不同格点之间的相互作用给出, 用 Hamiltonian 方程来描述:

$$H = J \sum_{i=1}^n [1 - \delta(q_i, q_j)] \quad (8)$$

式中, δ 是克罗内克符号, J 是相邻格点之间的作用力, n 是周围格点总数 (本文我们取如图 3

所示点阵, 因此任意一个格点周围有 8 个邻接格点), q_i 表示选定格点取向, q_j 表示相邻格点的取向。

在 MC-Potts 模型模拟晶粒生长的过程中, 我们首先随机选取一个格点, 计算该格点取向与相邻格点是否发生转变, 转变概率 W 由式 (9) 给出:

$$W = \begin{cases} \exp(-\Delta E / \kappa T) & \Delta E > 0 \\ 1 & \Delta E < 0 \end{cases} \quad (9)$$

其中, ΔE 表示取向改变过程中能量的变化, 由式 (10c) 计算得出, κ 是玻尔兹曼常数, T 是绝对温度。

在传统的 MC 方法中, 能量变化是这样计算的: 首先随机选取一个格点, 已知这个格点的取向值为 i , 那么, 我们就在除了 i 以外的 1~ Q 个取向中随机选取一个取向, 根据下列公式计算出该格点取向变为相邻取向 j 后, 系统能量差值的变化 ΔE , 进而求出其转换概率:

$$H_1 = J \sum_{i=1}^n [1 - \delta(q_i, q_j)] \quad (10a)$$

$$H_2 = J \sum_{i=1}^n [1 - \delta(q_j, q_j)] \quad (10b)$$

$$\Delta E = H_2 - H_1 \quad (10c)$$

但是在实际的晶粒生长过程中, 我们所选取的格点生长方向实际上只与其相邻晶粒有关。传统 MC 方法将所有的晶粒取向作为格点可能将要转变的方向显然是不合适的。在本文中, 对于所选取的格点, 其转变取向必然要在其相邻 8 个格点中选取。为了更符合实际情况, 我们将这 8 个格点的取向都加以考虑, 分别计算出取向转变后的能量改变 ($\Delta E_1 \sim \Delta E_8$), 比较这 8 个能量差值的大小, 选取绝对值最大的 ΔE (即取向转变后系统能量损失最大) 对应的取向作为转变取向, 再根据式 (9) 求出其转换概率。

3 模拟流程

对晶粒生长的 Monte Carlo 模拟流程如下 (图 4):

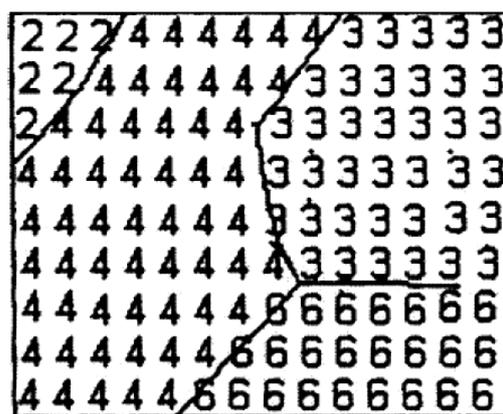


图 3 离散结构

Figure 3 Discrete structure

- (1) 输入模拟初始数据 (取向数 Q 、格点数 n 、模拟步数 MCS 等);
- (2) 建立晶粒初始形貌, 将其离散到格点上;
- (3) 对每一个格点随机赋予取向数, 代表该格点处的晶粒取向;
- (4) 随机选取一个格点, 根据式 (8) 计算格点能量;
- (5) 计算该格点取向转变为相邻取向后的能量;
- (6) 计算结点取向数改变前后能量差 ΔE ;
- (7) 根据式 (9) 计算转换概率 w ;
- (8) 在模拟过程中产生 $[0,1]$ 之间的随机数 r , 比较 w 和 r , 判断取向改变是否被接受: $w \geq r$ 时接受; $w < r$ 时不接受。
- (9) 如果取向改变被接受, 则该格点取向数改变为其相邻格点, 晶粒长大; 反之, 如果改变未被接受, 该晶粒则没有长大;
- (10) 一个 MCS 步完成;
- (11) 再重新选取一个格点, 按照(4)~(9) 的步骤模拟, 直至完成所有循环。

按照上述模拟流程使用 Matlab 软件编写了软件, 并对模拟结果进行了后处理。模拟采用的点阵

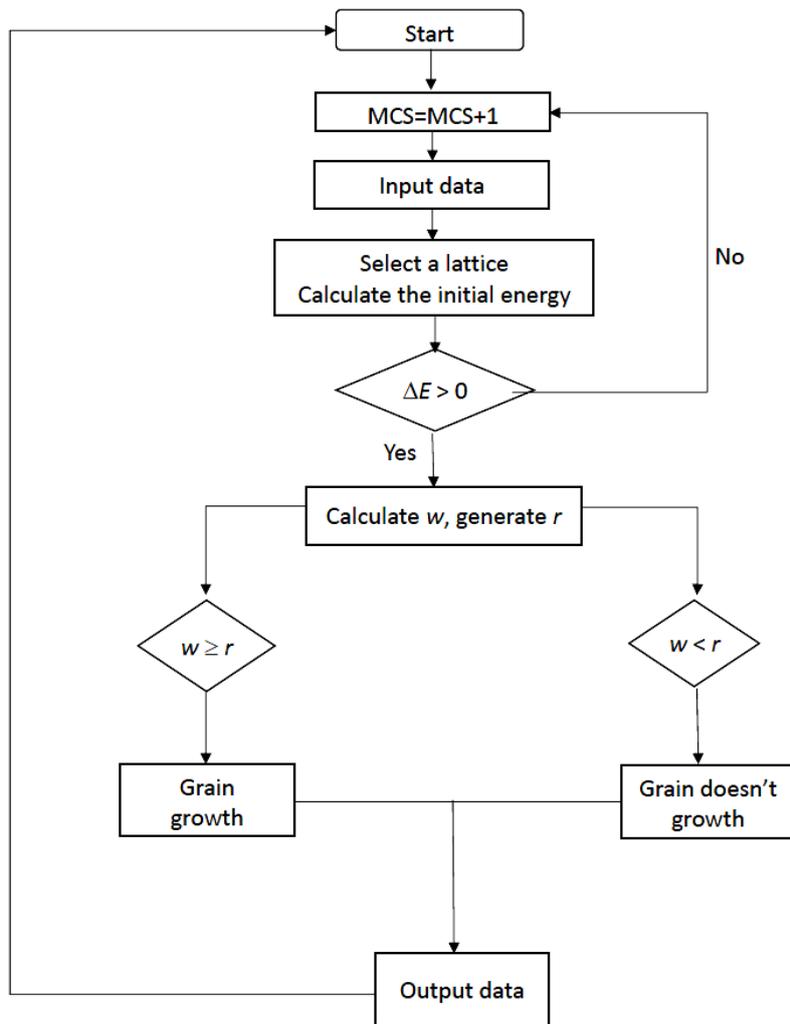
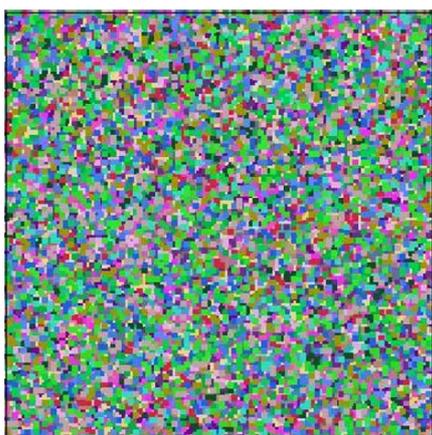


图 4 模拟流程图

Figure 4 Flow diagram of the simulation process

图 5 晶粒初始形貌 ($t=0$)Figure 5 The initial grain morphology ($t=0$)

为 100×100 ，取向值设定为 32，模拟步数 MCS 为 1000。

4 模拟结果与分析

图 5 所示为模拟建立的晶粒初始形貌，图 6 则给出了晶粒生长过程中晶粒形貌随时间的演化情况。可以看出，在 $t = 0 \text{ MCS} \sim 250 \text{ MCS}$ 之间，晶粒生长迅速，尺寸变化明显，大晶粒吞并小晶粒，晶界交点处多为 120 度，证明该模拟很好地符合了实验现象。而在 250 MCS 后，晶粒尺寸变化并不明显，于是我们统计了晶粒平均尺寸等参数来进行比较分析。

晶粒平均尺寸的变化规律如图 7 所示。可以看出，晶粒快速生长发生在 $0 \text{ MCS} \sim 200 \text{ MCS}$ 这个阶段；进入 400 MCS 后，晶粒尺寸基本保持稳定。

为了进一步研究晶粒生长过程，我们统计了每一个 MCS 步时整个晶粒所储存的能量，以便清楚地显示出晶粒长大过程中整个系统的能量变化，结果如图 8 所示。可以看出，晶粒生长过程实际上

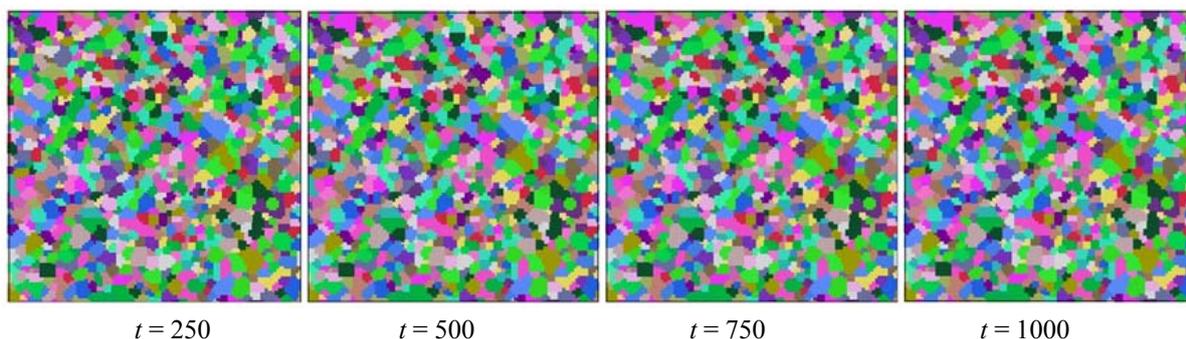
 $t = 250$ $t = 500$ $t = 750$ $t = 1000$

图 6 正常晶粒形貌随时间的演化

Figure 6 Microstructure evolution of normal grain growth overtime

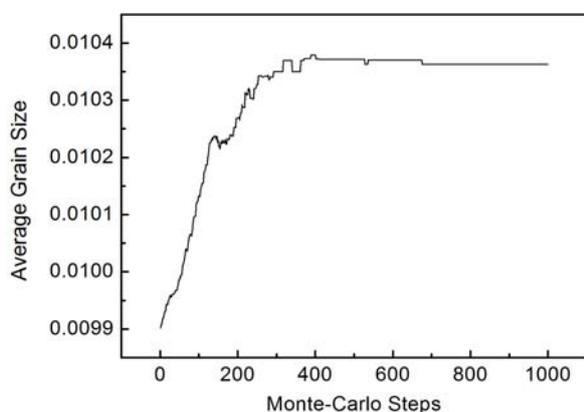


图 7 晶粒平均尺寸随模拟时间的变化

Figure 7 Variation of average grain size with simulation time

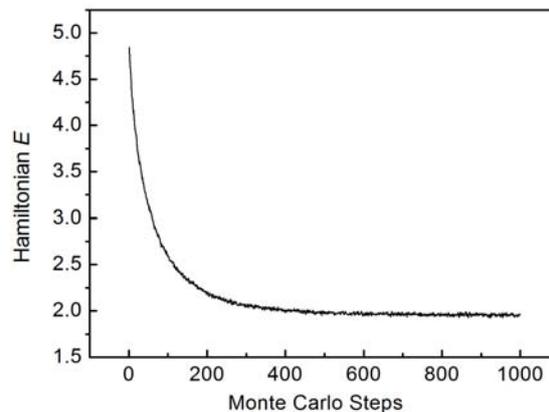


图 8 系统总能量随模拟时间的改变

Figure 8 Variation of total system energy with simulation time

就是晶粒晶界储能减少的过程,随着晶粒储能的减少,晶粒生长。在 0 MCS ~ 200 MCS 之间储能急剧下降,对应于图 7 中晶粒尺寸的急剧上升;400 MCS 后,晶粒尺寸保持稳定,晶粒储能基本不变。

根据模拟结果,我们可以得到晶粒生长曲线如图 9 所示:晶粒生长指数在 0 MCS ~ 200 MCS 之间有一个较大的变化,但最后稳定在 0.35 ~ 0.45 之间,这与理论值 0.5 差别不大。研究表明,理论值 0.5 只是针对理想状况,实际上由于杂质、间隙等因素的影响,大部分材料晶粒生长指数应当在 0.1 ~ 0.4 之间,这与我们的模拟结果相符。

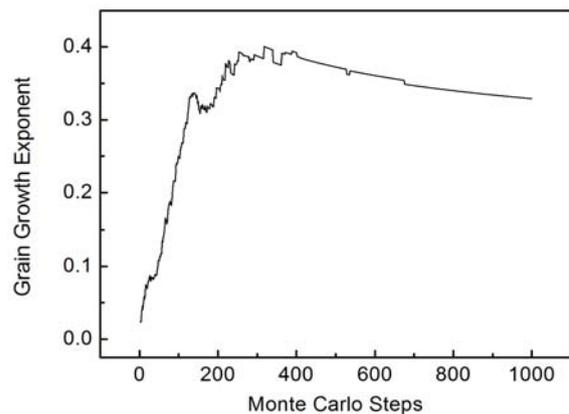


图 9 晶粒生长指数随时间的变化

Figure 9 Variation of grain growth exponent with simulation time

5 结 论

本文根据传统晶粒生长的 Monte Carlo 模型,提出了格点重新取向过程中新的随机提取方法。模拟分析证明了该改进算法的可靠性。将晶粒平均尺寸与系统能量相比较,验证了晶粒长大过程对应于系统能量减少这一现象。模拟得到的晶粒生长指数在 0.35 ~ 0.45 之间,与使用传统 Monte Carlo 方法模拟得到的结果 ($n = 1/3$ [26]) 相比,更加贴适于理论结果。

参考文献

- [1] ANDERSON MP, SROLOVITZ DJ, GRETT GS, et al. Computer simulation of grain growth: I, kinetics [J]. *Acta Metallurgica*, 1984, 32 (5): 783–791.
- [2] SROLOVITZ DJ, ANDERSON MP, SAHNI PS, et al. Computer simulation of grain growth: II, grain size distribution, topology, and local dynamics [J]. *Acta Metallurgica*, 1984, 32 (5): 793–802.
- [3] SROLOVITZ DJ, ANDERSON MP, GRETT GS, et al. Computer simulation of grain growth: III, influence of a particle dispersion [J]. *Acta Metallurgica*, 1984, 32 (9): 1429–1438.
- [4] SROLOVITZ DJ, GRETT GS, ANDERSON MP. Computer simulation of grain growth: V, abnormal grain growth [J]. *Acta Metallurgica*, 1985, 33 (12): 2233–2247.
- [5] ROLLETT AD, SROLOVITZ DJ, ANDERSON MP. Simulation and theory of abnormal grain growth: isotropic grain boundary energies and mobilities [J]. *Acta Metallurgica*, 1989, 37 (4): 1227–1240.
- [6] ROLLETT AD, MULLINS WW. On the growth of abnormal grains [J]. *Scripta METALLURGICA ET MATERIALIA*, 1996, 36 (9): 975–980.
- [7] OKUDA K and rollett AD. Monte Carlo simulation of elongated recrystallized grains in steels [J]. *Computational Materials Science*, 2005, 34 (3): 264–273.
- [8] COUTURIER G, DOHERTY R, MAURICE C, et al. 3D finite element simulation of the inhibition of normal grain growth by particles [J]. *Acta Materialia*, 2005, 53 (4): 977–989.
- [9] IVASISHIN OM, SHEVCHENKO SV, VASILIEV NL, et al. 3D Monte-Carlo simulation of texture-controlled grain growth [J]. *Acta Materialia*, 2003, 51 (4): 1019–1034.
- [10] ZOLLNER D, STREITENBERGER P, RIOS PR. Shedding some light on the early grain growth regime: about the effect of the initial microstructure on normal grain growth [J]. *Computational Materials Science*, 2016, 113: 11–20.
- [11] MASON JK, LIND J, LI SF, et al. Kinetics and anisotropy of the Monte Carlo model of grain growth [J]. *Acta Materialia*, 2015, 82: 155–166.
- [12] FANG B, HUANG C, XU C, et al. Numerical simulation of microstructural evolution of ceramic tool

