

文章编号: 0529-6579 (2000) 02-0122-03

界面扩散控制晶粒生长动力学的计算机模拟^{*}

蓝 图, 邵元智, 何振辉, 陈文智, 高险峻

(中山大学物理学系, 广州 510275)

摘 要: 建立一个模拟晶粒生长过程的三维计算机模型. 利用该模型可以方便地模拟不同条件下的晶粒生长过程. 对不同温度、体积分数和激活能条件下的生长过程进行了模拟运算, 结果表明: 三维晶粒尺寸 r 随时间 t 演化的生长过程满足关系 $r-t^{1/n}$, n 的值约为 6. 该模型的计算机模拟对纳米相生长动力学等实验具有一定的理论预见和指导意义.

关键词: 晶粒生长; 生长动力学; 计算机模拟

中图分类号: O781 **文献标识码:** A

90 年代以来, 纳米学科的研究得到广泛的重视, 成为物理、化学及材料学科交叉研究热点^[1,2]. 实际应用中希望长时间地保持纳米相的小尺寸, 如利用纳米相钉扎磁通可以有效地提高超导体临界电流密度^[3], 所以纳米团聚相的长大动力学问题备受关注. 古堂生等从实验角度研究纳米 SnO_2 在高温 850°C , 超长时间下长大动力学, 得出的一个结论为^[4]: 纳米团聚尺寸 r 随时间 t 演化的生长过程满足关系 $r-t^{1/n}$, n 的值在不同的生长机制下分别从 1~12 不等. 本文尝试用计算机模拟实现纳米团聚相长大的动力学过程, 重点考察在不同基体、不同纳米团聚相下, 各种体积百分比纳米团聚相的长大过程中, 经过不同温度和时间演化后的尺寸变化及某一时刻尺寸分布, 粒子个数, 单位体积的粒子密度, 粒子间的平均间距等. 最后分析计算结果, 力图揭示纳米团聚相的生长动力学规律. 本文出发点是模拟纳米团聚相的生长动力学, 但其模拟结果也适用于一般晶粒的生长.

1 模型介绍

1.1 理论原理 菲克第一定律

$$J = -D(\partial c / \partial x) \quad (1)$$

$$D = D_0 \exp(-Q/RT) \quad (2)$$

式(1)说明只要存在浓度(c)差, 物质就会从高浓度区域向低浓度区域扩散; 在纳米材料制备、保存和应用中, 纳米相沉淀后各相粒子的半径并不均一, 由汤姆逊公式^[5]

$$\ln(c_r/c_\infty) = \alpha/r \quad (3)$$

(3) 式可简化为 $c_r = c_\infty + \alpha/r$. 可知曲率半径小(r 大)的纳米相其表面上的固溶体平衡浓度小, 曲率半径大(r 小)的纳米相其平衡浓度也大, 因而在沉淀相中纳米相的生长会出现团

^{*} 基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (59702004)

收稿日期: 1999-07-22 作者简介: 蓝图 (1977~), 男, 硕士生.

聚效应, 即小的纳米相会逐渐变小, 直至消失, 大的纳米相会逐渐长大, 表现为纳米微粒的粗化现象. 实验上希望扼制这种粗化现象, 希望知道在某种条件下, 经过一段时间的生长后纳米相的团聚程度, 所以本文的计算机模拟对实验具有指导意义.

1.2 计算模型的建立 本模型采用以下的一些简化及近似:

- (1) 采用 1.1 部分描述的“粒子曲率半径差导致粒子界面迁移”的生长机制.
- (2) 本文只考虑各向同性的基体.
- (3) 晶粒的形状虽然实际上可能不规则, 但是考虑到生长一段时间后, 曲率半径大的部分很快扩散走, 粒子很快地发生球化, 所以选择了球形晶粒.
- (4) 由于现代纳米材料制备工艺日臻完善, 可以认为纳米相均匀分布于基质中, 所以令纳米相均匀分布于三维立方网格上, 只是尺寸大小则是随机分布.
- (5) 大的纳米相粒子吞并周围的小粒子后, 更远的粒子其扩散及其缓慢, 所以本模型只考虑到大粒子吞并第三近邻的小粒子后, 即达到生长平衡.

2 模拟结果

本文选择碳在 γ -Fe 中扩散的情况进行计算, 其激活能为 $84 \text{ kJ/mol}^{[5]}$. 计算了几种情况下的晶粒长大过程. 图 1 是体积百分比 (φ) 为 0.5%, T 为 1000 K 的条件下得到的不同时刻各种尺寸粒子占总粒子数的比例的图形. 图 2 是不同条件下的晶粒生长曲线图、密度曲线图以及 $\lg r - \lg t$ 图.

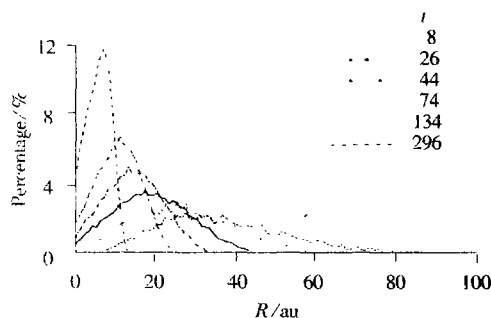


图 1 不同时刻 (任意单位) 粒子的尺寸分布

Fig.1 Size distribution of various arbitrary time

3 结论与讨论

由上面计算得到的结果, 可以得出以下

结论:

(1) 由图 1 知, 随着生长的进行大粒子比例越来越多, 粒子平均尺度越来越大, 在实验上这是晶粒的粗化现象, 粒子向着总表面积减小 (即能量降低) 的方向生长.

(2) 由图 2 知, 在初期阶段生长十分迅速, 这是由于各个纳米相粒子之间距离比较近, 由 (1) 式可知生长速度很大, 随着生长的进行, 近邻的小粒子被吞并了, 远处的粒子扩散比较慢, 所以长大的趋势渐缓.

(3) 对比图 2 (a) 和图 2 (d) 的生长曲线可知, 温度升高对晶粒生长具有很大的促进作用, 事实上, T 产生的影响的具体表式由 (2) 式给出.

(4) 由图 2 知, 粒子半径与时间之间存在关系 $r-t^{1/n}$, 计算结果表明 $1/n$ 为 0.172, n 约等于 6. 实验中测得 n 值是变化的^[5], 现在公认的观点认为不同的 n 值对应不同的生长机制. 本文对不同的激活能 Q , 不同的生长温度 T 和不同的 φ 下的团聚相生长过程进行模拟计算, 其结果 n 都约为 6. 这是因为本模型所模拟的生长过程其生长机制为粒子曲率半径差导致粒子界面迁移.

如果将影响颗粒生长的其它因素考虑进去, 提出各种模型并从动力学角度去研究晶粒的生长行为, 将计算机模拟结果与实验结果印证, 将会极大地丰富颗粒生长的理论.

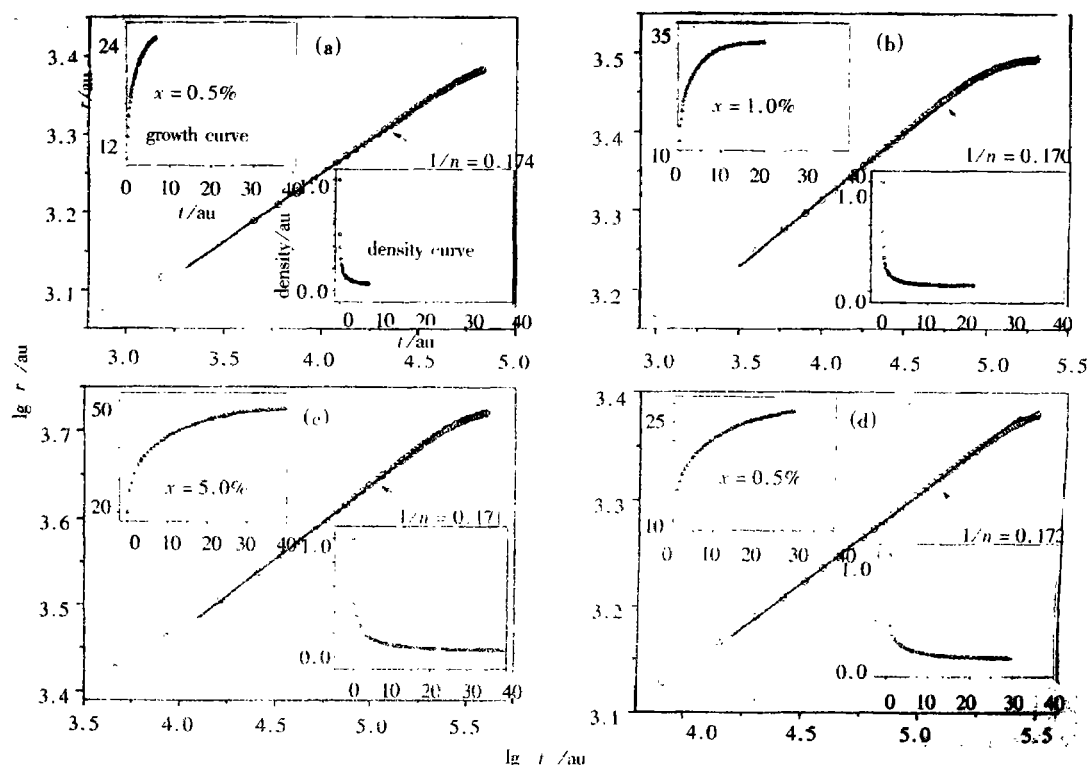


图 2 不同生长过程中粒子半径、粒子数密度随时间的变化图

Fig.2 The $r-t$, $\lg(r)-\lg(t)$ and particle density- t diagram

(a) T 为 1173 K; (b) T 为 1173 K; (c) T 为 1173 K; (d) T 为 1000 K

参考文献:

- [1] CHRISTOPHE P. Self-organization of magnetic nanosized cobalt particles[J]. Adv Mater, 1998, 10: 259 ~ 261.
- [2] SAMSON A J. Self-assembly of ordered microporous materials from rod-coil block copolymers[J]. Science, 1999, 283: 372 ~ 375.
- [3] SANDIUMENGE F, MARTINEZ B, OBRADORS X. Tailoring of microstructure and critical currents in directionally solidified $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ [J]. Supercond Sci Technol, 1997, 10: 93 ~ 119.
- [4] 古堂生. 纳米氧化物微结构特征与晶粒生长行为研究[D]. 广州: 中山大学物理学系, 1999. 8 ~ 10.
- [5] 乌曼斯基, 斯卡科夫. 金属物理[M]. 赵坚等译. 北京: 冶金工业出版社, 1985. 386, 108.

Computer Simulation on Grain Growth Kinetics Controlled by Interphase Diffusion

LAN Tu^{*}, SHAO Yuan-zhi, HE Zhen-hui, CHEN Wen-zhi, GAO Xian-jun

Abstract: A three-dimensional computer model simulating the grain growth kinetics controlled by interphase diffusion was developed. We simulated the growing process of nano-cluster ensemble under different initial temperature, volume fraction and activated energy. It turns out that there exists a relationship between size r of nano-cluster and time t as $r-t^{1/n}$, and the value of n is about 6.

Keywords: grain growth kinetics; computer simulation

* Department of Physics, Zhongshan University, Guangzhou 510275, China