

## ТЕОРИЯ МЕТАЛЛОВ

УДК 620.186.5

# РОСТ ЗЕРНА В МИКРОСТРУКТУРЕ С ДВУХВЕРШИННЫМ РАСПРЕДЕЛЕНИЕМ ЗЕРЕН ПО РАЗМЕРАМ

© 2021 г. В. Ю. Новиков\*

Treptower Str., 74D, Hamburg, 22147 Germany

\*e-mail: v.novikov@gmx.de

Поступила в редакцию 09.09.2020 г.

После доработки 19.04.2021 г.

Принята к публикации 29.04.2021 г.

Исследовали рост зерна в нетекстурованном материале с бимодальным распределением зерен по размерам. Обнаружено, что в чистом материале, несмотря на присутствие аномально крупных кристаллитов в исходной структуре, процесс роста может приводить к исчезновению второго максимума распределения. Показано, что это связано с развитием нормального роста зерна в мелкозернистой матрице и имеет место при небольшом исходном количестве крупных кристаллитов. Проанализировано влияние размера зерна матрицы на поведение второго максимума распределения в этих условиях. Показано, что торможение миграции границ может приводить к сохранению и даже усилению второго максимума.

*Ключевые слова:* рост зерна, распределение зерен по размерам, численное моделирование, микроструктура

**DOI:** 10.31857/S0015323021090096

## ВВЕДЕНИЕ

Управление микроструктурой материала является одним из главных инструментов воздействия на его свойства. При использовании однофазных сплавов, как правило, стремятся к формированию однородной структуры, однако в ряде случаев создают неоднородности, например, путем различных воздействий на поверхностные слои изделия. В связи с этим обращают на себя внимание недавние публикации об однофазных материалах с бимодальной структурой [1–3]. В данном случае речь идет не о локальной, а о глобальной неоднородности структуры, т.е. о неоднородности по всему сечению изделия. Объемная доля крупных зерен в такой структуре составляет 15–30%. Наличие бимодальной структуры приводит, в первую очередь, к повышению пластичности материалов с очень мелким зерном (см. например, [4, 5]). При этом, однако, недостаточно внимания уделяется возможным изменениям созданной структуры как при термической обработке изделий, так и при их эксплуатации. Эти изменения могут быть вызваны, в первую очередь, ростом зерна.

При двухвершинном распределении зерен по размерам (РЗР) рост зерна, согласно современным представлениям, должен приводить к формированию структуры с крупным зерном и исчезновению мелкозернистой матрицы, т.е. первого максимума РЗР. Это кажется естественным, так

как процесс роста зерна реализуется путем поглощения зернами более мелких непосредственных соседей [6, 7]. Вместе с тем многократно цитируется работа [8], в которой методом Монте-Карло показано, что крупный кристаллит, введенный в мелкозернистую структуру, замедляет свой рост с течением времени и в конце концов встраивается в “нормальное” РЗР. Эти результаты довольно неожиданны на фоне многочисленных экспериментальных данных, например, об аномальном росте зерна, в ходе которого крупные кристаллиты не встраиваются в РЗР мелкозернистой матрицы, а, напротив, интенсивно ее поглощают. Что касается материалов с бимодальной структурой, изучение роста зерна в них, насколько автору известно, вообще не проводилось. Настоящая работа выполнена с целью восполнить этот пробел. Это должно иметь значение как для разработки новых приемов управления микроструктурой, так и для дальнейшего развития теории процесса роста зерна.

## ОПИСАНИЕ МОДЕЛИ. НАЧАЛЬНЫЕ УСЛОВИЯ

Работа выполнена методом численного моделирования с помощью модели [9, 10], которая основана на представлениях о миграции границ зерен к центру их кривизны как причине роста зерна и позволяет проследить за изменениями РЗР с

**Таблица 1.** Характеристики исходной структуры исследованных поликристаллов

Поликристалл	$N_2$	$N_2/N_1$	$D_{\max}/D_1$	$D_1$ , мкм
P1	$0.5 \times 10^3$	$\sim 0.65 \times 10^{-5}$	$\sim 6.2$	$\sim 4.3$
P2	$0.2 \times 10^5$	$\sim 0.26 \times 10^{-3}$	$\sim 6.2$	$\sim 4.3$
M	—	—	$\sim 3.9^*$	$\sim 4.3^*$

\* Поскольку РЗР в поликристалле М одновершинное,  $D_1 = D$ .

течением времени. В отличие от таких методов, как метод Монте-Карло (см., напр., [8]) или метод фазового поля ([11]), она дает возможность изучать поведение неограниченно больших ансамблей зерен. Подобные методы обычно используются для исследования поведения отдельных зерен или их микроансамблей с небольшим, около  $10^3$ , числом элементов. В связи с этим в настоящей работе для изучения эволюции РЗР использована модель [9, 10], обеспечивающая более высокую статистическую надежность результатов.

Для нахождения изменений заданного РЗР в модели вычисляются смещения границ между растущим и поглощаемым зернами, относящимися к размерным классам  $i$  и  $j$ , где  $i > j$ :

$$\Delta d_{ij} = \gamma M (1/D_j - 1/D_i - Z) \Delta t, \quad (1)$$

где  $\gamma$  и  $M$  — энергия и подвижность их границы,  $D_j$  и  $D_i$  — диаметры поглощаемого и растущего зерна,  $Z$  — коэффициент, характеризующий величину тормозящей силы,  $\Delta t$  — шаг по времени. Смещения границ пересчитываются в изменения РЗР с учетом средней вероятности контакта растущего зерна с непосредственными соседями различного размера, а также условия постоянства объема системы. В настоящей работе принято, что  $\gamma = 500$  эрг/см<sup>2</sup> и  $M = 2 \times 10^{-11}$  см<sup>4</sup>/(эрг с) [12] одинаковы для всех границ зерен и не зависят от времени.

Исследован рост зерна в трехмерных поликристаллах с бимодальным РЗР. В исходном состоянии общее число зерен составляло  $\sim 0.8 \times 10^8$ , средний размер (диаметр) матричных зерен  $D_1 \approx \approx 4.3$  мкм, размер крупных кристаллитов  $D_2 \approx \approx 6.2D_1$ , их относительное количество  $N_2/N_1 = 0.4 \times \times 10^{-5} - 0.5 \times 10^{-3}$ , где  $N_2$  и  $N_1$  — число аномально крупных и матричных зерен, соответственно. Распределение зерен матрицы по размерам было близким к логнормальному, их максимальный размер достигал  $\sim 3.9D_1$ . Пространственное расположение зерен разных размеров считали случайным. За признак устранения бимодальности принимали исчезновение минимума между максимумами РЗР. Принято, что подошва максимума простирается по оси размеров от левой или правой границы РЗР до минимума. Изучены кинетика роста зерна и эволюция РЗР при различных исходных  $N_2$ . Для этого находили изменения

среднего  $D$  и максимального  $D_{\max}$  размеров зерна, а также — для каждого максимума — среднего размера зерен  $D_1$  или  $D_2$ , числа зерен  $N_1$  или  $N_2$  и их относительного объема.

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Моделирование роста зерна в отсутствие тормозящей силы (т.е. при  $Z = 0$  в уравнении (1)) показало, что с течением времени двухвершинное РЗР превращается в одновершинное. Если исходное количество аномально крупных кристаллитов больше  $\sim 0.1 \times 10^5 \approx 0.13 \times 10^{-3}N_1$  (это соответствует их объемной доле  $\sim 2\%$ ), второй максимум, как и ожидалось, усиливается, а первый — исчезает, причем увеличение  $N_2$  уменьшает время существования первого максимума. При меньших исходных значениях  $N_2$  второй максимум, напротив, исчезает, хотя вначале он усиливался, т.е. в ходе роста зерна крупные кристаллиты, несмотря на их размерное преимущество, встраиваются в РЗР матрицы. Время существования второго максимума убывает с уменьшением величины  $N_2$ . Для выяснения причин этого сравним результаты моделирования для поликристаллов с противоположным поведением максимумов, а именно, P1, где сохраняется первый максимум, и P2, где сохраняется второй. В качестве эталона использован поликристалл М, микроструктура которого аналогична микроструктуре матрицы в P1 и P2. Описание поликристаллов приведено в таблице; их РЗР после исчезновения максимумов показаны на рис. 1.

Рисунок 2 показывает изменения параметров микроструктуры в этих поликристаллах с течением времени. Сопоставление рис. 2а и 2в свидетельствует, что средний размер зерна  $D$  в поликристаллах P1 и М изменяется практически одинаково, тогда как  $D_{\max}$  в P1 растет заметно быстрее, чем в М. Как следует из сравнения рис. 2б и 2в, в поликристаллах P2 и М различия в поведении  $D$ , напротив, весьма существенны, очевидно, из-за поглощения зерен матрицы.

При этом  $D_{\max}$  в поликристалле P2 увеличивается сильнее, чем в М. Сравнение рис. 2а и 2б показывает, что величина  $D_2$  в P1 увеличивается быстрее чем  $D_1$ , тогда как в P2 это наблюдается только на начальных стадиях, а далее скорости их

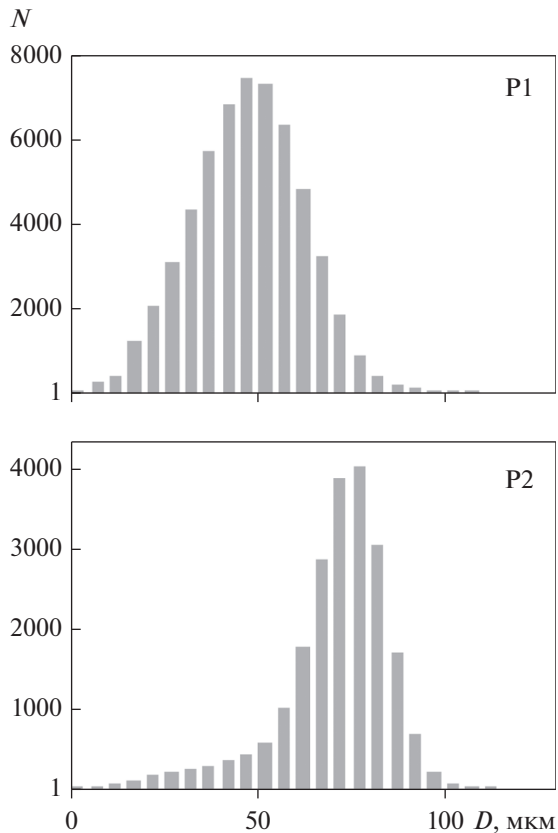


Рис. 1. РЗР в поликристаллах P1 и P2 после исчезновения, соответственно, второго или первого максимума ( $t = 30$  мин).

изменения практически не отличаются. Кроме того, видно, что  $D_2$ ,  $D$  и  $D_{\max}$  в поликристалле P2 растут медленнее, чем в P1. Наконец, в поликристалле P1 величина  $D_{\max}$  растет быстрее, чем средний размер зерна матрицы  $D_1$ . Все эти детали будут обсуждены в дальнейшем.

Дополнительные сведения об эволюции микроструктуры приведены на рис. 3. Видно, что в поликристалле M, где второй максимум РЗР изначально отсутствовал, количество зерен матрицы уменьшается на  $\sim 3$  порядка величины. Точно так же убывает  $N_1$  и в P1 за время существования максимума. По-видимому, последнее связано с небольшим числом крупных кристаллитов в исходной структуре. Вместе с тем в поликристалле P2 число зерен матрицы падает на  $\sim 5$  порядков. Различие в поведении P1 и P2, очевидно, вызвано тем, что количество крупных кристаллитов, которые поглощают матрицу, в P2 существенно больше, чем в P1. Кроме того, рис. 3 показывает, что уменьшение  $N_1$  происходит в две стадии: сначала быстро, а затем заметно медленнее. Первые стадии в поликристаллах P1 и P2 практически совпадают, тогда как вторые существенно отличаются, а именно, в P1 величина  $N_1$  изменяется так же, как в M, тогда как в P2 она падает значительно быстрее. Все это приводит к мысли, что различное поведение  $N_1$  на второй стадии в P1 и P2 связано с неодинаковым поведением второго максимума РЗР. Мы использовали изменения  $N_1$  на вто-

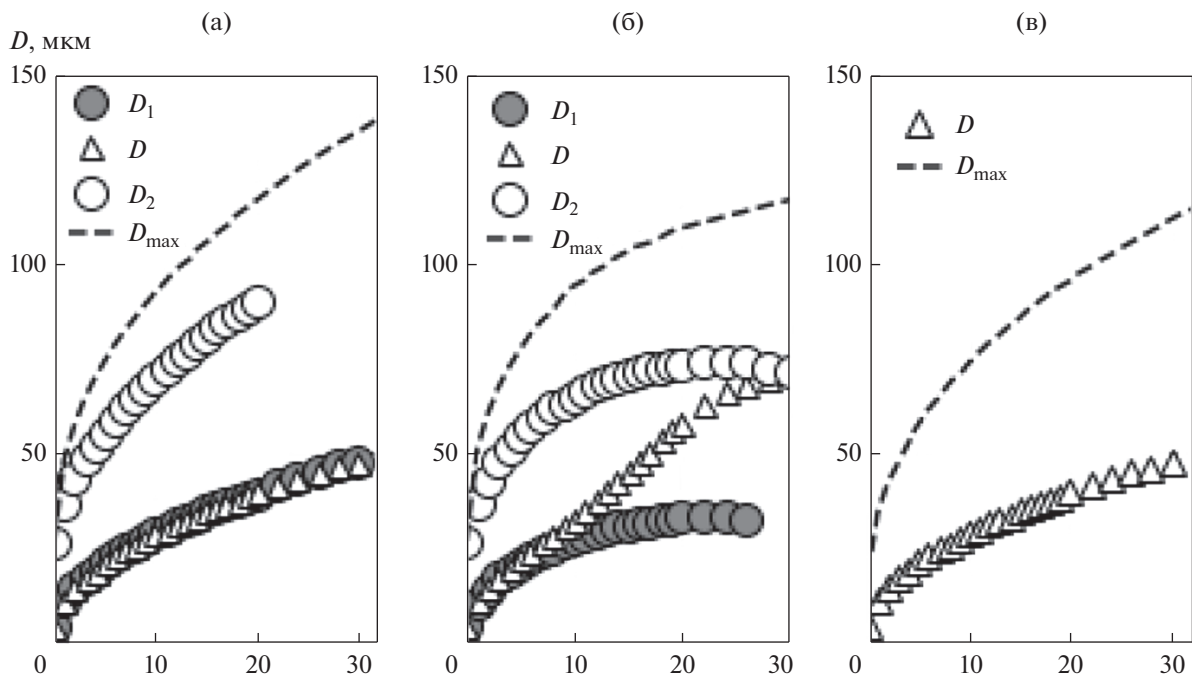


Рис. 2. Кинетика роста зерна в поликристаллах P1 (а) и P2 (б) с двухвершинным РЗР, а также в поликристалле M (в) с РЗР, аналогичным РЗР матрицы в P1 и P2.

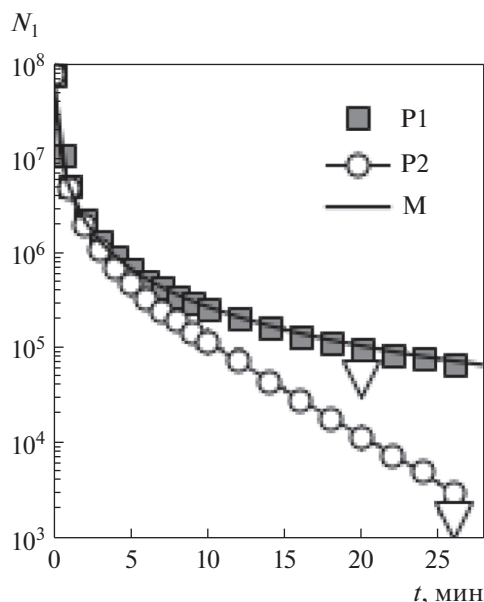


Рис. 3. Изменение  $N_1$  в поликристаллах P1, P2 и M при росте зерна. Треугольники указывают момент исчезновения одного из максимумов.

рой стадии для выявления протекающих на этой стадии процессов.

В связи с этим необходимо упомянуть возможные в анализируемых условиях процессы роста: (1) нормальный рост зерна в матрице, (2) увеличение размера крупных кристаллитов вследствие поглощения матрицы и (3) поедание крупными кристаллитами друг друга. В дальнейшем будут рассмотрены в основном первые два, так как третий должен развиваться крайне медленно из-за весьма низкой кривизны границ между крупными зернами. Увеличение среднего размера зерна при нормальном росте есть результат взаимодействия большого ансамбля зерен, в котором они могут поглощаться одними своими соседями и в то же самое время поглощать других. Рост anomalно крупных кристаллитов в таком же ансамбле — процесс, так сказать, односторонний: они растут за счет зерен матрицы, но их не поглощают (поскольку взаимодействие с соседствующими такими же крупными кристаллитами, как упоминалось выше, очень слабое). При этом важно иметь в виду, что скорость роста определяется тем, насколько размер поглощаемых соседей отличается от размера растущего зерна. Если размер соседей  $\sim D$ , тогда при нормальном росте растущее зерно и его соседи будут иметь близкие размеры, а при росте крупных кристаллитов в матрице их размер существенно больше размера поглощаемых соседей. Из-за этого крупные кристаллиты должны расти быстрее, чем средний размер зерна матрицы. В результате, в первом случае  $N_1$  будет уменьшаться заметно слабее, чем во втором. Поэтому

можно считать, что главная причина изменений  $N_1$  на второй стадии в поликристалле P2 — поглощение зерен матрицы anomalно крупными кристаллитами. Что касается P1, близость поведения  $N_1$  на второй стадии в нем к изменениям  $N_1$  в M (см. рис. 3) приводит к заключению, что главную роль здесь, по-видимому, играет нормальный рост. Таким образом, различное поведение максимумов PЗР в ходе роста зерна в поликристаллах P1 и P2 зависит от развития нормального роста в мелкозернистой матрице.

Следует иметь в виду, что нормальный рост в матрице может свободно развиваться только в тех участках структуры, которые не заняты крупными кристаллитами. Поскольку размер таких участков пропорционален  $(1/N_2)^{1/3}$ , где  $N_2$  — количество крупных кристаллитов, нормальный рост зерна в матрице должен быть выражен тем сильнее, чем меньше  $N_2$ . Судя по значениям  $N_2$  для исследованных поликристаллов (см. табл. 1), в P2 этот размер  $\sim 53$  мкм, а в P1 он в  $\sim 3.5$  раза больше. Следовательно, нормальный рост зерна в матрице P1 может развиваться значительно дольше, чем в P2, несмотря на ее поглощение крупными кристаллитами.

Проведенный анализ позволяет объяснить результаты, представленные на рис. 2. Так, практически полное совпадение  $D$  и  $N_1$  в поликристаллах P1 и M связано с легкостью развития нормального роста в матрице P1. Тот факт, что в поликристалле P2 нормальный рост зерна в матрице выражен более слабо, а  $D$  и  $D_{\max}$  меньше, чем в поликристалле M, можно объяснить следующим образом. Количество крупных кристаллитов в P2 увеличено, и они быстро поглощают матрицу, что повышает вероятность их контакта друг с другом и тем самым уменьшает скорость их роста. Поэтому  $D_2$  возрастает в P2 медленнее и достигает меньшей величины, чем в P1. Более быстрый рост  $D_{\max}$  по сравнению со средним размером зерна матрицы  $D_1$  в поликристалле P1 объяснен выше.

По-видимому, различия в эволюции PЗР поликристаллов P1 и P2 связаны с изменениями в парциальных PЗР крупных кристаллитов и PЗР зерен матрицы, которые происходят при росте зерна. С одной стороны, ширина первого в ходе процесса роста возрастает из-за увеличения  $D_{\max}$ . При этом минимальный размер крупных кристаллитов не должен заметно уменьшаться, т. к. он лишь незначительно отличается от  $D_2$ . С другой стороны, нормальный рост зерна в матрице должен приводить к увеличению ширины ее PЗР и, следовательно, к увеличению количества зерен в области размеров между максимумами общего PЗР. Одновременное поглощение матрицы anomalно крупными кристаллитами приводит не только к уменьшению числа зерен в ней, но и к

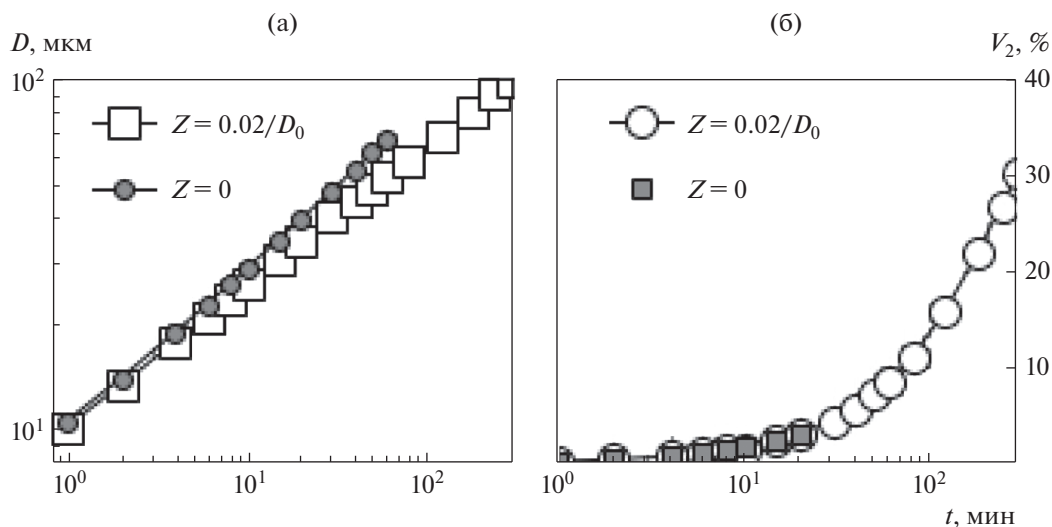


Рис. 4. Влияние тормозящей силы  $Z$  на кинетику роста (а) и изменение относительного объема зерен второго максимума  $V_2$  (б) в поликристалле P1.  $D_0$  – средний размер зерна в исходной структуре.

изменениям в ее РЗР. Последние сводятся к тому, что сокращается, главным образом, количество тех зерен матрицы, размер которых меньше  $D_1$  или близок к нему. Результат описанной выше эволюции парциальных РЗР зависит от того, насколько быстро поглощаются зерна матрицы. Если медленно (т.е. при низких  $N_2$ , как, например, в поликристалле P1), они успевают заполнить минимум в РЗР поликристалла вблизи  $D_2$ , если быстро (при больших  $N_2$ , как, например, в P2) – они заполнят минимум вблизи  $D_1$ . Поскольку признак существования максимумов – наличие минимума в общем РЗР (см. выше), это означает, что в первом случае исчезнет второй максимум, а во втором – первый. Кроме того, в первом случае крупные кристаллиты сами могут способствовать исчезновению второго максимума, т.к. в ходе своего роста они уменьшают его высоту.

В соответствии с вышеприведенным объяснением, поведение второго максимума РЗР в чистом материале с низким исходным  $N_2$  должно зависеть от скорости нормального роста зерна в матрице. Если ее увеличить, например, путем уменьшения исходной величины  $D_1$ , этот максимум будет исчезать быстрее. Наши результаты подтверждают, что в поликристаллах с уменьшенным  $D_1$  время существования второго максимума резко падает. Если же замедлить рост зерна, время жизни второго максимума увеличится. Рисунок 4 показывает что это действительно имеет место. Видно, что даже слабое торможение роста зерна в поликристалле P1 (см. рис. 4а) заметно увеличивает время существования второго максимума, как следует из рис. 4б. Более того, оказалось, что увеличение коэффициента торможения роста повышает объемную долю формирующих этот максимум зерен не ме-

нее, чем в 10 раз (см. рис. 4б), т.е. приводит к его усилению.

В связи с этим обратимся к аномальному росту зерна в анизотропной трансформаторной стали, который, как известно, связан со стабилизацией мелкозернистой матрицы дисперсными выделениями второй фазы. Поскольку относительное количество кристаллитов, вырастающих в этом материале при аномальном росте, мало ( $\leq 10^{-4}$ ), не исключено, что в отсутствие дисперсной фазы второй максимум РЗР может исчезать под влиянием роста зерна, как это показано на рис. 4б для поликристалла P1. В связи с этим кажется обоснованным предположение, что частицы второй фазы в трансформаторной стали играют еще одну роль. Замедляя нормальный рост зерен матрицы, они способствуют, по крайней мере, сохранению второго максимума РЗР, образованного кристаллитами  $\{110\}\langle 001 \rangle$ .

## ВЫВОДЫ

1. Методом численного моделирования исследован рост зерна, вызванный кривизной границ, в нетекстурованном материале, в микроструктуре которого имеются аномально крупные кристаллиты.
2. Рост зерна в бимодальной структуре в чистом материале приводит к сохранению только одного из максимумов, что зависит от числа крупных кристаллитов в исходной структуре.
3. Исчезновение второго максимума имеет место при малом количестве крупных кристаллитов и связано с развитием нормального роста зерна в мелкозернистой матрице.

4. Уменьшение размера зерна матрицы приводит к ускорению исчезновения второго максимума.

5. Слабое торможение роста зерна сопровождается не только сохранением, но и усилением второго максимума распределения.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Wang Y., Chen M., Zhou F., Ma E. High tensile ductility in a nanostructured metal // *Nature*. 2002. V. 419. P. 912–915.
2. Zha M., Zhang H.-M., Yu Z.-Y., Zhang X.-H., Meng X.-T., Wang H.-Y., Jiang Q.-C. Bimodal microstructure – A feasible strategy for high-strength and ductile metallic materials // *J. Mater. Sci. Technology*. 2018. V. 34. P. 257–264.
3. Höppel H.W., Korn M., Lapovok R., Mughrabi H. Bimodal grain size distribution in UFG materials produced by SPD: Their evolution and effect on mechanical properties // *J. Phys.: Conf. Series*. 2010. V. 240. P. 012147.
4. Witkin D., Lee Z., Rodriguez R., Nutt S., Lavernia E. Al–Mg alloy engineered with bimodal grain size for high strength and increased ductility // *Scripta Mater*. 2003. V. 49. P. 297–302.
5. Niu G., Wu H., Chang D., Gong N., Tang D. Study of microstructure and properties of bimodal structured ultrafine-grained ferrite steel // *Metals*. 2017. V. 7. P. 316.
6. Hillert M. On the theory of normal and abnormal grain growth // *Acta Metall*. 1965. V. 13. P. 227–238.
7. Novikov V. Grain Growth and Control of Microstructure and Texture in Polycrystalline Materials. CRC Press, 1997. 174 p.
8. Srolovitz D.J., Grest G.S., Anderson M.P. Computer simulation of grain growth—V. Abnormal grain growth // *Acta Metall*. 1985. V. 33. P. 2233–2247.
9. Novikov V.Yu. Computer simulation of normal grain growth // *Acta Metall*. 1978. V. 26. P. 1739–1744.
10. Novikov V.Yu. On conditions for secondary recrystallization in a material with random orientation // *Acta Metall*. 1981. V. 29. P. 883–887.
11. Liu Y., Militzer M., Perez M. Phase field modeling of abnormal grain growth // *Materials*. 2019. V. 12. P. 4048.
12. Gottstein G., Shvindlerman L.S. Grain Boundary Migration in Metals: Thermodynamics, Kinetics, Applications. CRC Press, 2010. 684 p.