arXiv:2304.10506v1 [cond-mat.mtrl-sci] 24 Mar 2023

Zircaloy-4合金热成形过程中连续动态再结晶和后动态再结晶的建模

预印本

Victor Grand*
部件研究中心
Framatome
73403，于吉讷，法国
victor.grand@framatome.com

Baptiste Flipon
巴黎矿业学院
PSL大学
材料成形中心（CEMEF），法国国家科学研究中心联合研究单位
06904，索菲亚-安提波利斯，法国
baptiste.flipon@minesparis.psl.eu

Alexis Gaillac
部件研究中心
Framatome
73403，法国于吉讷
alexis.gaillac@framatome.com

Marc Bernacki
巴黎矿业学院
PSL大学
材料成形中心（CEMEF），法国国家科学研究中心联合研究单位
06904，索菲亚-安提波利斯，法国
marc.bernacki@minesparis.psl.eu

2023年4月21日

摘要

本文采用一种近期开发的连续动态再结晶全场水平集模型，模拟 Zircaloy-4合金在热压缩及后续热处理过程中的再结晶。通过实验和模拟方法，研究应变速率、最终应变和初始微观组织的影响，并对再结晶不均匀性进行量化。这证实了淬火微观组织表现出更高程度的不均匀性。模拟结果较好地再现了实验观察结果。该模拟框架尤其能够捕捉由不同初始微观组织引起的再结晶不均匀性。最后，通过采用不同数值表述进行的补充模拟，指出了晶内位错密度不均匀性对再结晶晶粒优先生长的作用。

关键词 连续动态再结晶 · 锆合金 · 热成形

1 引言

核能是满足全球能源需求不断增长的一种化石燃料替代能源。它具有极低的碳足迹，且其生产过程可以根据需求进行调控。为了确保达到最高的质量和安全要求，必须熟练掌握每一种核部件的制造工艺。主要由锆合金部件组成的燃料组件也不例外。因此，持续深入研究锆合金热成形过程中发生的微观组织演化机制至关重要。再结晶会形成具有低位错密度的新晶粒，这些晶粒能够逐渐消耗变形微观组织 [1]。先前的研究得出结论，在常见的热成形条件下，锆合金，尤其是 Zircaloy-4合金，呈现出连续动态再结晶（CDRX）的典型特征 [2–5]。Chauvy 等人 证实，在热变形过程中会形成小角度晶界（LAGB），并逐渐转变为大角度晶界（HAGB）[2]。其他研究证实，层片状微观组织的热变形具有以下特征：

*通讯作者。

细小晶粒的形成，这些晶粒被轻微变形的大型团簇所包围。尽管这些研究聚焦于此类复杂层片状微观组织的变形，但并未详细探讨热机械条件和初始微观组织对再结晶的影响。

现有少数关于 Zircaloy-4合金再结晶的模拟结果均采用平均场模型获得。通过这种方法，Dunlop等人 成功再现了不同热处理条件下的静态再结晶动力学。Gaudout 等人将 Gourdet-Montheillet 连续动态再结晶模型应用于 Zircaloy-4合金，预测了不同热成形条件下的再结晶分数 [4]。由于这两种方法都依赖平均场模型，因此未考虑局部微观组织异质性的存在，而这对这类材料至关重要。

本文通过结合实验与数值研究，详细探讨热机械条件和初始微观组织对连续动态再结晶、后动态再结晶（PDRX）等再结晶机制的影响。为此，对具有不同初始微观组织的样品进行热压缩，并通过电子背散射衍射对微观组织进行表征。采用嵌入有限元框架（有限元水平集，FE-LS）中的水平集模型 [6]进行全场模拟 [7]。通过比较实验和模拟结果，评估模型的能力与局限性，并检验数值模型的不同基本假设。由此突显了若干微观组织特征的影响。

2 材料与方法

2.1 材料

选取了具有三种不同典型微观组织的Zircaloy-4合金样品。其中一种呈现等轴晶（**等轴显微组织**）形貌，其平均等效圆直径（ECD）为 $5.3\ \mu m$。其余样品则呈现淬火后遗传的魏氏组织，其中第二种具有篮织状（**篮织状显微组织**）形貌，最后一种则具有平行板（**平行板状显微组织**）形貌。

通过电子背散射衍射对初始微观组织进行表征。取向图见图1。等轴显微组织的极图绘于图2。由于篮织状显微组织和<正文>平行板状显微组织中的晶粒数量都很少，因此未展示极图，因为它们不能代表样品的整体织构。然而，由于淬火过程中形核的 α 晶粒取向由变体选择规则决定，篮织状显微组织和<正文>平行板状显微组织样品的织构可定义为准各向同性。图2显示，等轴显微组织样品具有织构，其中 <c> 轴分布于一个径向平面内。

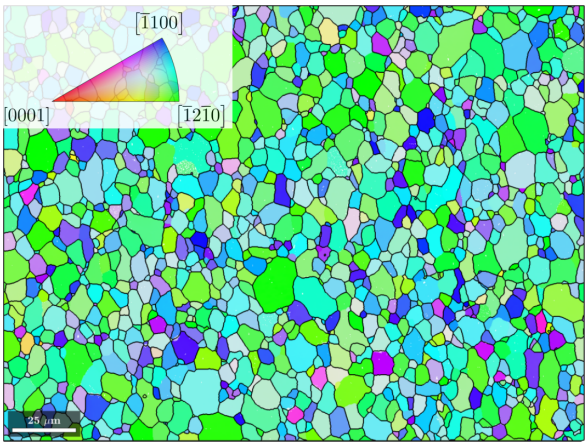
2.2 方法

2.2.1 实验方法

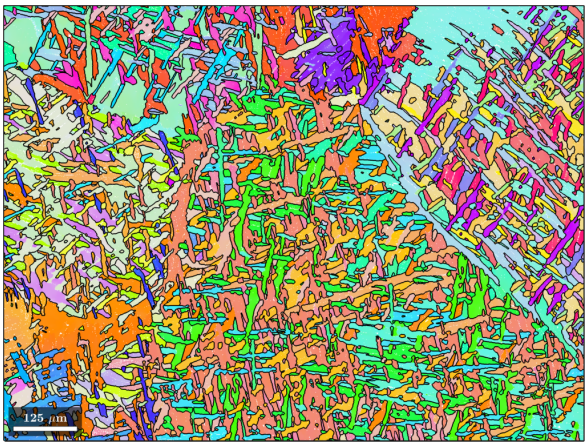
热机械测试 热压缩试验（后续是否进行热处理均可）按照表 1 所述条件进行。试验使用液压试验机（$MTS\ Landmark\ 370\text{-}25$）完成。使用辐射炉加热试样和模具。实验结束时，对试样进行淬火。整个试验过程均被拍摄，以测量实验结束与实际淬火之间的延迟时间。平均延迟时间为 $1\ s$。试样和模具均涂覆氮化硅，以降低摩擦。每次试验前，试样均在目标温度下保温 10 分钟，以确保温度均匀。

表 1 中所示的应变水平（记为 ε_{local}）是通过使用 $ForgeNxT^{®}$ 软件进行模拟计算得到的。为此，通过测量试样鼓胀，采用反演分析估算摩擦系数。选取摩擦系数的平均值来计算 ε_{local}。由于初始样品几何形状不同，等轴晶和层片状微观组织的数值略有差异。鉴于这些差异较小，我们认为可以合理地比较具有不同初始微观组织的结果。

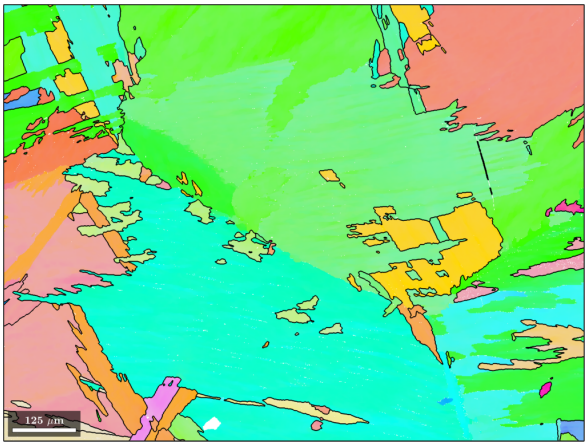
表征方法 热压缩后，采用电子背散射衍射（EBSD）分析对样品进行表征。使用一台配备$Bruker\ Quantax$ 系统（EBSD $e^{-}Flash^{HR}$）的$Carl\ Zeiss\ SUPRA\ 40$ 场发射枪扫描电子显微镜（FEG-SEM）。加速电压设为 $20\ kV$，步长设为 $100\ nm$。每幅图均以试样参考坐标系表示，其中 Y 为压缩方向， X 为径向。用于将取向映射为颜色的标准颜色编码取自反极图颜色编码，其中 Y 轴投影在标准三角形内。标准三角形对应于经对称操作约化后的晶轴系。这两种约定如图1a所示。



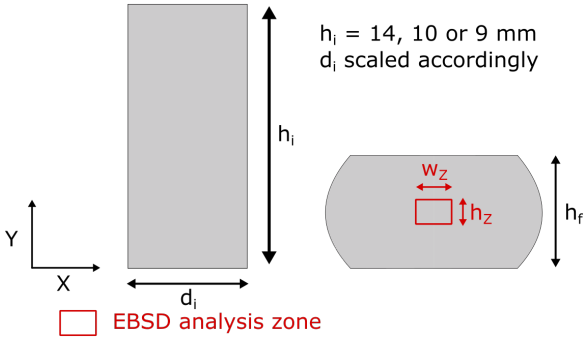
(a) **等轴显微组织**微观组织。



(b) **篮织状显微组织**微观组织。

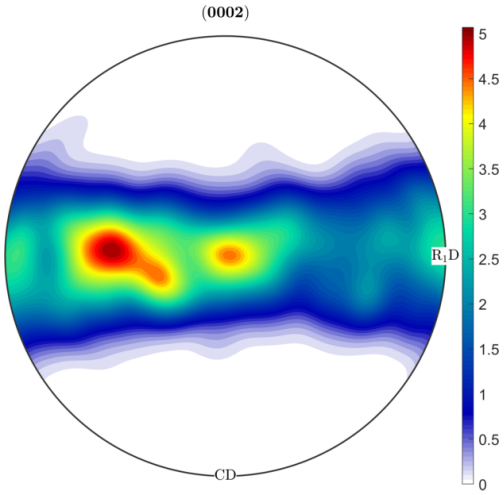


(c) **平行板状显微组织**微观组织。

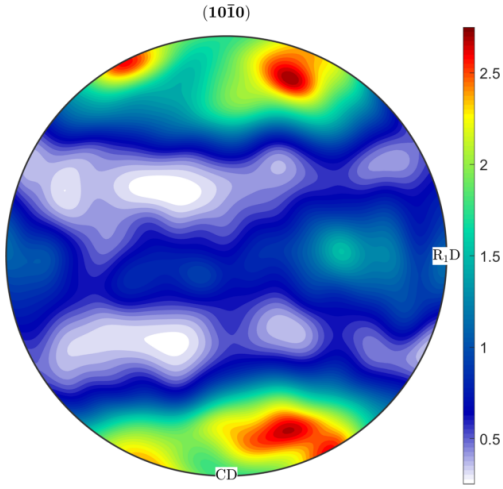


(d) 示意样品。

图1：代表三种初始微观组织的电子背散射衍射取向图。颜色编码采用 IPF Y颜色编码进行标注，如子图1a所示。最后一个子图展示了样品几何形状和EBSD观测区域。



(a) {0002} 极图。



(b) {10$\bar{1}$0} 极图。

图 2：来自电子背散射衍射数据的 {0002} 和 {1010} 极图。

ε_{local}	**0.01 秒$^{-1}$**			**0.1 秒$^{-1}$**			**1.0 秒$^{-1}$**		
450℃	0.45	0.75	1.0	0.45	0.75	1.0	0.45	0.75	1.0
550℃	0.45	0.75	1.0	0.45	0.75	1.0	0.45	0.75	1.0
650℃	0.45	0.75	1.0	0.45	0.75	1.0	0.45	0.75	1.0

(a) 等轴晶微观组织（热压缩（**等轴显微组织**）。

ε_{local}	**0.01 秒$^{-1}$**			**0.1 秒$^{-1}$**			**1.0 秒$^{-1}$**		
450℃	0.55	0.9	1.2	-	-	1.2	-	-	-
550℃	-	-	1.2	0.55	0.9	1.2	-	-	1.2
650℃	-	-	-	-	-	1.2	0.55	0.9	1.2

(b) 层片状微观组织（**篮织状显微组织** 和 **平行板状显微组织**）的热压缩。

保温时间 (s)		**0.1 s^{-1}**						**1.0 s^{-1}**					
650℃	**0.45**	-	-	-	-	-	-	7	12	25	50	100	200
	1.0	7	12	25	50	100	200	7	12	25	50	100	200

(c) 等轴微观组织（**等轴显微组织**）的热压缩与等温保温。

保温时间 (s)		**0。1 秒$^{-1}$**				**1.0 秒$^{-1}$**			
650℃	**0.55**	-	-	-	-	12	25	50	100
	1.2	12	25	50	100	12	25	50	100

(d) 具有层片状微观组织（**篮织状显微组织** 和 **平行板状显微组织**）的热压缩及等温保温 .

表 1：热压缩实验的热机械条件说明。

切割样品时，使压缩方向位于切割平面内。观察区域位于样品中心，其尺寸为： $130 \times 85\ \mu m^2$。

使用 MTEX 工具箱 [8]对EBSD数据进行后处理。在进行任何后处理操作之前，先应用半二次滤波器以降低噪声 [9]。如果数据用作模拟的输入，则执行填充操作。使用半二次滤波器对未标定像素处缺失的取向数据进行插值。

滤除孤立的已标定像素。为此，每个晶粒至少需包含 10 个像素，对应的区域宽度为 $300\ nm$ 。小角度晶界（$\Delta\theta_{\text{LAGB}} = 3°$）和大角度晶界（$\Delta\theta_{\text{HAGB}} = 15°$）的阈值角分别设为 $3°$ 和 $15°$ 。使用 Pantleon [10]提出的方法估算几何必需位错（GND）密度。如果晶粒的平均GND密度低于 $10^{14}\ m^{-2}$，则将其定义为再结晶晶粒。与晶粒内部取向差相关的其他晶粒属性（例如晶粒取向扩展（GOS）或晶粒平均核平均错配（GAKAM））相比，优先采用GND密度。其优势在于可直接应用于模拟。

2.2.2 数值工具

采用嵌入有限元（FE）框架中的水平集（LS）公式来模拟连续动态再结晶和后动态再结晶。水平集函数（$\phi(x,\ t)$）跟踪界面随时间 [6, 7, 11] 的位置。它们被初始化为到晶界（GB）的有符号欧几里得距离函数：

$$\begin{cases} \phi(x,t) = \pm\, d\left(x, \Gamma(t)\right),\ x \in \Omega, \\ \Gamma(t) = \{x \in \Omega,\ \phi(x,t) = 0\}, \end{cases} \tag{1}$$

其中， d 是有符号欧几里得距离函数，Ω为模拟域。按照惯例， $\phi(x,\ t)$在晶粒内部取正，在外部取负。

晶界的移动通过求解以下输运方程进行预测：

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + \overrightarrow{v} \cdot \overrightarrow{\nabla \phi} = 0, \tag{2}$$

其中， $\overrightarrow{v}$为界面速度。每次求解后，都会对水平集函数进行重新初始化，以确保水平集函数始终保持为符号距离函数 [12]。空洞和重叠则根据 Merriman 等人 [6]提出的方法进行修正。

介观尺度上的晶界速度可定义为表面能效应与体积能效应之和。得益于距离函数的性质，与毛细作用相关的项可以自然地计算：

$$\overrightarrow{v}_c = -M\left(\overrightarrow{\nabla \gamma} \cdot \overrightarrow{n} - \gamma\kappa\right)\overrightarrow{n}, \tag{3}$$

其中 $\overrightarrow{n} = -\overrightarrow{\nabla \phi}$、 $\kappa = -\Delta\phi$ 和 γ 为晶界能。文献 [13, 14]详细介绍了如何将 γ 扩展到晶界界面附近，以评估 $\overrightarrow{\nabla \gamma}$，以及如何通过对流-扩散求解输运水平集方程（Eq.2）来考虑这一速度。

另一种效应与晶界两侧储存能的差异有关，需要专门处理。起初，Bernacki等人 [7] 提出根据晶粒储存能与晶界距离的函数，对各晶粒储存能的贡献进行加权。具体如方程4所示。

$$\overrightarrow{v}_e(x,t) = \sum_{i=1}^{N_d}\sum_{j=1}^{N_d} M_{ij}\chi_i(x,t)f(\phi_i(x,t),l) \times \left[E_j(x,t) - E_i(x,t)\right]\overrightarrow{n}, \tag{4}$$

其中， $\chi_i(x,t)$是 i^{th} 水平集函数的特征函数，即当水平集函数为正时， $\chi_i(x,t) = 1$；其他所有位置均有 $\chi_i(x,t) = 0$。 f 是一个递减函数，当 $\phi_i = 0$ 时取值为1，当 $\phi_i = l$时取值为0。为节省计算时间和内存，需要限制水平集函数的数量，因此人们开发了图着色和重新着色技术，以便在每个水平集函数中描述多个互不相邻的晶粒[15]。如今，描述所有晶粒所需的全部距离函数集合为： $\Phi = \{\phi_i,\ i = 1, ..., N_d\}$，其中$N_d$ 为距离函数的数量，远小于 N_g 晶粒的数量。这种实现方式需要使用 N_d能量场，其初始化方式如下： $E_i(x, 0) = \chi_i(x, 0) \perp \times E(x, 0) = \tau\rho_i(x, 0)$，其中$\tau = \frac{1}{2}\mu b^2$为位错线能， b为Burgers矢量的模， μ为剪切模量。对这些能量场进行跟踪和更新，以确保其与水平集函数及界面的精确位置保持一致。

有关该方法的更多细节见多篇文章 [7, 16] ，以下**储存能梯度**段落将提出一项扩展。关于连续动态再结晶的专门实现，参见文献 [17]中的详细描述。

小角度晶界特征连续动态再结晶的特点是小角度晶界分数较高。因此，要对此类现象进行建模，必须准确描述此类界面的形成及其性质。新小角度晶界的形成通过采用Gourdet和Montheillet开发的模型中的方程来处理[18]。在每个变形增量 $d\varepsilon$中，所形成的小角度晶界数量根据方程5进行描述。

$$dS^+ = \frac{\alpha b K_2 \rho d\varepsilon}{\eta\theta_0}, \tag{5}$$

其中， dS^+ 表示在二维模拟（或三维模拟）中形成的晶界长度（或表面积）， $\alpha = 1 - \exp\left(\frac{D}{D_0}\right)^m$ 是一个系数，用于描述回复并形成新亚晶的位错所占比例。 D 为等效圆直径， D_0 为参考等效圆直径， m 为固定系数。 K_2 是Yoshie-Laasraoui-Jonas 方程 [19]的回复参数， ρ 为位错密度， η 为位错组的数量， θ_0 为新形成亚晶的取向差。

预先存在的低角度晶界（LAGB）会经历逐渐增加的取向差，其变化规律由以下公式规定：

$$d\theta = \frac{b}{2\eta}\left(1-\alpha\right) DK_2 \rho d\varepsilon. \tag{6}$$

假设晶界迁移率具有各向同性。其随温度的变化采用阿伦尼乌斯关系进行预测，例如 $M = M_0 \times \exp\left(\frac{-Q_m}{RT}\right)$，其中 M_0 为迁移率前指数因子，Q_m 为迁移率表观活化能。晶界能根据 Read-Shockley 方程 [20]进行描述：

$$\gamma(\theta) = \begin{cases} \gamma_{max}\left(\dfrac{\theta}{\theta_{max}}\right)\left(1-\ln\dfrac{\theta}{\theta_{max}}\right),\ \theta < \theta_{max}, \\ \gamma_{max},\ \theta \geq \theta_{max}. \end{cases} \tag{7}$$

γ_{max} 为大角度晶界能，θ_{max} 为小角度/大角度晶界错取向阈值，设为 15°。

第二相颗粒（SPP）的钉扎效应在每个 SPP 位置处，都会执行重新划分网格操作并移除单元。对于有限元水平集的求解，在网格边界施加零诺伊曼边界条件后，代表 SPP 的孔洞自然会对晶界施加张力，这与非共格颗粒的 Young-Herring 平衡一致 [15, 21–23]。

硬化与回复采用 Yoshie-Laasraoui-Jonas 方程 [19]，考虑变形引起的位错密度演变：

$$d\rho = \left(K_1 - K_2\rho\right) d\varepsilon. \tag{8}$$

K_1 为硬化参数。在本研究中，K_1 因晶粒而异。对于每种初始数字化微观组织，其取值均根据实验测得的分布设定。

$(K_1,\ K_2)$ 随热机械条件的演变由方程 9 和 10 [24]描述。屈服应力 σ_0 被描述为 Zener-Hollomon 参数对数的线性函数（方程 11）[25]。

$$K_1 = K_1^0 \dot{\varepsilon}^{m_h} \exp\left(\frac{m_h Q_h}{RT}\right), \tag{9}$$

$$K_2 = K_2^0 \dot{\varepsilon}^{-m_r} \exp\left(-\frac{m_r Q_r}{RT}\right), \tag{10}$$

$$\sigma_0 = \sigma_0^s \times \ln\left(Z\right) + \sigma_0^i. \tag{11}$$

wh其中，σ_0^s 和 σ_0^i 分别表示线性函数的斜率和截距。

储存能梯度 诸如水平集方法或多相场方法等全场前沿捕捉再结晶模型，通常假设每个晶粒的变形储能均为唯一且均匀的值。然而，实际上，晶粒内部的位错密度可能存在显著差异。由于局部且剧烈的梯度对晶界迁移的影响仍难以量化，因此在介观尺度对其进行建模并非易事。在水平集方法的背景下，Ilin 等 提出按界面考虑恒定的晶界速度 [26]。为此，对晶界附近的位错密度进行平均。对位错密度进行平均时所取的界面距离 (w_{avg}) 是一个参数。本文还考虑了另一种建模策略，即在每个有限元节点处局部计算能量差。图 3 展示了不同方法。图的左侧展示了初始构型，其中每个晶粒的能量分别按晶粒平均（上）、按界面平均（中）或不进行平均（下）。图中以黑色标出了若干有限元，用以展示相应有限元节点处的能量场。这些图中使用的不同符号由以下方程描述：

$$E_k\left(t\right) = \tau\rho_k\left(t\right) = \tau\int_{G_k}\rho\left(\mathbf{x},t\right)d\mathbf{x},$$

$$E_{kl}(t) = \tau\rho_{kl}(t) = \tau\int_{G_{kl}} \rho(\mathbf{x},t)\,d\mathbf{x},$$

其中，

$$G_k(\mathbf{x},t) = \{\mathbf{x}\in\Omega, \phi_k(\mathbf{x},t)\geq 0\},\ G_{kl}(\mathbf{x},t) = \{\mathbf{x}\in\Omega, min(\phi_k(\mathbf{x},t), \phi_l(\mathbf{x},t)+w_{avg})\geq 0\}$$

在此阶段，对于这三种策略，每个晶粒在其对应晶粒内部的能量场均已完全确定。然而，为了能够计算式（4）中定义的速度场，必须将这些场沿各自的水平集函数向外延拓。 [12]中介绍的直接重初始化算法针对每个节点，计算其到构成水平集函数分段线性零等值线的最近面片的距离（二维情况下为线段，三维情况下为三角形），如图3右侧的蓝色矢量所示。这些未用于有限元求解的面片也以蓝色（虚线段）的形式显示在图3右侧。该算法经过修改后，现在还可以返回穿越单元的所有相关特征。因此，当 ϕ_i 函数重新初始化时，描述储存能的场会在相邻晶粒中以固定厚度向外延拓。图3右侧采用这一方法，展示了界面周围有限元节点之间共享的所有信息，其中能量分别按晶粒取平均值（上）、按界面取平均值（中）以及不取平均值（下）。随后，这些信息可用于计算每个有限元节点处式（4）中的项 $E_j(x,\ t) - E_i(x,\ t)$。

为评估每种实现方式的影响，将考虑五种不同的近似情况：

- 按晶粒平均的位错密度，
- 按界面平均的位错密度，范围为距晶界 $100\ nm$ 以内（按界面； $w_{avg} = 100\ nm$），
- 按界面平均的位错密度，范围为距晶界 $200\ nm$ 以内（按界面； $w_{avg} = 200\ nm$）。
- 局部位错密度（局部），
- 局部位错密度，并进行预处理操作，即对位错密度图应用二维高斯滤波器。高斯滤波器的标准差取为$2\ px = 200\ nm$ （局部，高斯滤波）。

3 结果

3.1 连续动态再结晶和后动态再结晶的表征

图4展示了在三个不同变形程度下热变形样品对应的取向图。这些图证实，为了适应变形，晶内取向梯度逐渐形成，并促使亚晶的形成。随着变形的进行，晶粒沿水平方向变得越来越细长，小晶粒的数量也呈现出明显的增加趋势。这些小晶粒似乎聚集形成了团簇。

为定量分析热变形对显微组织拓扑的影响，图5给出了小角度晶界比长度和晶粒 ECD 的演变情况。图5b证实了低角度晶界的大量存在。在此处展示的所有条件下，至少有34%的晶界为低角度晶界。虽然小角度晶界比长度通常随应变增加而增大，但在高应变水平下似乎趋于稳定。低角度晶界长度占比随应变增加而降低，这表明大角度晶界比长度的增长速率更快。最后，图5c显示，晶粒尺寸随变形显著减小。

图6展示了给定热变形条件下的GND密度图： $T = 650°C$； $\dot{\varepsilon} = 0.01\ s^{-1}$； $\varepsilon = 1.0$。选择这一特定条件，是因为高温、高应变水平和低应变速率有利于连续动态再结晶。从图中可以观察到，部分较小晶粒的GND密度较低。然而，它们并未明显区别于整体晶粒群。因此，热变形后再结晶分数仍然较低。

这些结果表明，连续动态再结晶通过低角度晶界的逐步形成而进行。这一现象始于低应变下（$\varepsilon \leq 0.5$），并在此阶段占主导。随后，如果积累了足够的变形储能，低角度晶界便逐渐转变为大角度晶界。此时可以观察到大量小晶粒，低角度晶界长度占比也显著下降。然而，这些小晶粒的GND密度并不像预期的那样很低。这些显微组织变化随变形逐步发生，并分布于整个微观组织中。这证实，在本研究所考察的条件范围内，Zy-4经历了连续动态再结晶。

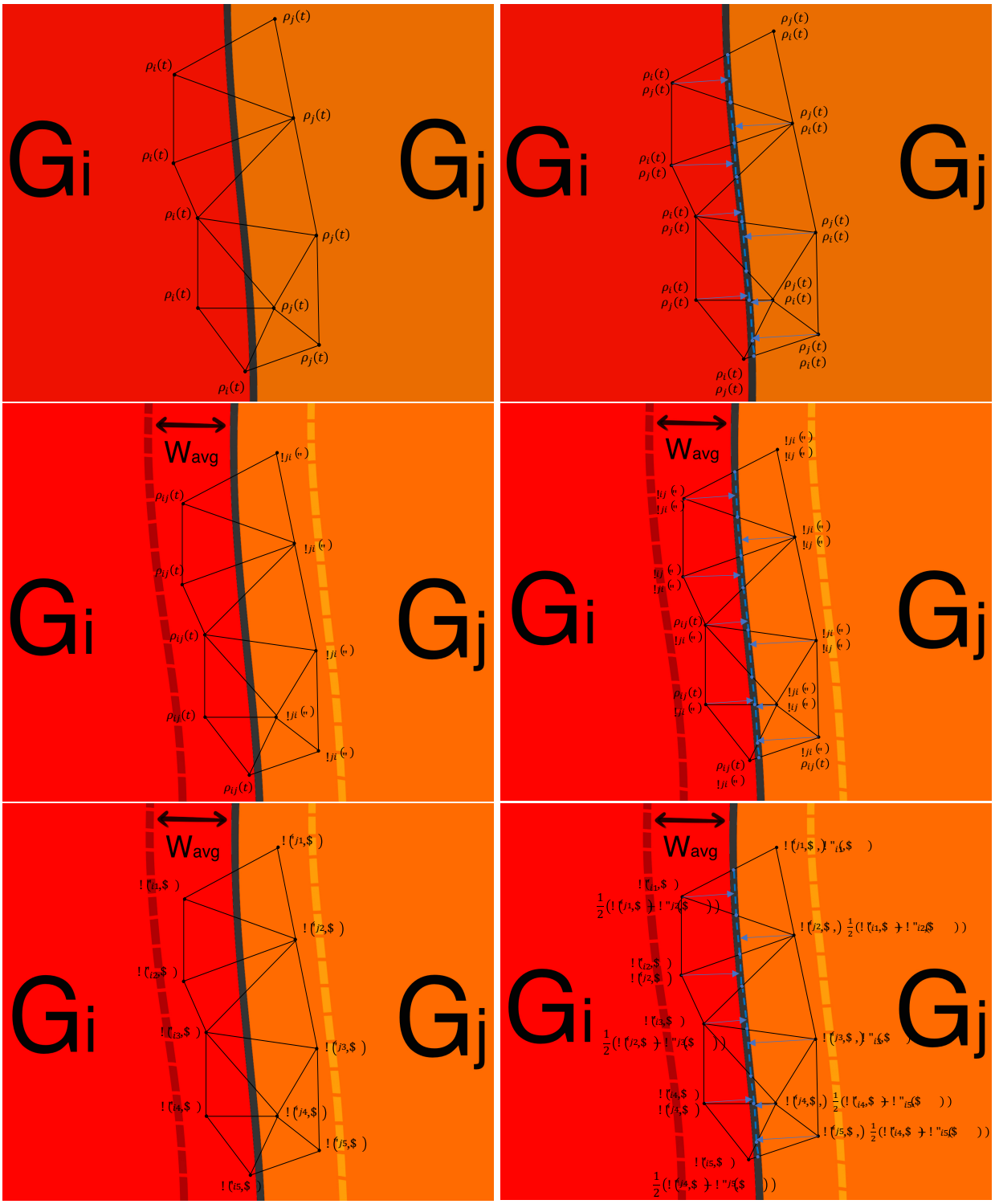
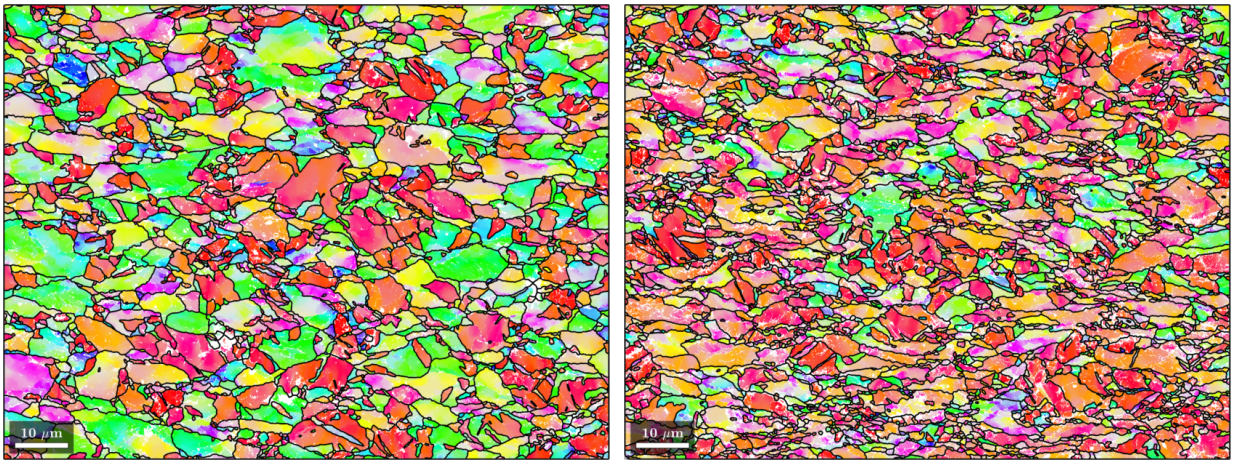


图3：说明围绕晶界界面评估 $E_j(x,\ t)\ -\ E_i(x,\ t)$的方案：（左侧）重新初始化过程前每个有限元节点的可用信息；（右侧）重新初始化 ϕ_i 和 ϕ_j之后的信息。（上）按晶粒平均的能量，（中）按界面平均的能量，（下）未取平均。



(a) $\varepsilon = 0.45$。 (b) $\varepsilon = 0.75$。

(c) $\varepsilon = 1.0$。

图 4 $T = 550°C$ $\dot{\varepsilon} =$ $0.1\ s^{-1}$：展示热变形过程中微观组织演变的EBSD取向图（；）。**等轴显微组织** 样品。IPF Y颜色编码。

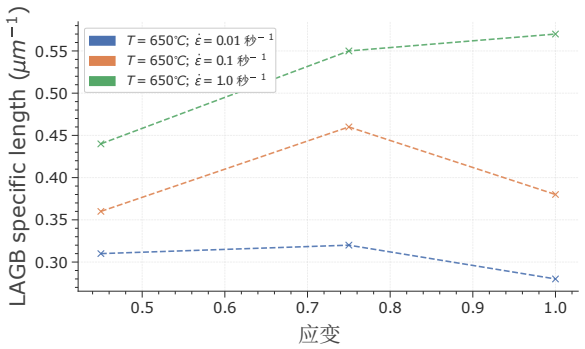
3.1.1 热机械条件对连续再结晶和后动态再结晶的影响

$\overline{ECD}_{rx}$ 和再结晶分数随保温时间的变化曲线如图7所示，其中比较了不同热变形条件的影响。从图7a可以看出，降低最终应变或应变速率会导致后续等温保温过程中的再结晶动力学显著减缓。图7b表明，将应变水平从1.0降低至0.45，并不会改变再结晶晶粒长大动力学。另一方面，将应变速率从 $1.0\ s^{-1}$ 降低至 $0.1\ s^{-1}$ 会显著减缓这一动力学过程。

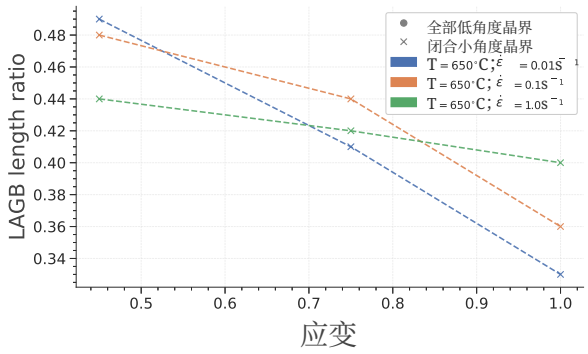
为完成这一观察，图8绘出了晶粒平均GND密度分布。从图8a可以观察到，随着应变速率增加，晶粒平均GND密度分布向较高值偏移。另一方面，最终应变增大似乎会使平均位错密度较低的晶粒数量增加。

这些结果证实了以下假设：

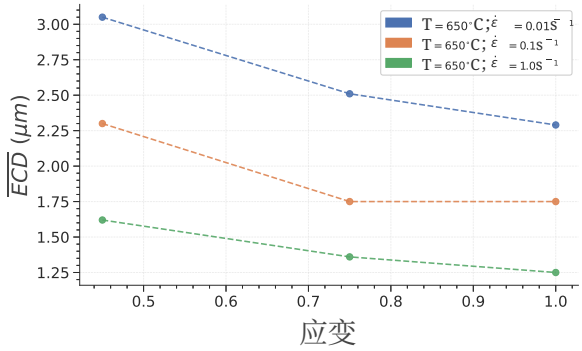
- 应变速率的增加会导致变形储能增加，并增强再结晶晶粒生长的驱动力。因此，平均再结晶晶粒尺寸和后动态再结晶动力学均随应变速率的增加而增大。



(a) 低角度晶界比长度与应变的关系。



(b) 低角度晶界长度比与应变的关系。



(c) $\overline{ECD}$ 随应变的变化。

图5：演变　　在 $T = 650°C$ 下热变形过程中显微组织拓扑的等轴显微组织**等轴显微组织**微观组织　　.

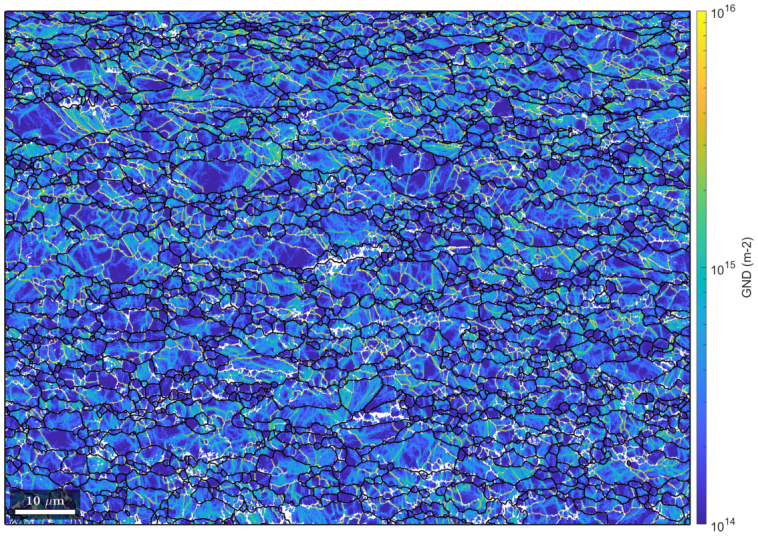
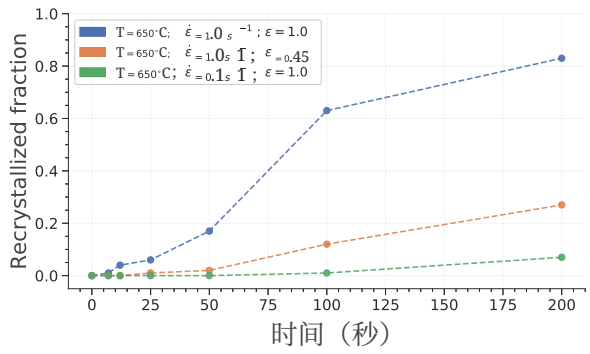
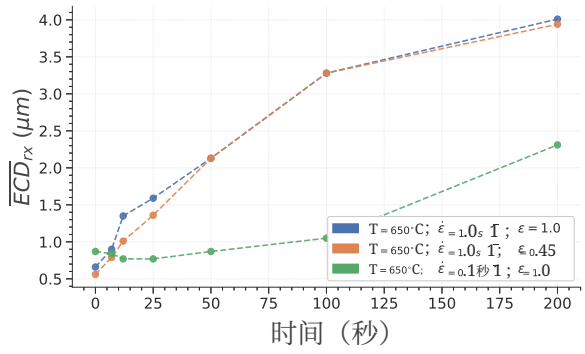


图6：GND密度图。**等轴显微组织** 初始微观组织。热变形条件为 $T = 650°C$；　$\dot{\varepsilon}$ =0.01 s^{-1}；　$\varepsilon = 1.0$。

- 应变增加会使具有储存能优势的晶粒数量增多。因此，再结晶动力学随变形程度的提高而加快，但再结晶晶粒的平均尺寸并不会增大。

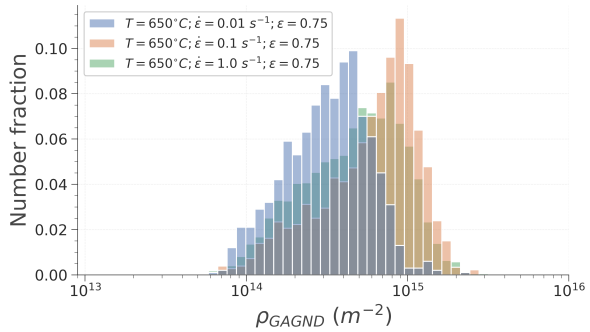


(a) 再结晶分数随时间的变化。

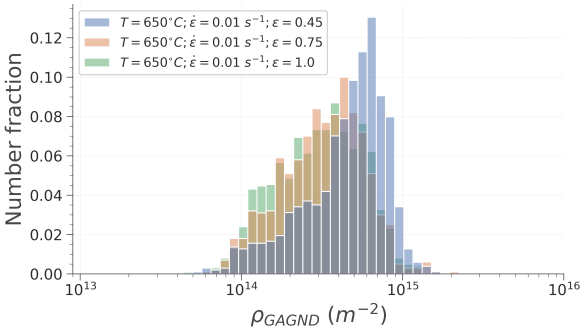


(b) $\overline{ECD}_{rx}$ 随时间的变化。

图7：在 $T = 650°C$ 下保温期间，与再结晶相关的性能演变。**等轴显微组织** 样品。



(a) $\varepsilon = 0.75$。



(b) $\dot{\varepsilon} = 0.01\ s^{-1}$。

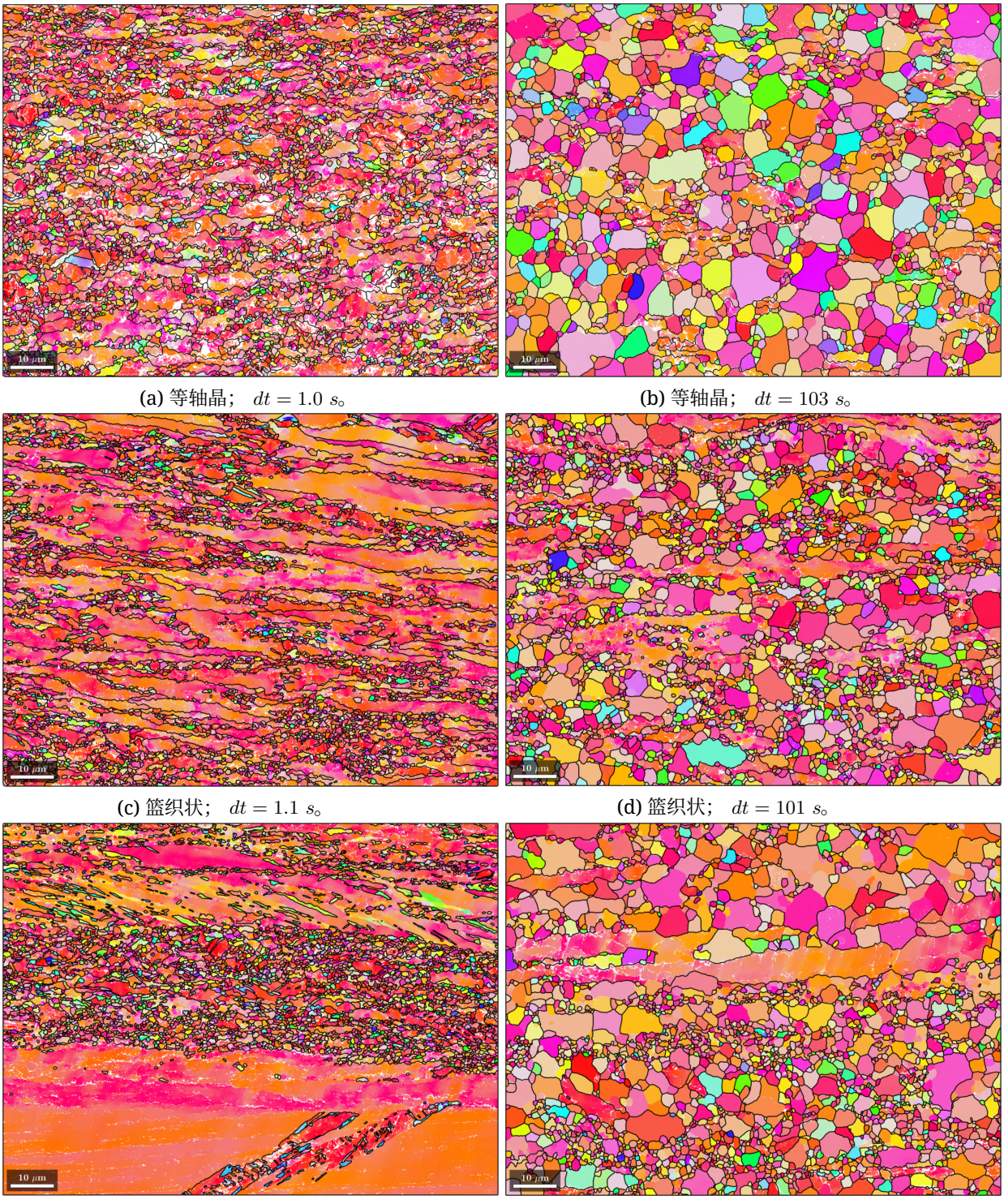
图8：晶粒平均GND密度数目分布。

3.1.2 初始微观组织对连续再结晶和后动态再结晶的影响

图9展示了六幅取向图。它们分别对应热变形后以及在 $650°C$下100 s 后的样品。可以注意到，变形后立即观察时，微观组织在观察尺度上呈现出不同程度的非均匀性。初始平行板条微观组织似乎表现出比初始篮织状微观组织更高程度的非均匀性，而后者的非均匀性又高于初始等轴晶微观组织。这一特征在后续热处理后似乎仍得以保留。附录A中提供的更大观察区域的电子背散射衍射图（图16）证实了这一点。

提出了一种假设来解释初始微观组织对再结晶的影响。该假设认为，在CDRX和PDRX过程中观察到的不均匀性是由变形不均匀性引起的，而这些变形不均匀性受到初始织构、晶粒形貌和晶粒尺寸的影响。**等轴显微组织** 样品具有较强的织构，且大多数晶粒的初始 <c> 轴与压缩方向垂直。由于初始晶粒取向的分散程度较低，大多数晶粒的变形行为较为相似，因此变形不协调性较弱。另一方面，在层片状微观组织中，不存在初始织构。晶粒的初始取向按照变体选择规则分布于取向空间中。因此，晶粒更容易产生不同的变形行为，从而在晶界附近产生变形不协调性。因此，晶界附近具有较高的GND密度，并成为再结晶晶粒形成和长大的优先位置。因此，层片状微观组织表现出更加不均匀的再结晶行为。

在篮织状显微组织（**BW** ）和**平行板状显微组织（PP** ）样品之间，非均匀程度也存在较大差异。在**篮织状显微组织（BW** ）微观组织中，大多数层片都与具有不同取向的层片相接触。由于层片厚度较小，变形不协调性几乎影响整个微观组织。在**平行板状显微组织（PP** ）微观组织中，只有位于原始β 晶界（GB）处的层片才与具有不同取向的层片相接触。因此，原始β 晶界（GB）周围的区域会受到变形不协调性的影响，而微观组织中的很大一部分则.....



(a) 等轴晶； $dt = 1.0\ s_{\circ}$

(b) 等轴晶； $dt = 103\ s_{\circ}$

(c) 篮织状； $dt = 1.1\ s_{\circ}$

(d) 篮织状； $dt = 101\ s_{\circ}$

(e) 平行板； $dt = 0.7\ s_{\circ}$

(f) 平行板； $dt = 100\ s_{\circ}$

图9：具有不同初始微观组织的样品的EBSD取向图。

不会受到这种影响。因此，形成和生长再结晶晶粒的优先区域更少，而且对于**平行板状显微组织** 微观组织，再结晶的非均匀性甚至更强。

3.2 连续动态再结晶和后动态再结晶的建模

与力学行为相关的模型参数取自文献。晶界迁移率参数通过拟合热处理完全再结晶样品所得的实验结果以及相应的纯 GG LS 模拟结果确定，具体如 [27] 中针对镍基高温合金的详细描述。亚晶形成与演化的参数则根据 Gourdet [28] 的建议设定。

通过热压缩试验结果确定硬化与回复参数。利用 Yoshie-Lasraaoui-Jonas方程和 Taylor方程拟合热压缩试验的实验宏观应力-应变曲线，从而确定 K_1 和 K_2。然后，通过测量实验GAGND密度分布来设定 K_1 分布。这基于 Yoshie-Lasraaoui-Jonas方程，该方程预测：$\rho_{sat} = K_1/K_2$。因此，如果所有晶粒都达到其饱和GND密度值，则 K_1 分布等于 ρ_{sat} 分布乘以因子 K_2。当然，只有在所有晶粒都达到其饱和GND密度时，这种推理才成立。由于在不同应变水平下的所有图谱中均未观察到平均GND密度增加，因此可以认为这一假设成立。

本研究所用的数值见表2（附录B）。

实验数据被纳入所考虑的有限元水平集策略中，并在此考虑按晶粒计算的平均位错场。开展了六组具有不同初始微观组织和热机械条件的模拟案例：

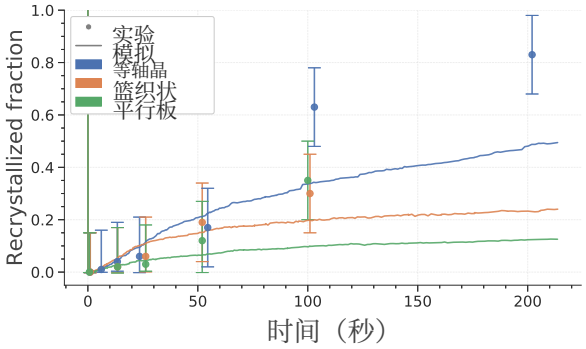
- **等轴显微组织** 初始微观组织，$T = 650_{\circ}C$；$\dot{\varepsilon} = 1.0\ s^{-1}$；$\varepsilon = 1.0$；$dt = 200\ s$，
- **等轴显微组织** 初始微观组织，$T = 650_{\circ}C$；$\dot{\varepsilon} = 0.1\ s^{-1}$；$\varepsilon = 1.0$；$dt = 200\ s$，
- **等轴显微组织** 初始微观组织，$T = 650_{\circ}C$；$\dot{\varepsilon} = 1.0\ s^{-1}$；$\varepsilon = 0.45$；$dt = 200\ s$，
- **篮织状显微组织** 初始微观组织，$T = 650_{\circ}C$；$\dot{\varepsilon} = 1.0\ s^{-1}$；$\varepsilon = 1.2$；$dt = 200\ s$，
- **平行板状显微组织**初始微观组织，$T = 650_{\circ}C$；$\dot{\varepsilon} = 1.0\ s^{-1}$；$\varepsilon = 1.2$；$dt = 200\ s$.

三种不同初始微观组织在25和 $100\ s$ 后的实验微观组织和数字化微观组织如图10所示。附加结果见附录C。

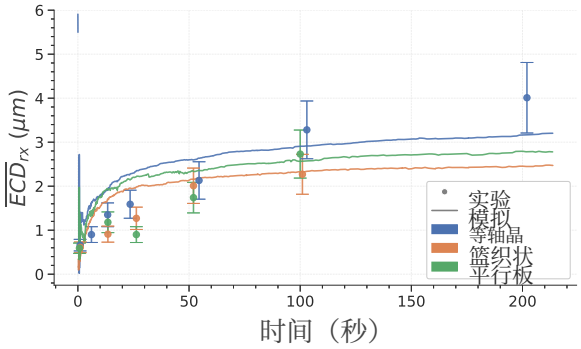
从图10中可以得出若干定性观察：

- 实验与数字化微观组织之间的定性对应关系令人满意。该模型能够再现再结晶晶粒形成和长大的优先区域，这一点值得关注。此外，该模型还捕捉到了因初始微观组织不同而呈现的不同程度的非均匀性。
- 该模型低估了较短保温时间下的GND密度，
- 小晶粒的数量似乎被低估了。在实验中，大量小晶粒一直保留到 $100\ s$ at $650_{\circ}C$。而在模拟中并未观察到这一现象，这些小晶粒往往会逐渐收缩并消失。

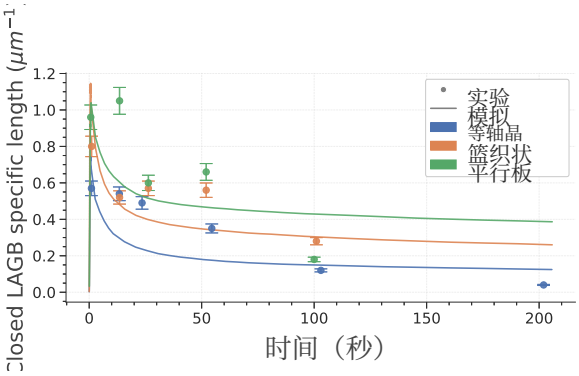
图11和图12绘制了再结晶分数、平均再结晶晶粒尺寸和低角度晶界特征长度随保温时间的变化曲线。



(a) 再结晶分数。



(b) 平均再结晶晶粒等效圆直径。



(c) 小角度晶界比长度。

图11：再结晶分数、平均再结晶晶粒尺寸和小角度晶界比长度随保温时间的演变。考虑了三种不同的初始微观组织：**等轴显微组织**、**篮织状显微组织** 和**平行板状显微组织**。热变形条件为 $T = 650°C$； $\dot{\varepsilon} = 1.0\ s^{-1}$； $\varepsilon = 1.0 - 1.2$。

这些结果证实，该模型对再结晶分数和平均再结晶晶粒尺寸的预测令人满意。但必须指出，模型仍存在一些偏差。在以下相应条件下，模型显著低估了再结晶分数，并高估了平均再结晶晶粒尺寸： $T = 650°C$; $\dot{\varepsilon} = 1.0\ s^{-1}$； $\varepsilon = 1.0$ and $T = 650°C$; $\dot{\varepsilon} = 0.1\ s^{-1}$； $\varepsilon = 1.0$ （**等轴显微组织**）。最后，模型高估了后动态再结晶阶段初期小角度晶界比长度的下降幅度，这与小晶粒和亚晶收缩的观察结果一致。

图13通过同时展示晶粒等效圆直径和晶粒平均GND密度分布，提供了新的见解。从图中可以清楚看出，模拟结果对这两种分布的离散程度都明显低估了。模拟尤其未能反映少数具有较低几何必需位错值的亚晶和晶粒的长大，以及大型变形晶粒的持续存在。

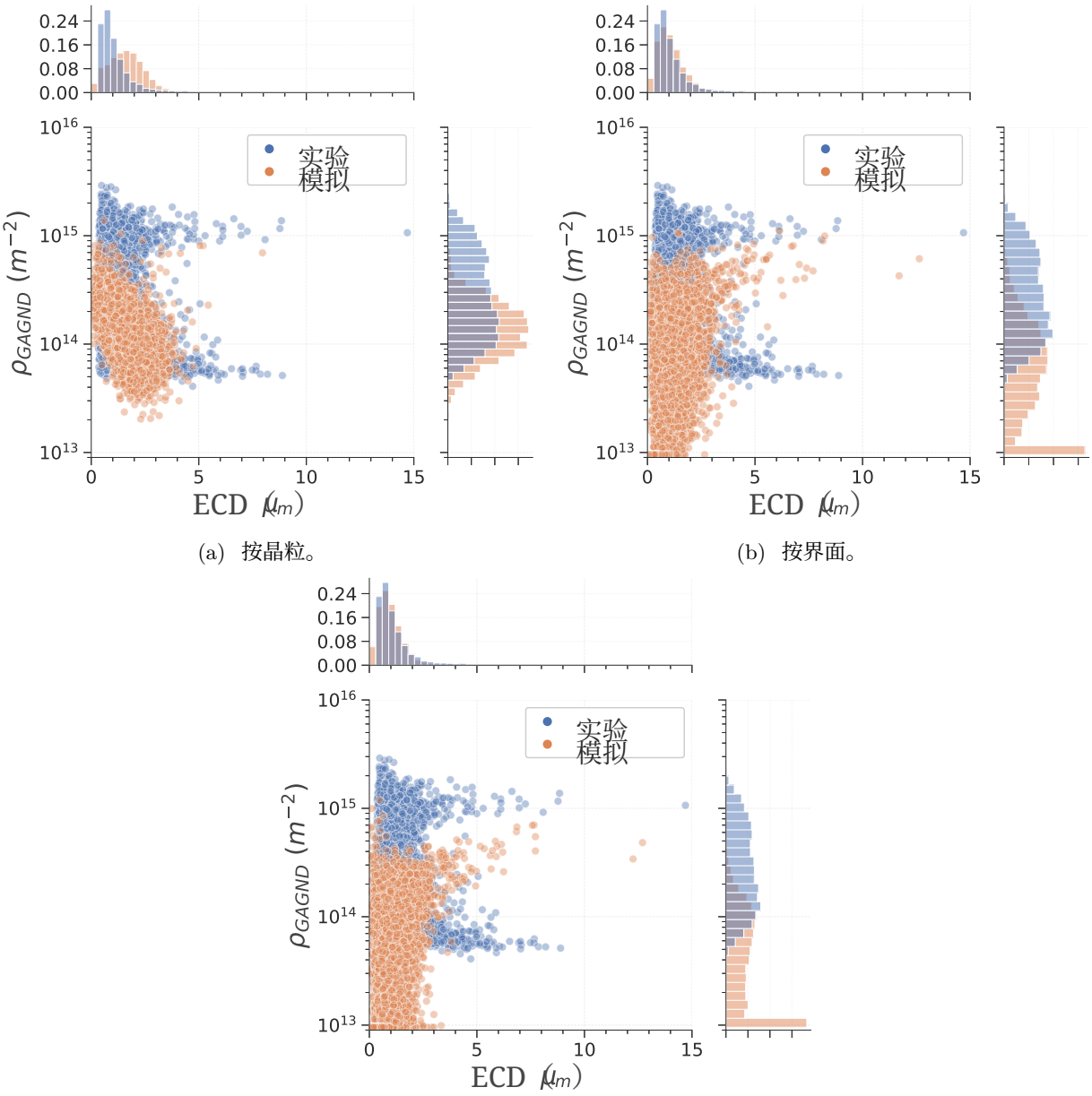
不同的建模假设可能解释实验结果与模拟结果之间的差异。最有可能的原因与晶界性质各向异性，以及将GND密度定义为亚晶或晶粒内部均匀变量有关。鉴于在后动态再结晶过程中并未观察到任何特定织构组分的形成，因此优先对第二种假设开展专门研究。

3.2.1 在后动态再结晶模拟中考虑晶粒内能量梯度

本研究所采用的变形模型无法预测晶粒内非均匀性的形成。因此，为了评估这类特征的影响，本文提出仅对后动态再结晶阶段进行模拟。在此情况下，变形后的初始微观组织通过EBSD数据进行初始化。这使得能够定义具有晶粒内几何必需位错非均匀性的初始变形微观组织。

针对第 2.2.2 节中介绍的五种配置，在以下条件下进行模拟：**篮织状显微组织**初始微观组织， $T = 650°C$； $\dot{\varepsilon} = 1.0\ s^{-1}$； $\varepsilon = 1.2$； $dt = 200\ s$。
图14展示了再结晶分数随保温时间的变化。附录C中的图17展示了经过 $100\ s$ 热处理后的五种数字微观组织。图14指出，考虑晶粒内非均匀几何必需位错密度的四种公式预测的再结晶动力学较慢，这与实验结果一致。另一方面，图17证实，所有四种公式预测的局部微观组织拓扑结构各不相同。正如预期，考虑局部几何必需位错密度差异会显著增加界面曲折度，尤其是在模拟初期。图18展示了该现象在一个小区域内的放大图。这甚至可能导致新晶粒的形成。这种现象与应变诱导晶界迁移（SIBM）机制有许多相似之处。

图15展示了 $100\ s$ 后三种配方的实验与模拟相结合的散点图。



(a) 按晶粒。

(b) 按界面。

(c) 局部。

图15：散点图展示了三种采用不同驱动力计算公式的模拟中，晶粒等效圆直径和晶粒平均GND密度分布。边缘数量分布。**篮织状显微组织** 初始微观组织。热变形条件为 $T = 650°C$； $\dot{\varepsilon} = 1.0\ s^{-1}$； $\varepsilon = 1.0-1.2$； $dt = 100\ s$。

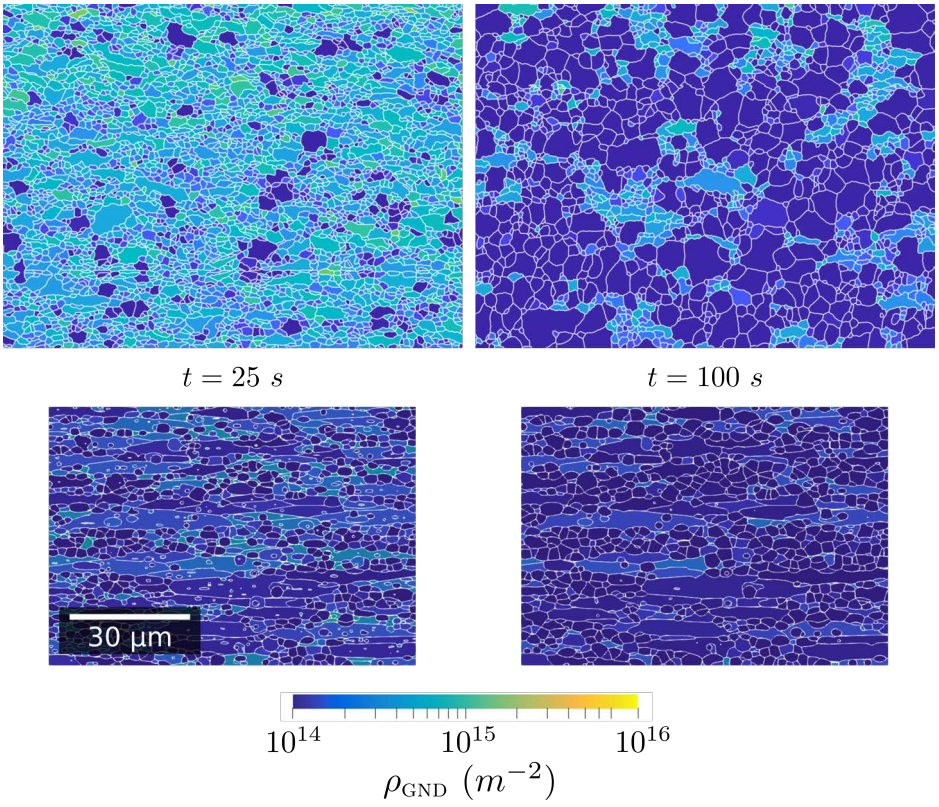
这些结果表明，局部或按界面数值表述所预测的晶粒尺寸分布和晶粒平均GND密度分布存在显著差异。这些数值表述能够更好地再现GND密度分布和晶粒尺寸分布，从而在更大程度上捕捉此类微观组织的多样性。在较长的保温时间内，具有高GND密度的大晶粒以及GND密度分布范围较宽的小晶粒仍得以保留。然而，这些数值表述仍无法预测两个主要特征。低位错密度的大晶粒数量仍被低估。这一点可从附录中给出的图17观察到。与此同时，平均GND密度较低的晶粒数量则被严重高估。

4 结论

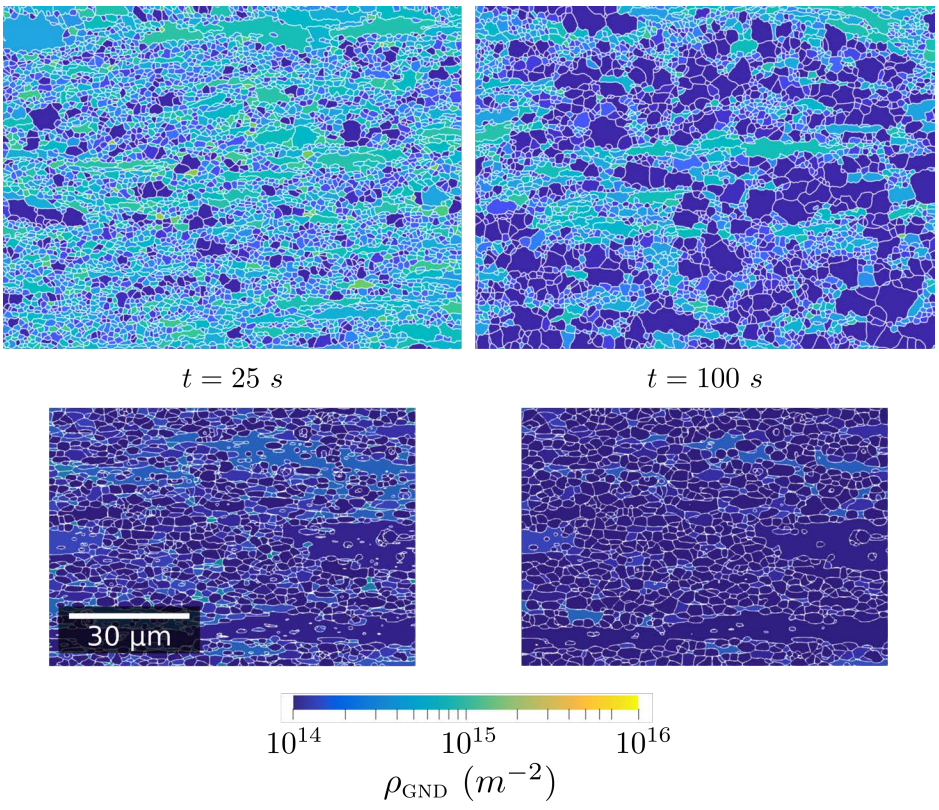
研究人员利用实验数据和模拟工具研究了Zircaloy-4合金的动态再结晶和后动态再结晶。具有三种初始微观组织（等轴晶、篮织状或平行板状显微组织）的样品在不同热机械条件下进行了热变形。电子背散射衍射结果证实：

- Zircaloy-4合金的再结晶具有大量低角度晶界的特征，这些晶界在整个微观组织中逐渐形成。晶粒逐步破碎；随着应变增加，大量小晶粒和亚晶形成。
- 热变形后，再结晶分数几乎始终为零。事实上，无法辨别出具有较低内能的显著比例晶粒。
- 最终应变或应变速率的增加所导致的后动态再结晶动力学增强，分别可归因于低位错密度晶粒数量的增加或位错密度的提高。
- 初始微观组织对再结晶有显著影响。研究表明，所考虑的三种初始微观组织的非均匀程度各不相同。可按非均匀程度递增顺序将这三种典型微观组织排列如下：**平行板状显微组织** > **篮织状显微组织** > **等轴显微组织**。

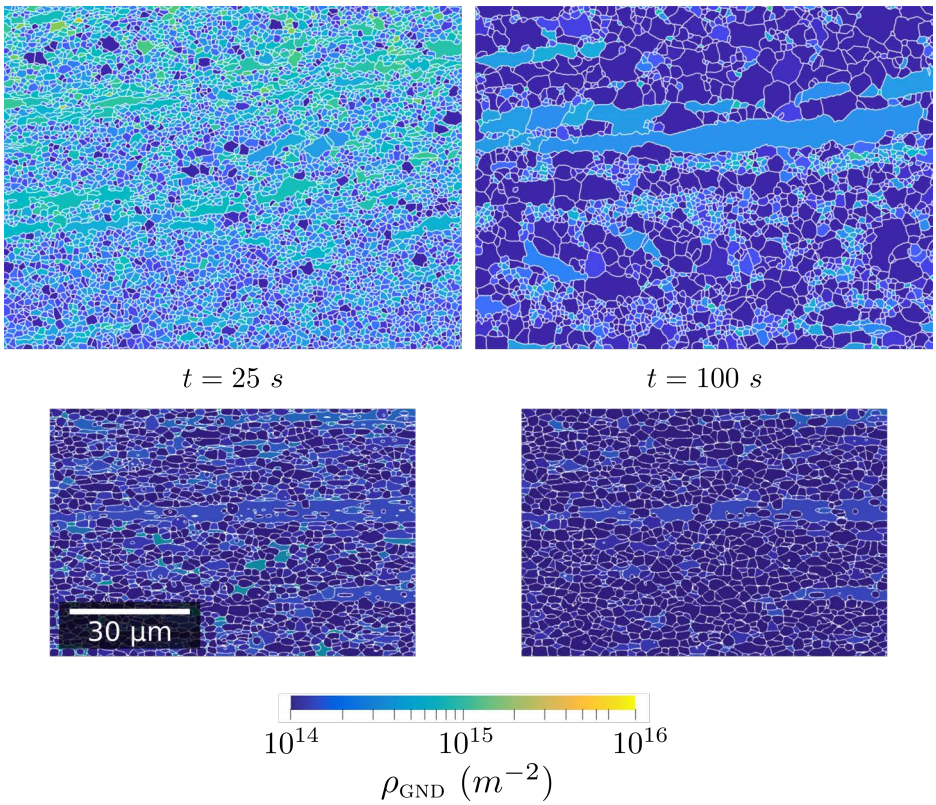
近期扩展的 LS 模型已用于模拟不同热机械条件和初始微观组织下的连续动态再结晶和后动态再结晶。结果表明，该模型能够很好地捕捉初始微观组织对再结晶的影响，并能够预测在后续热处理过程中大型变形晶粒的持续存在。最后，考虑晶粒内非均匀几何必要位错密度场的后动态再结晶补充模拟揭示了若干模拟假设的影响。结果证实，晶粒内非均匀性对形成较宽的晶粒尺寸分布起着重要作用。同时，这些结果也引发了两个问题：应选择何种恰当的数值 formulation，才能正确考虑高储存能梯度对后动态再结晶过程中晶界迁移的影响；以及如何在连续动态再结晶过程中预测这些梯度，同时避免采用晶体塑性有限元 formulation 等计算成本较高的方法。三维模拟以及将研究扩展至其他锆合金，也是本研究的后续方向。


$t = 25\ s$
$t = 100\ s$
30 μm
10^{14}
10^{15}
10^{16}
$\rho_{\mathrm{GND}}\ (m^{-2})$

(a) 等轴晶。

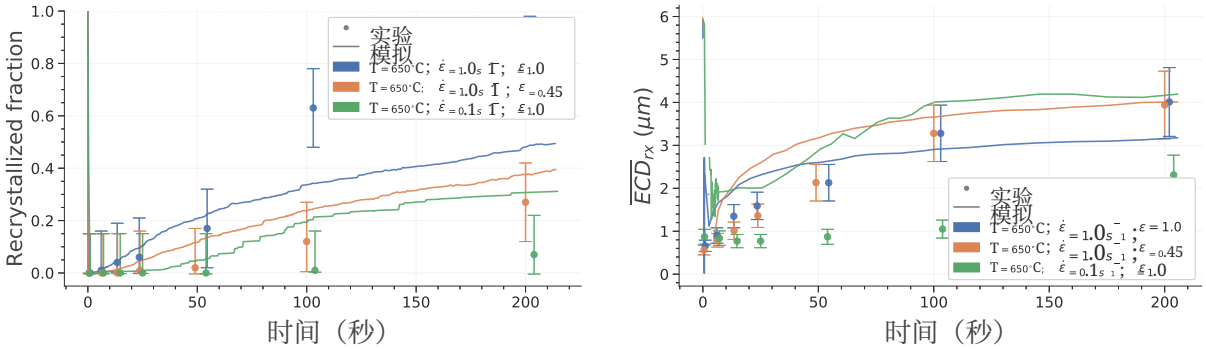

$t = 25\ s$
$t = 100\ s$
30 μm
10^{14}
10^{15}
10^{16}
$\rho_{\mathrm{GND}}\ (m^{-2})$

(b) 篮织状。



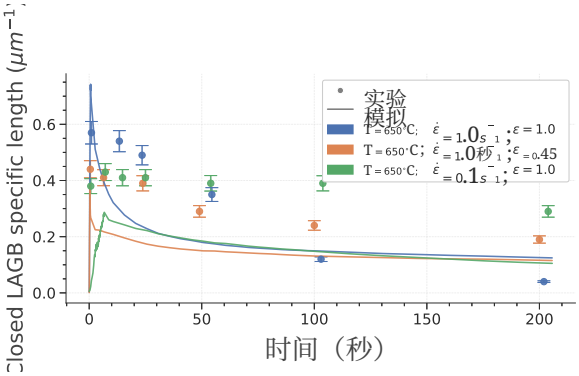
(c) 平行板。

图10：实验（上）和模拟（下）中几何必需位错密度图的快照，分别对应（a）**等轴显微组织** 情况、（b）**篮织状显微组织** 情况和（c）**平行板状显微组织** 情况。热变形条件为 $T = 650°C$； $\dot{\varepsilon} = 1.0\ s^{-1}$； $\varepsilon = 1.0 - 1.2$。



(a) 再结晶分数

(b) 平均再结晶晶粒等效圆直径。



(c) 小角度晶界比长度。

图 12：再结晶分数、平均再结晶晶粒尺寸及小角度晶界比长度随保温时间的演变。**等轴显微组织** 样品。

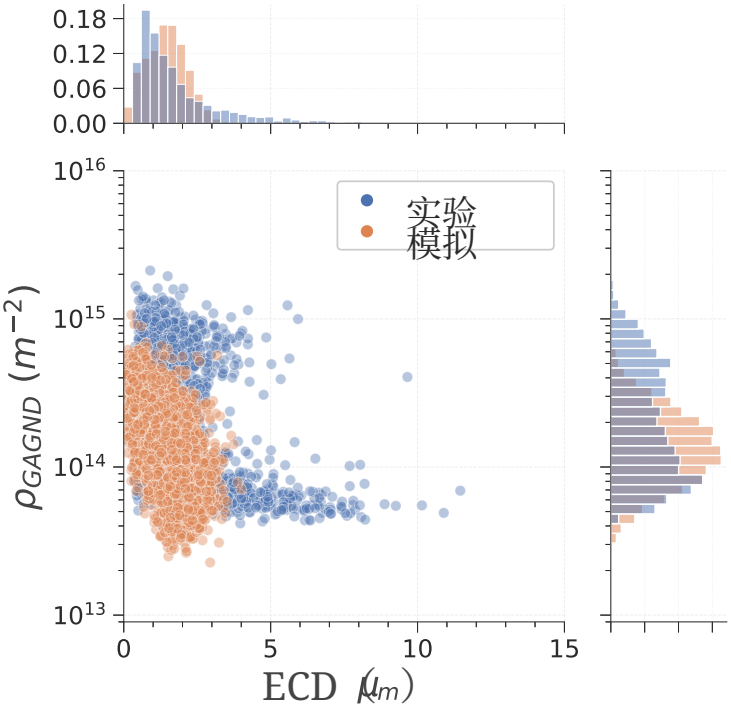


图13：展示晶粒等效圆直径和晶粒平均GND密度分布的散点图。边缘数量分布。**等轴显微组织** 初始微观组织。热变形条件为 $T = 650°C$; $\dot{\varepsilon} = 1.0\ s^{-1}$; ε =1.0; $dt = 100\ s$。

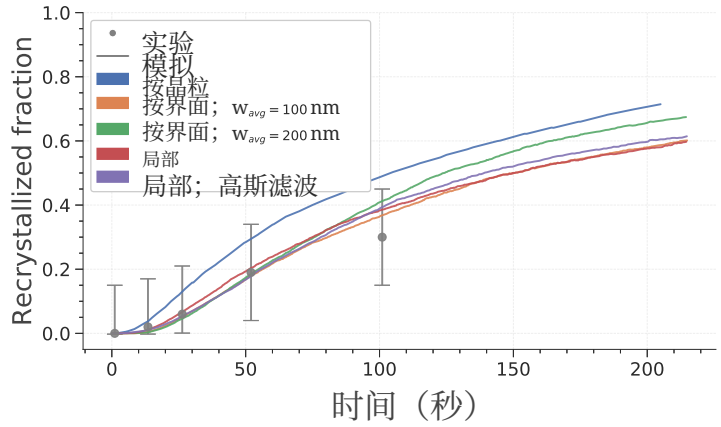
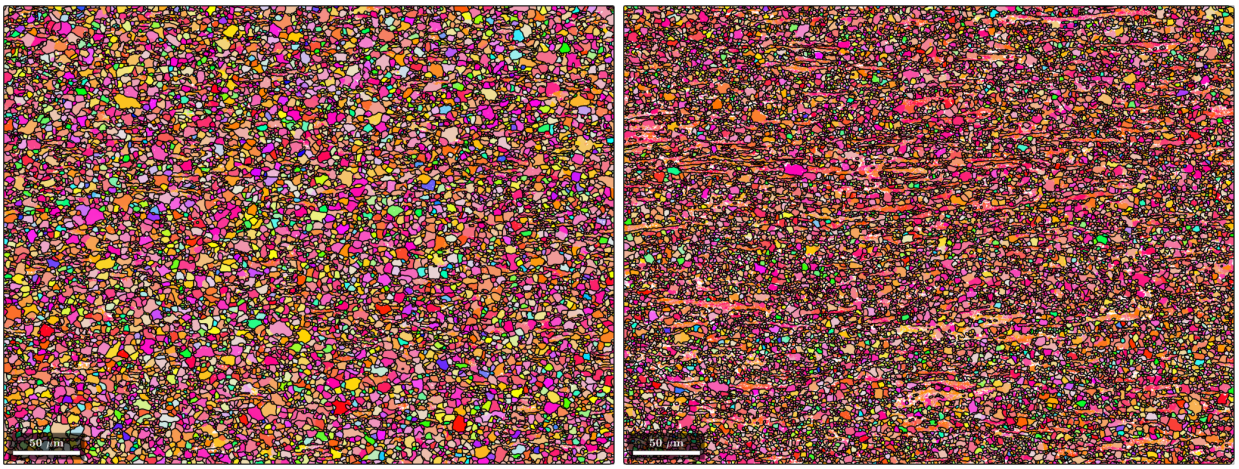


图14：五种不同配方的再结晶分数随保温时间的演变。**篮织状显微组织**初始微观组织。热变形条件为 $T = 650°C$; $\dot{\varepsilon} = 1.0\ s^{-1}$; $\varepsilon = 1.2$。

A 补充EBSD取向图

图 16 展示了在以下条件下变形的样品的取向图： $T = 650°C$； $\dot{\varepsilon}$ =1.0 s^{-1}； $\varepsilon = 1.0 - 1.2$ 并在 $650°C$ 下保温 100 s。



(a) 等轴晶。 (b) 篮织状。



(c) 平行板。

图 16：不同初始微观组织的 EBSD取向图（$T = 650°C$； $\dot{\varepsilon} = 1.0\ s^{-1}$； ε =1.0 − 1.2； $dt = 100\ s$）。IPF Y颜色编码。

B 模型参数

	参数	符号	值
晶界	迁移率前因子	M_0	$1.35 \times 10^{-7}\ m^4 \cdot J^{-1} \cdot s^{-1}$
	迁移活化能	Q_m	$134000\ J \cdot mol^{-1}$
	大角度晶界能	γ_{max}	$0.22\ J \cdot m^{-2}$ [29]
力学行为	Burgers矢量	b	3.23 埃 [30]
	再结晶前沿后的位错密度	ρ_0	$1 \times 10^{13}\ m^{-2}$
	剪切模量	μ	$42.52 - 0.022 \times T(K)\ \ GPa$ [31]
	泰勒因子	M_{T}	2.3 [30, 32]
	几何因子	α_{T}	0.2 [33]
硬化与回复	硬化系数	K_0^1	$1.6 \times 10^{14}\ m^{-2}$
		m^h	0.14
		Q_h	$1.71 \times 10^5\ J \cdot mol^{-1}$
	硬化系数	K_0^2	712
		Q_r	$3.42 \times 10^5\ J \cdot mol^{-1}$
		m^r	0.11
	屈服应力系数	σ_0^i	$-17.8\ MPa$
		σ_0^s	$2.86\ MPa$
亚晶形成	晶粒参考直径 (μm)	D_0	1.0
	最小亚晶取向差 (○)	θ_0	1.0
	固定系数	m	2
	低角度晶界位错组数	η	2

表2：模型参数的定义。

C 附加模拟结果

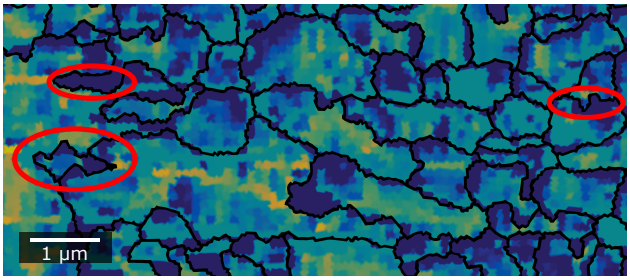
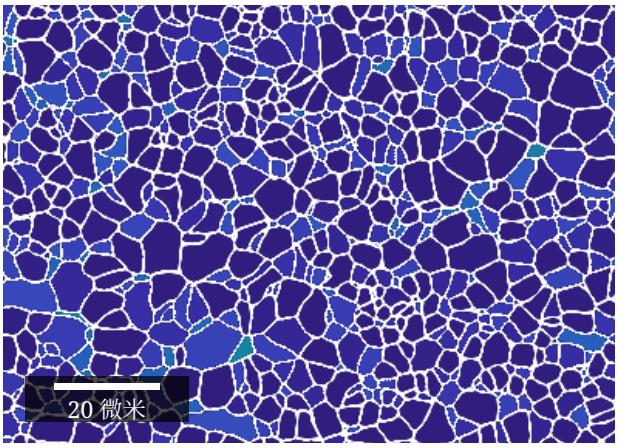
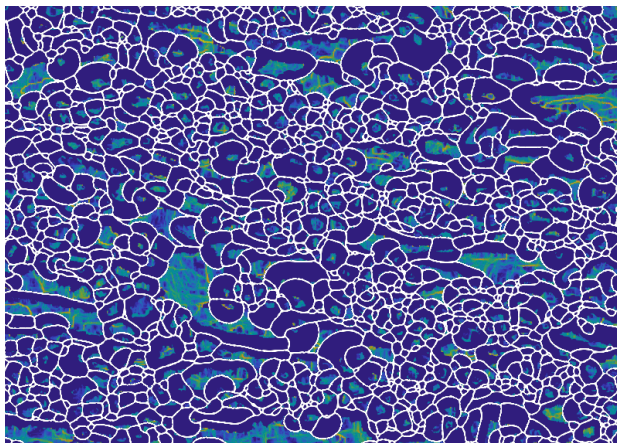


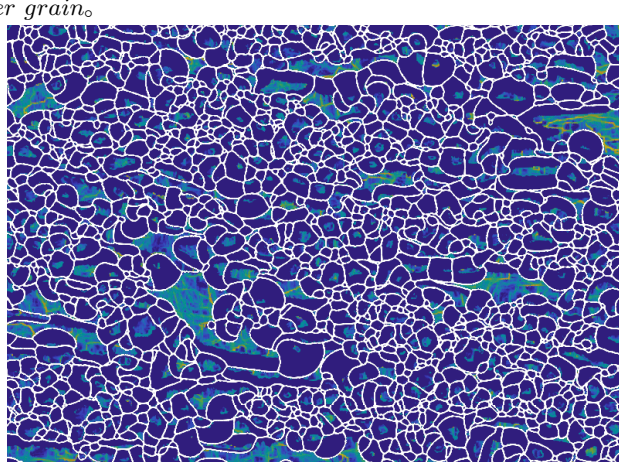
图18：在 $650°C$热处理 $5\ s$ 后，使用未经预处理操作的局部公式预测得到的几何必要位错图。红圈标出了几处非常曲折的晶界。



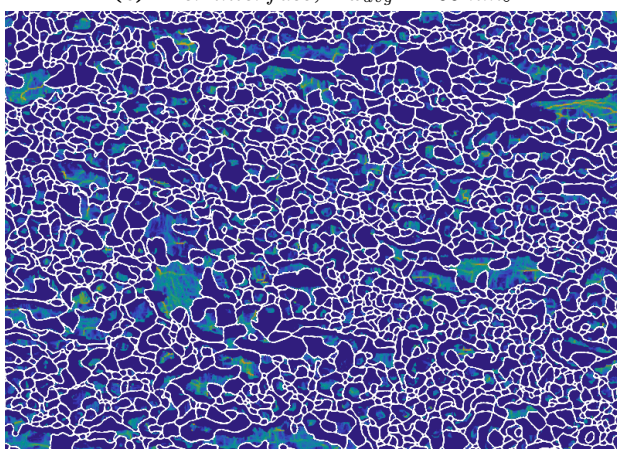
(a) $Per\ grain$。



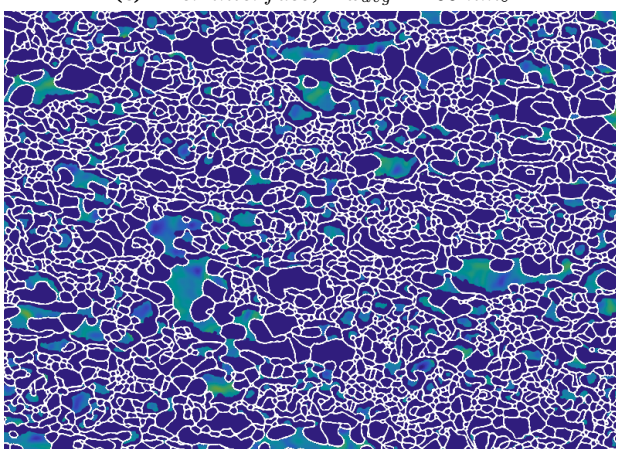
(b) $Per\ interface$; $w_{avg} = 100\ nm$。



(c) $Per\ interface$; $w_{avg} = 200\ nm$。



(d) $Local$。



(e) $Local$; $Gaussian\ filtered$。

图17: 几何必要位错密 度图，来自考虑晶内非均匀几何必要位错密度场的模拟结果。**微织织显微组织**(初始显 $\dot{\varepsilon} = 1.0\ s^{-1}$; $\varepsilon = 1.2$; $dt = 100\ s$) 。

参考文献

[1] A. Rollett、G. S. Rohrer 和 J. Humphreys。《再结晶及相关退火现象》。Elsevier，第三版，2017 年。[2] C. Chauvy、P. Barberis 和 F. Montheillet。上 α温度范围内经 β处理的层片状 Zircaloy-4合金在温加工过程中的微观组织转变。《材料科学与工程：A》，431(1):59–67，2006 年。[3] N. Vanderesse。《锆合金和钛合金中层片状微观组织的形貌及热变形》。博士论文，圣艾蒂安矿业学院，2008 年。[4] B. Gaudout。《锆合金热挤压过程中微观组织演变的建模及固体薄膜润滑研究》。博士论文，巴黎高等矿业学院，2009 年。[5] Y. Ben Ammar。《淬火-β状态下 Zircaloy-4合金平行层片群的热机械处理》。博士论文，圣艾蒂安矿业学院，2012 年。[6] B. Merriman、J. K. Bence 和 S. J. Osher。多重交汇点的运动：一种水平集方法。《计算物理学杂志》，112(2):334–363，1994 年。[7] M. Bernacki、Y. Chastel、T. Coupez 和 R. E. Logé。用于多晶材料初次再结晶数值建模的水平集框架。《Scripta Materialia》，58(12):1129–1132，2008 年。[8] F. Bachmann、R. Hielscher 和 H. Schaeben。基于二维和三维电子背散射衍射数据的晶粒识别——MTEX算法规范。《超显微学》，111(12):1720–1733，2011 年。[9] R. Hielscher、C. B. Silbermann、E. Schmidl 和 Joern Ihlemann。晶体取向图的去噪。《应用晶体学杂志》，52(5):984–996，2019 年。[10] W. Pantleon。通过常规电子背散射衍射解析几何必需位错含量。《Scripta Materialia》，58(11):994–997，2008 年。[11] M. Bernacki、R. E. Logé 和 T. Coupez。用于多晶材料再结晶和晶粒生长有限元建模的水平集框架。《Scripta Materialia》，64(6):525–528，2011 年。[12] M. Shakoor、B. Scholtes、P.-O. Bouchard 和 M. Bernacki。一种高效的并行水平集重新初始化方法：在微观力学和微观组织演变中的应用。《应用数学建模》，39(23):7291–7302，2015 年。[13] J. Fausty、N. Bozzolo 和 M. Bernacki。具有非均匀晶界能的二维水平集有限元晶粒粗化研究。《应用数学建模》，78:505–518，2020 年。[14] B. Murgas、S. Florez、N. Bozzolo、J. Fausty 和 M. Bernacki。用于各向异性晶粒生长建模的不同水平集公式的比较研究及其局限性。《Materials》，14(14)，2021 年。[15] B. Scholtes、M. Shakoor、A. Settefrati、P.-O. Bouchard、N. Bozzolo 和 M. Bernacki。利用水平集方法对微观组织演变进行全场建模的新型有限元开发。《计算材料科学》，109:388–398，2015 年。[16] L. Maire、B. Scholtes、C. Moussa、N. Bozzolo、D. Pino Muñoz、A. Settefrati 和 M. Bernacki。通过将全场方法与唯象定律耦合，对动态再结晶和后动态再结晶进行建模。《材料与设计》，133:498–519，2017 年。[17] V. Grand、B. Flipon、A. Gaillac 和 M. Bernacki。利用水平集方法模拟连续动态再结晶。《Materials》，15(23)，2022 年。[18] S. Gourdet 和 F. Montheillet。连续动态再结晶模型。《Acta Materialia》，51(9):2685–2699，2003 年。[19] A. Laasraoui 和 J. J. Jonas。高温和高应变速率下钢流动应力的预测。《冶金学报 A》，22(7):1545–1558，1991 年。[20] W. T. Read 和 W. Shockley。晶体晶界的位错模型。《物理评论》，78:275–289，1950 年。[21] A. Agnoli、N. Bozzolo、R. Logé、J.-M. Franchet、J. Laigo 和 M. Bernacki。开发一种水平集方法，用于模拟真实第二相颗粒和储存能存在条件下的晶粒生长——在镍基高温合金中的应用。《计算材料科学》，89:233–241，2014 年。[22] A. Agnoli、M. Bernacki、R. Logé、J.-M. Franchet、J. Laigo 和 N. Bozzolo。Inconel 718中晶界钉扎的理解与建模，第 73–82 页。John Wiley & Sons, Ltd，2012 年。

[23] F. Villaret、B. Hary、Y. de Carlan、T. Baudin、R. Logé、L. Maire 和 M. Bernacki。用于模拟氧化物弥散强化钢再结晶的概率性与确定性全场方法。计算材料科学，179:109646，2020。[24] F. Montheillet、O. Lurdos 和 G. Damamme。一种用于稳态不连续动态再结晶建模的晶粒尺度方法。材料学报，57(5):1602–1612，2009。[25] J. J. Jonas、C. M. Sellars 和 W. J. McG. Tegart。热加工条件下的强度与组织。冶金评论，14(1):1–24，1969。[26] D.N. Ilin、N. Bozzolo、T. Toulorge 和 M. Bernacki。再结晶的全场建模：晶内应变梯度对晶界形貌和动力学的影响。计算材料科学，150:149–161，2018。[27] K. Alvarado、I. Janeiro、S. Florez、B. Flipon、J.-M. Franchet、D. Locq、C. Dumont、N. Bozzolo 和 M. Bernacki。三种镍基高温合金在固溶处理过程中的初生 γ' 析出相溶解与晶粒长大。金属，11(12)，2021。[28] S. Gourdet。《铝热变形过程中再结晶机制的研究》。博士论文，圣艾蒂安矿业学院，2017。[29] J.W.C. Dunlop、Y.J.M. Bréchet、L. Legras 和 H.S. Zurob。等温与非等温再结晶动力学建模：在 Zircaloy-4合金中的应用。核材料学报，366(1):178–186，2007。[30] J.W. Dunlop、Y.J.M. Bréchet、L. Legras 和 Y. Estrin。基于位错密度的 Zircaloy-4合金塑性变形建模。材料科学与工程：*A*，443(1):77–86，2007。[31] J.H. Moon、P.E. Cantonwine、K.R. Anderson、S. Karthikeyan 和 M.J. Mills。Zircaloy-4合金蠕变机制的表征与建模。核材料学报，353(3):177–189，2006。[32] J.H. Shen、Y.L. Li 和 Q. Wei。多晶金属泰勒因子的统计推导及其在纯镁中的应用。材料科学与工程：*A*，582:270–275，2013。[33] H. Mughrabi。单调、循环和准稳态变形条件下泰勒流动应力定律中的 α 因子：其对滑移模式、位错排列和位错密度的依赖性。固态与材料科学最新观点，20(6):411–420，2016。