

# 烧结过程中颗粒的平衡形态演变和颈部生长

牌君君,方斌

齐鲁工业大学

**摘要:** 通过 Surface Evolver 软件模拟陶瓷材料微观组织结构在三维空间下的理想烧结过程中的形态演化和颈部生长。依据 Kuczynski 的经典双球颗粒模型,通过模拟颗粒的边界运动尽量减小颗粒的边界能量,以获得最终的平衡构型。模拟结果表明:两个球形颗粒通过分享一个平坦的圆形界面形成键合,在烧结中形成一个能量稳定的粒子对;随着颗粒质心距离的减小,双球颗粒系统能量呈现先下降后增大的趋势;颈部生长明显,颗粒颈部尺寸随着模拟时间的演变规律满足线性关系。

**关键词:** 固相烧结;烧结颈;Surface Evolver;传质机理

**中图分类号:** TG711;TG113;TH140.7

**文献标志码:** A

## Equilibrium Morphology Evolution and Neck Growth of Particles during Sintering

Pai Junjun, Fang Bin

**Abstract:** The evolution of microstructure and neck growth of ceramic material particles during the sintering process in three dimensional space are simulated by Surface Evolver program. Based on the classical Kuczynski two-sphere model, the boundary motion of particles is simulated in order to reduce the particle boundary energy to obtain the final equilibrium configuration. The simulation results show that two spherical particles form a bond by sharing a flat interface and an energy stable particle pair are formed in the sintering process. With the decrease of the distance of the center of mass, the energy of the double spherical particle system decrease first and then increase. Neck growth is significant and the evolution of particle neck size with the simulation time is linear.

**Keywords:** solid sintering; sintering neck; Surface Evolver; mass transfer mechanism

## 1 引言

陶瓷材料具有耐高温、硬度大、抗高温蠕变、化学性能稳定、热膨胀系数低、摩擦系数小等优点<sup>[1]</sup>,与传统硬质合金刀具相比,在高速切削和切削难加工材料领域有较多优势。

陶瓷材料经过初级制备后需要进行烧结处理,即颗粒经压制后在低于熔点的高温作用下,通过颗粒间的相互粘结作用和物质传递,气孔逐渐缩小圆化至消失,颗粒系统体积收缩,晶粒增大,致密度及强度提高,逐渐使其变成具有一定几何形状和硬度的块状整体。更确切地说,烧结是指在高温作用下,通过颗粒之间大量的物质传输,使之成为连贯坚实结构体的过程<sup>[2]</sup>。

粉末颗粒烧结过程的微观组织结构变化极其复杂,受到诸多因素的交互影响,如颗粒的粒径分布、密度及密度分布、晶体结构、加热方式和烧结氛围等。在建模和计算机模拟技术方面的最新进展有助

于定量预测陶瓷刀具材料的微观结构演化,并使控制产品最终的力学性能成为可能。在烧结过程中,材料的微观组织结构的空间演化涉及原子尺度、微观尺度、介观和宏观尺度。在原子尺度上,分子动力学模拟已被应用于研究纳米晶颗粒的烧结的早期阶段,例如苗竹等<sup>[3]</sup>通过分子动力学模拟两个 TiO<sub>2</sub> 纳米颗粒升温烧结过程中的结构演变和烧结颈生长。烧结的微观或颗粒尺度建模是原子尺度建模和宏观连续建模使用之间的中间数值模拟,如有元胞自动机法、相场法和蒙特卡洛法等<sup>[4-6]</sup>。然而,这些模拟研究方法存在各自的缺陷与不足,如相场模型理论复杂、蒙特卡洛模型效率较低等,且不能表征系统的表面积、颗粒质心距和颗粒间接触角等几何尺寸在烧结过程中发生的定量变化,更无法进一步确定烧结机理和传质机制。

虽然烧结过程材料的微观组织结构演化过程复杂,但通过使用一些粒子团簇可以基本上描述烧结的过程。本文通过使用 Brakke K.<sup>[7]</sup> 教授开发的 Surface Evolver 软件模拟两个半径为 1 的球形颗粒的理想烧结过程。在库津斯基模型<sup>[8]</sup>中,通过假设表面能和晶界能的各项同性,分析两个等球之间

基金项目: 山东省自然科学基金(ZR2013EEM021);山东省高等学校科技计划资助项目(J13LB03)  
收稿日期: 2017年5月

形成的边界,确定颗粒表面积、晶界面积、颗粒中心距等在烧结过程中的变化,从而进一步分析烧结机理和传质机制。

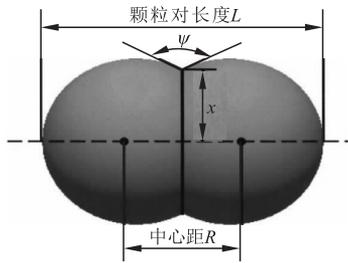


图1 三维双颗粒模型的几何尺寸

## 2 相关理论和仿真程序

### (1) 理论基础

从微观角度观察,烧结过程是通过颗粒表面运动和晶界运动来尽量减少表面能和界面能的总和的结果。这可以简单地被描述为一个致密化过程,即增加体积密度,减小孔隙体积。经热压烧结后,在陶瓷刀具材料的微观组织结构中,晶界形成复杂的三维网络结构,晶界边界向最大限度减小界面能的方向移动。不考虑杂质和其他障碍对晶界移动对的影响,晶界移动的法向速度  $v$  可表示为

$$v = M_{gb} F \quad (1)$$

式中,  $M_{gb}$  为晶界迁移率;  $F$  为驱动力,表示为

$$F = \gamma_{gb} \left( \frac{1}{r_1} + \frac{1}{r_2} \right) \quad (2)$$

式中,  $r_1$  和  $r_2$  为表面的两个主曲率;  $\gamma_{gb}$  是晶界的自由能。为便于计算,只考虑  $M_{gb}$  和  $\gamma_{gb}$  各向同性的情况。

### (2) 表面演化程序

Surface Evolver 程序用来计算最小能量粒子的平衡结构,它由表面能和晶界能确定。晶粒的边界和表面用该程序表示为一组三角形的有限元三角形或面。每个小的面由三个边和顶点组成,表面能量正比于它的面积。程序通过任何约束条件下的能量梯度下降法使表面朝着能量最小的方向演化,如液体表面的稳定性<sup>[9]</sup>、生物膜相变<sup>[10]</sup>、泡沫渗流<sup>[11]</sup>等。

假设表面能和晶界能各项同性,为简化计算,考虑体积固定的等径球形颗粒的理想烧结。平衡形态的能量  $E(R)$  由两颗粒质心的固定距离  $R$  决定,通过表面积分使用高斯散度定理计算颗粒质心的位置,有

$$\mathbf{r}_m = \frac{1}{V} \int_V \mathbf{r} dV = \frac{1}{V} \int_S \frac{r^2}{2} dS \quad (3)$$

式中,  $V$  表示一个颗粒的体积,当存在约束时, Surface Evolver 程序自动计算约束的拉格朗日乘子。对于体积固定的约束,拉格朗日乘子是压力。

通过引入无量纲时间来描述等径颗粒的理想烧结,  $t^* = \frac{\gamma_s M_s t}{r^2}$ , 其中,  $\gamma_s$  为晶粒表面自由能,  $M_s$  是晶面迁移率。

## 3 模拟结果与分析

### 3.1 粒子对的平衡构型

图1所示为质心距离为  $R$  的两个球形颗粒的平衡构型。其中,颗粒内部的黑点表示球形颗粒的质心。平衡形态下颈部的接触角  $\psi$  由下式可得<sup>[12]</sup>

$$\cos\left(\frac{\psi}{2}\right) = \frac{\gamma_{gb}}{2\gamma_s} \quad (4)$$

式中,  $\gamma_s$  为晶面能;  $\gamma_{gb}$  为晶界能。

当  $\gamma_{gb} < 2\gamma_s$  时,形成双球颗粒对消耗的能量,可根据下式计算

$$\Delta E(R) = E(R) - 2E_0 \quad (5)$$

式中,  $E_0 = 4\pi r^2 \gamma_s$ ,  $E_0$  为半径等于  $r$  的球形颗粒具有的能量。

形成双球颗粒对归一化减小的能量为

$$\Delta E^* = \Delta E / 2E_0 \quad (6)$$

式(6)随归一化距离  $R^* = R/r$  变化的函数关系如图2所示。

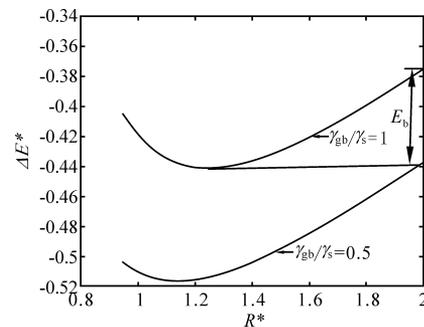


图2 双颗粒模型的能量随质心距离的演化

当  $R^* = 2$  时,两颗粒开始接触,在静电力、分子间作用力和电子作用力等力的共同作用下,固体颗粒表面形成颈部。通过对两粒子施加外力,颗粒从无约束平衡位置开始移动。

如图2所示,随着两颗粒质心归一化距离  $R^*$  的减小,粒子对的能量减少,颈部生长。然而在一定的距离下,能量开始再次提高,这是因为两个压缩粒子增加了系统的总表面积。

假设颗粒表面的曲率与所处位置无关,那么颗粒的平衡构型问题就转变为单纯的几何问题。两颗

粒开始接触形成烧结颈部后颗粒的半径变为  $r'$ , 有

$$r' = [2 + 3\cos(\psi/2) - \cos^3(\psi/2)]^{-1/3} r \quad (7)$$

颈部半径  $x_{\text{eq}}$  尺寸由下式得出, 为

$$x_{\text{eq}} = r' \sin(\psi/2) \quad (8)$$

颗粒对系统的总能量由颗粒表面积  $A_s$  和晶界面积  $A_{\text{gb}}$  的和决定, 有

$$E = 2\gamma_s A_s + \gamma_{\text{gb}} A_{\text{gb}} \quad (9)$$

式中,  $A_s = 2\pi r'^2 [\cos(\psi/2) + 1]$ ;  $A_{\text{gb}} = \pi$ 。

粒子对的平衡长度  $L_{\text{eq}}$  由下式求得

$$L_{\text{eq}}/r' = 2[1 + \cos(\psi/2)] \quad (10)$$

位于平衡位置  $R_{\text{eq}}^*$  的平衡构型的特征参数(粒子对长度  $L_{\text{eq}}$  和颈部半径  $x_{\text{eq}}$ ) 随着二面角角度值的变化情况见图 3。仿真结果与预测一致: 一对无约束粒子对的平衡形态, 两个等径球形颗粒分享平坦的圆盘边界, 即晶界。

两颗粒形成粒子对时的键合能  $E_b$  随  $\gamma_{\text{gb}}/\gamma_s$  比值的减小而降低, 函数关系如图 4 所示。当粒子移动分离时, 在  $R^* = 2$  粒子间的键没有被打破, 粒子对可以进一步生长。

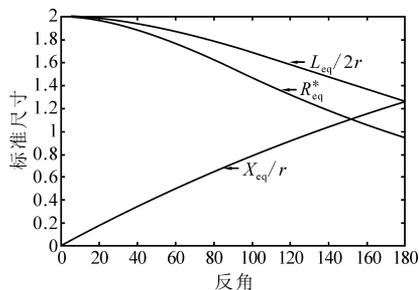


图 3 平衡位置随接触角的变化

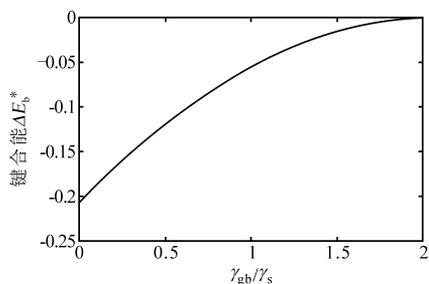


图 4 键能随  $\gamma_{\text{gb}}/\gamma_s$  值的变化 ( $\psi = 180^\circ$ )

### 3.2 烧结颈的生长与致密化

由图 2 可知, 粒子对在  $R_{\text{eq}}^* = 0.9449$  获得最终平衡构型。粒子对在理想烧结模拟过程中的部分形状演化如图 5 所示。在开始时,  $R^* = 2$  两个粒子的质心之间的距离是固定的。颗粒处于无约束的平衡位置, 通过施加外力, 迫使两个颗粒从无约束平衡位置开始移动。包括多重扩散路径在内的传质机制改变了粒子的位置和形状, 总表面能和晶界能决定着

传质的机制, W. D. Kingery 等<sup>[13]</sup> 将其划分为致密化传质(晶界扩散, 晶格扩散)和非致密化传质(表面扩散, 蒸发-凝结)。

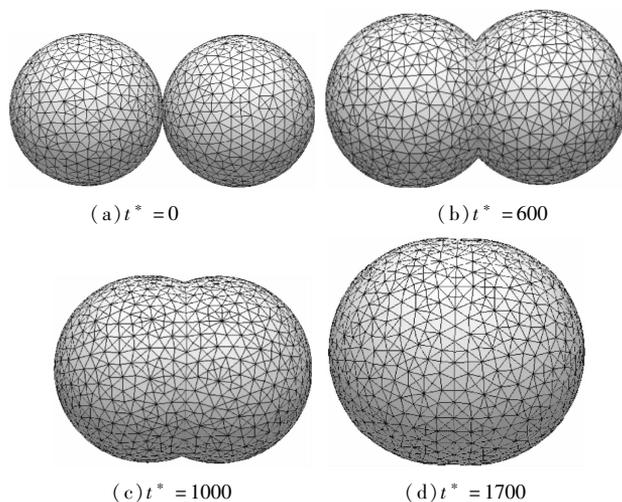


图 5 双颗粒模型随时间的演化

Kellett B. J. 等<sup>[14]</sup> 研究发现, 在线性排列的球形颗粒的烧结过程中, 物质的传输机制不影响其最终的平衡构型。随着烧结的进行, 在表面张力的驱动下, 物质通过表面扩散机制传输到颈部, 逐步形成烧结颈, 同时颗粒保持原有的形状不变。体积扩散或晶界扩散促使颗粒间的中心距减小, 导致致密化。尽管颗粒内部的晶格相对于晶界不发生运动, 但从颗粒内部扩散或经粘性流动至晶界处的空位不可能滞留在晶界处, 必须通过晶格扩散至颗粒外部, 同时物质流向颈部, 颗粒质心仍会移动, 相互靠近。此外, 表面扩散和蒸发凝结传质机制不会引起晶粒晶格相对于晶界的移动, 但由于传质粒子的质心同样朝着颈部移动, 在非致密化机制下, 经过长时间的质心移动, 两个无约束的颗粒也可能达到平衡形态。在烧结初期, 蒸发凝结和表面扩散传质机制只促进烧结颈部的生长, 并不引起颗粒对的收缩。

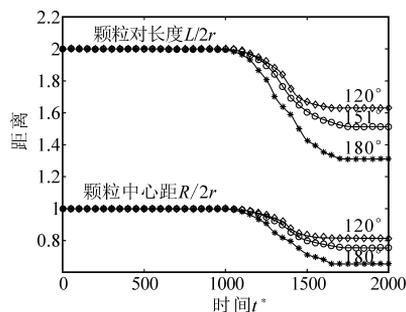


图 6 颗粒中心距离随时间的变化

图 6 为颗粒质心归一化距离  $R^* = R/2r$  随着模拟时间的变化情况。模拟烧结开始时, 颗粒间的中心距离未发生变化, 直到颈部半径增长至  $x/r = 0.4$ ,

即  $t^* = 1100$ 。质心之间的距离逐渐减小,直至达到最终平衡值。紧随颗粒间的中心距离减小之后,颗粒对长度开始减小。

根据 Kuczynski 双球模型为基础的理论推导的结果,可将任意扩散机制主导下的稳定颈部生长动力学方程归纳为

$$\left(\frac{x}{r}\right)^n = \frac{F(T)}{r^m} t^* \quad (11)$$

式中,  $x$  为颈部半径;  $r$  为球形颗粒初始直径;  $F(T)$  为与烧结温度有关的函数;  $t^*$  为烧结时间。

在烧结初期,一般认为颗粒的粒径近似不变,故将上式中的  $r$  视为常数。在模拟中,假设烧结过程中的烧结温度恒定,则烧结颈的尺寸应与烧结时间满足指数对数关系。对上式等号两侧取对数,得

$$n \cdot \log\left(\frac{x}{r}\right) = \log(t^*) + C \quad (12)$$

继续整理得到烧结时间与颈部尺寸对应的关系式为

$$\log\left(\frac{x}{r}\right) = \frac{1}{n} \log(t^*) + C' \quad (13)$$

式中,  $C'$  为与颗粒的初始粒径和烧结参数有关的常数。由上式可知,  $\log(x/r)$  和  $\log(t^*)$  满足线性关系。

图7为烧结过程中不同模拟烧结时刻的颈部尺寸和  $\log(x/r)$  与  $\log(t^*)$  之间的关系。从图中可以看出,在模拟结果中,颈部尺寸与模拟烧结时间较好地满足线性关系,表明模拟结果符合先前的理论。

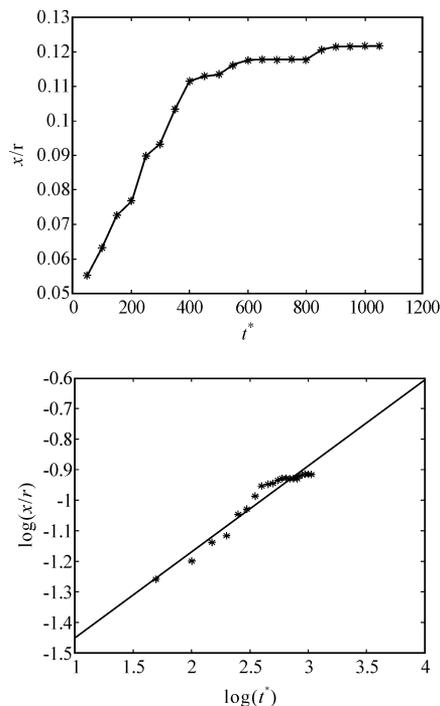


图7 烧结过程中颈部生长的模拟结果 ( $\psi = 180^\circ$ )

## 4 结语

为研究陶瓷刀具材料在制备过程中的烧结机制,针对理想烧结过程中颗粒烧结颈的生长和平衡构型,利用 Surface Evolver 软件模拟颗粒在理想烧结过程中烧结颈的生长,研究了系统的表面积、颗粒质心距和颗粒间接触角等几何尺寸在烧结过程中发生的定量变化,进一步分析了烧结机理和传质机制。

通过 Surface Evolver 软件获得颗粒烧结过程中球形颗粒的微观组织形演化的图像。烧结初期颗粒的质心距离基本保持不变,在最后阶段由于颗粒质心的移动出现收缩引起烧结致密化。颗粒颈部尺寸随模拟时间的演变规律满足线性关系,验证了模拟晶粒烧结颈生长的可行性与稳定性。

## 参考文献

- [1] 贾成厂. 陶瓷基复合材料导论[M]. 北京: 冶金工业出版社, 1998.
- [2] German R M. Sintering theory and practice[M]. New York: Wiley-Interscience, 1996.
- [3] 苗竹, 张海, 杨海瑞. 升温烧结过程中  $\text{TiO}_2$  纳米颗粒的原子分类分析(II): 烧结颈[J]. 物理化学学报, 2016, 32(8): 2119 - 2124.
- [4] Raabe D, Hantcherli L. 2D cellular automaton simulation of the recrystallization texture of IF sheet under the consideration of zener pinning[J]. Computational Materials Science, 2005, 34(4): 299 - 313.
- [5] Chen L Q. Phase-Field models for microstructure evolution[J]. Annual Review of Materials Research, 2002, 32: 113 - 140.
- [6] 方斌. 烧结过程中陶瓷刀具材料微观组织结构演变模拟研究[D]. 济南: 山东大学, 2007.
- [7] Brakke K. The surface evolver[J]. Experimental Mathematics, 1992, 1(2): 141 - 165.
- [8] 果世驹. 粉末烧结理论[M]. 北京: 冶金工业出版社, 1998.
- [9] Brakke K A. The surface evolver and stability of liquid surfaces[J]. Philosophical Transactions Mathematical Physical and Engineering Science, 1996, 354(1715): 2143 - 2157.
- [10] 周晓华, 张劭光, 杨继庆, 等. 基于自发曲率模型对几种极限形状膜泡及典型相变和分裂过程的研究[J]. 物理学报, 2007, 56(10): 6137 - 6142.
- [11] 黄晋, 孙其诚. 一维液态泡沫渗流实验研究及表面能和粘性耗散分析[J]. 物理学报, 2007, 56(10): 6124 - 6131.

# 强化研磨喷射压力对轴承表面残余应力的影响

陶建华,黎达成,张杰,吴庭筠,刘晓初

广州大学

**摘要:** 为研究强化研磨加工与轴承工件强度之间的关系,首先从理论上分析表面残余压应力对轴承工件裂纹扩展速率的影响,并通过实验验证强化研磨对提高轴承表面残余应力具有显著效果。结果表明,在保证工件粗糙度的情况下,要提高轴承表面残余应力,在强化研磨加工中喷射压力最好控制在 0.4-0.6MPa。

**关键词:** 强化研磨;轴承;套圈;残余应力;裂纹

**中图分类号:** TG580.692;TH133

**文献标志码:** A

## Effect of Jet Pressure on Bearings Surface Residual Stress of Workpiece in Strengthening and Polishing Process

Tao Jianhua, Li Dacheng, Zhang Jie, Wu Tingjun, Liu Xiaochu

**Abstract:** In order to discuss the relationship between strengthening and polishing process and the surface residual stress of bearings, this paper first analyzes the effect upon the bearings crack growth rate on the surface residual compressive stress theoretically. Through the experimental verification, strengthening and polishing process to improve the surface residual stress has a significant effect. The results show that, under the conditions that can ensure the bearings roughness, in order to improve the surface residual stress, the injection pressure is preferably controlled at 0.4-0.6MPa in the strengthening and polishing process.

**Keywords:** strengthening and polishing; bearing; rings; residual stress; crack

### 1 引言

强化研磨技术是一种集强化塑性加工和研磨微切削为一体的金属表面冷加工方法<sup>[1]</sup>,可实现金属材料表面强化、抗疲劳、抗腐蚀、抗磨损等多种功能,对提高零件疲劳寿命具有显著的效果。其工作原理与喷丸中的湿喷砂相类似,如图 1 所示,使用压缩机压缩空气提供动力,将高强度钢丸和研磨液高速喷射到工件表面,冲击工件实现强化效果。工件表层

在喷射下产生塑性变形形成强化层,同时产生残余压应力提高工件强度。若研磨液中加入适量钢砂,钢砂在高压喷射下与工件表面发生横向切削力,还可改善工件表面粗糙度<sup>[2]</sup>。

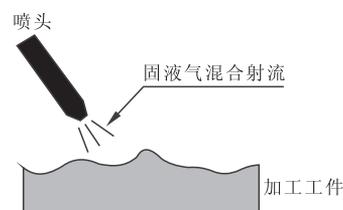


图 1 强化研磨物理模型

强化研磨是一种复合工件加工技术,本文旨在对理论上分析参与压应力对工件强度的影响,同时

**基金项目:** 国家自然科学基金“基于可控强化研磨加工的工业机器人轴承套圈设计与制造基础研究”(U1601204)

**收稿日期:** 2017年5月

[12] 施剑林. 固相烧结——I 气孔显微结构模型及其热力学稳定性致密化方程[J]. 硅酸盐学报, 1997, 25(5): 499-513.

[13] W D Kingery, M Berg. Study of the initial stages of sintering solids by viscous flow, evaporation condensation and self-diffusion[J]. Journal of Applied Physics, 1955, 26(10): 1205-1212.

[14] Kellet B J, Lange F F. Thermodynamics of densification, part I, sintering of simple particle arrays, equilibrium configuration, pore stability and shrinkage[J]. Journal of the American Ceramic Society, 2010, 72(5): 725-734.

第一作者: 牌君君, 硕士研究生, 齐鲁工业大学机械与汽车工程学院, 250353 济南市

First Author: Pai Junjun, Postgraduate, School of Mechanical and Automotive Engineering, Qilu University of Technology, Jinan 250353, China

通信作者: 方斌, 教授, 齐鲁工业大学机械与汽车工程学院, 250353 济南市

Corresponding Author: Fang Bin, Professor, School of Mechanical and Automotive Engineering, Qilu University of Technology, Jinan 250353, China