

**ETUDE DU CARACTERE INVARIANT ET
HOMOLOGUE DE LA RECRISTALLISATION
D'UN CUIVRE POLYCRISTALLIN**

**THESE PRESENTEE A LA FACULTE DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITE DE NEUCHATEL POUR
L'OBTENTION DU GRADE DE DOCTEUR ES SCIENCES**

PAR

KANG-PING HUANG

**INGENIEUR METALLURGISTE DIPLOMEE
DE L'UNIVERSITE DES SCIENCES ET
TECHNIQUES DE HUAZHONG, CHINE**

Travail réalisé avec l'aide du Fonds National Suisse de la
Recherche Scientifique

IMPRIMATUR POUR LA THÈSE

Etude du caractère invariant et homologue
de la recristallisation d'un cuivre poly-
cristallin

de Madame Kang-Ping Huang

UNIVERSITÉ DE NEUCHÂTEL

FACULTÉ DES SCIENCES

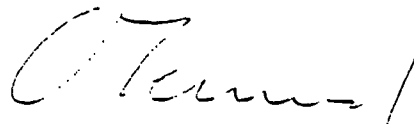
La Faculté des sciences de l'Université de Neuchâtel
sur le rapport des membres du jury,

MM. les professeurs W. Form, D.G. Morris,
U. Suter, W. Benoit (EPF-Lausanne), et
P. Lacombe (Paris-Sud)

autorise l'impression de la présente thèse.

Neuchâtel, le 13 août 1990

Le doyen:



Cl. Mermod

Sonderdruck aus:

ZEITSCHRIFT FÜR
METALLKUNDE

Herausgegeben von
DER DEUTSCHEN GESELLSCHAFT FÜR METALLKUNDE E.V.



DR. RIEDERER-VERLAG GMBH
POSTFACH 104052
7000 STUTTGART 1

On the Invariant and Homologous Character of the Recrystallization Kinetics of Polycrystalline Copper

Kang-Ping Huang and Willy Form

(Institut de Métallurgie Structurale, Université de Neuchâtel, Bellevaux 51, CH-2000 Neuchâtel, Suisse)

Completely isothermal as well as interrupted annealing treatments were performed on polycrystalline 99.99 OF-Cu samples, previously cold drawn 52 %. A new method of high-precision measurements of microstructural parameters permitted to unmask invariant and homologous aspects of the recrystallization kinetics. Results and observations are summarized in a model according to which recrystallization involves no nucleation.

Über den invarianten und homologen Charakter der Rekristallisationskinetik von polykristallinem Kupfer

Vollständig isotherme sowie unterbrochene isotherme Glühbehandlungen wurden auf polykristalline 99.99 OF-Cu-Proben angewandt, welche vorher 52 % kaltgezogen worden waren. Dank einer neuen, hochpräzisen Methode für Gefügeparametermessungen gelang es, invariante und homologe Aspekte der Rekristallisationskinetik aufzuzeigen. Resultate und Beobachtungen wurden in einem Modell zusammengefaßt, demgemäß die Rekristallisation ohne Keimbildung abläuft.

1 Introduction

Recrystallization is characterized by massive elimination of stored dislocations through mobile grain boundaries sweeping over a deformed matrix. The two principal questions with respect to its kinetics, to which we intend to contribute a clarifying answer, are the following:

- which microstructural parameters control the evolution of size and number of recrystallizing grains;
- can recrystallization be divided into a nucleation and a growth phase, as is common for phase transformations.

These two questions will be examined for an OF-Cu bar having sustained a prior 52 % drawing operation.

The most recent complete review of recrystallization concepts is that of Gottstein¹⁾. As far as kinetics is concerned the studies of Johnson and Mehl²⁾ and of Avrami³⁾ may be considered as the beginning of a systematic quantification of the recrystallization process. It is interesting to note that the theory of these researchers was intended to explain thermally activated phase transformations. Subsequently, their theory has also been applied to recrystallization thus assuming that this structural modification occurred in a way analogous to a phase transformation. To be sure, recrystallization in a rather general way may be treated by the equation of Avrami, since it provides a sigmoidal relation between recrystallized fraction (ξ) and isothermal holding time (t):

$$\xi = 1 - \exp(-Bt^n) \quad (1)$$

Natural phenomena are in general of sigmoidal character, provided they are non-explosive, so that Eq. (1) is neither astonishing nor unusual, nor does it refer to a given mechanism. Thus, the fact that the mathematics of the kinetics of 2 phenomena are akin does by no means imply that the underlying mechanisms are necessarily the same for both. In fact, the exponent in Eq. (1) is found by most researchers^{4) to 8)} to lie between 1 and 2 and not between 3 and 4 as requested by Avrami's theory. In our treatment of recrystallization kinetics we must, therefore, distinguish between Avrami's equation and Avrami's theory.

Since recrystallization kinetics is studied at low magnifications to assure representativity, its very beginning is not observed. This would only be possible in the TEM, but there the very high number of micrographs necessary to guarantee representativity is a real obstacle. For instance, we have noted that 100 plates at 15000 x were insufficient for this purpose because of the very high degree of inhomogeneity of the initial course of recrystallisation. Our kinetic studies thus begin only after recrystallizing grains have become visible at a magnification of 400.

Considerable effort was devoted to distinguish unequivocally between recrystallized and deformed grains, for this is the most important requirement for obtaining precise kinetic data. Compared to normal optical analysis we achieved substantial improvement in this respect through an appropriate orientation contrast in the SEM.

Finally, in order to obtain results as close to reality as possible, we corrected our planar observations of newly formed grains and of their distribution for truncation and sampling effects.

2 Material and Procedures

2.1 Material and Prior Cold Work

The chemical composition of our commercially available, polycrystalline copper is in ppm:

Pb < 2, Sb 2, As 2, Bi < 0.2, Sn < 1, Fe 8, Ni < 5, Ag 12, Zn < 3, O 10, P 29, S 7, Se < 1, Te < 1, Cd < 1.

Bars of 15 mm diameter were conditioned at 450 °C for 2 h to yield an average planar grain size of 40 μm . They were subsequently drawn in 2 steps by a total of 52 % reduction.

2.2 Heat Treatment

Two types of annealing modes were applied:

- completely isothermal
- interrupted.

Four temperatures, 270, 290, 310, 330 °C were selected covering that annealing range for which recrystallization was neither too slow nor too fast to be readily followed. Annealing times varied between 2 min and 72 h.

In the interrupted mode, samples were first partially annealed at 330 °C (for respectively 10, 25, 40 %) and subsequently finished at 270 °C. The idea was to separate an eventual nucleation from the growth phase.

2.3 Evaluation of the Microstructure

2.3.1 Preparation of the Recrystallizing Microstructure

As mentioned before an excellent orientation contrast obtained on polished but unetched samples in the SEM permitted a very clear distinction between deformed and recrystallized areas. The granular structure could thus be analyzed with a precision not reached in our previous studies⁹⁾¹⁰⁾. Micrographs were taken on longitudinal sections of the bar samples.

2.3.2 Microstructural Analysis

Recrystallized fraction, $V_v = V_s = \xi^{11)}$ has been determined by point count at a magnification of 400 x.

Grain size and number were analyzed in a Quantimet 920. To eliminate twin effects we traced the grain structure on transparencies which then were fed into the image analyzer. Grain size was defined by the mean value of the maximum and minimum Feret diameter¹²⁾, measured in each recrystallized grain for 16 different orientations.

To account for truncation and sampling effects we modified the known method of Saltykov¹¹⁾ by which spatial grain size distribution can be deduced from planar observation¹⁶⁾. Thereby we assumed grains to be spherical and the recrystallized volume to compact, i. e. the sample volume is identical to the sum of the grain volumes it contains. In other words, grains are considered as equivalent spheres. A detailed description of our method will be published shortly.

Starting with the diameter \bar{d}_s determined from observations in 2 dimensions by the image analyzer, we calculated the mean grain diameter in 3 dimensions \bar{D}_v , according to the following relation:

$$\bar{D}_v = \alpha \bar{d}_s \quad (2)$$

where $\alpha = \alpha_T \cdot \alpha_s$ with α_T = truncation factor and α_s = sampling factor; in our case $\alpha_T = \sqrt{3/2}$.

Knowing \bar{D}_v we obtain the number of grains per unit volume by using deHoff's equation¹¹⁾:

$$N^v = \frac{N^s}{\bar{D}_v} \quad (3)$$

where N^s = Number of recrystallized grains per unit area measured on the Quantimet.

Starting from $\xi = V_\xi = N^v \cdot \bar{V}$

where \bar{V} is the mean value for an equivalent sphere, we may also define the grain size as the diameter for such a sphere: $\bar{d}_v = \sqrt[3]{6 \bar{V}/\pi}$. According to our results

$$\bar{d}_v = 1.2 \bar{D}_v \quad (4)$$

2.3.3 Precision of Measurements

Besides considerable efforts to assure representativity and reproducibility we attached great importance to reach high precision of our result. The following precisions were determined:

- recrystallized fraction by point count: $\pm 2 \%$
- parameters describing grain structure: $\pm 6 \%$.

For example, a grain size of 25 μm could be measured to a precision of $\pm 1.5 \mu\text{m}$.

To these values one has to add the dispersion of results due to the statistical nature of recrystallization which is more pronounced for small than for large values of ξ . For $\xi = 0.5$ this dispersion was estimated at $\pm 3 \%$.

3 Results

3.1 Kinetic Curves

Figure 1 exemplifies the evolution of the recrystallizing microstructure at 270 °C. The kinetic curves presented in Figs. 2 and 3 are valid between $0.05 \leq \xi \leq 0.90$, since for smaller ξ it is impossible to obtain representative results and since beyond $\xi = 0.90$ it becomes difficult to ascertain further variation of recrystallization.

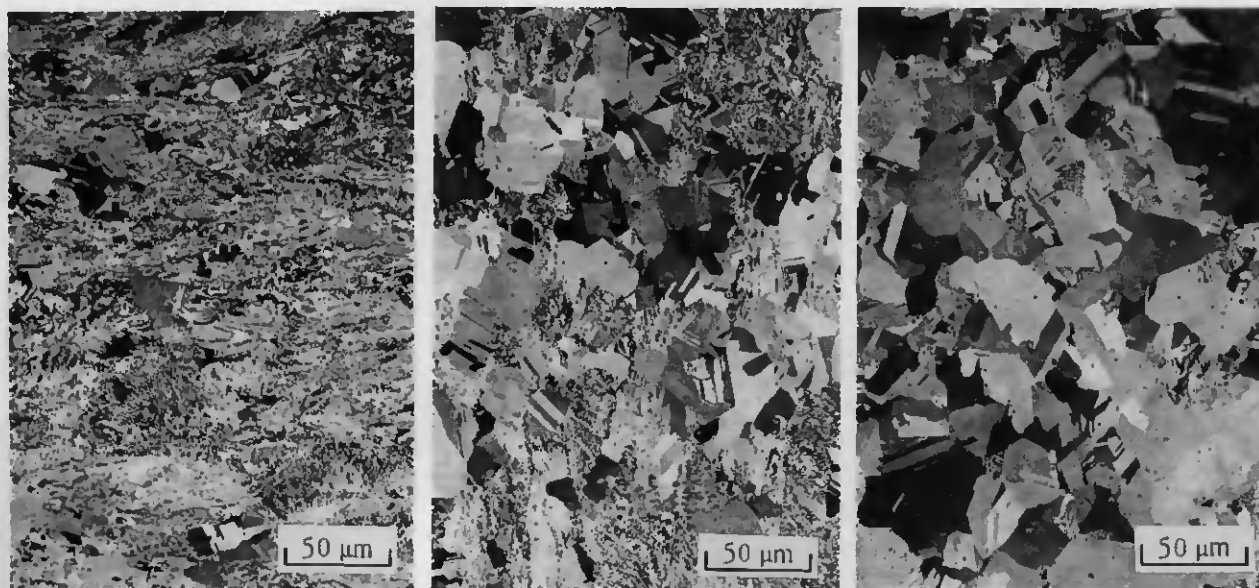


Fig. 1a to c. Evolution of the microstructure at 270 °C as seen in the SEM. (a) $\xi = 0.07$, (b) $\xi = 0.53$ and (c) $\xi = 0.90$.

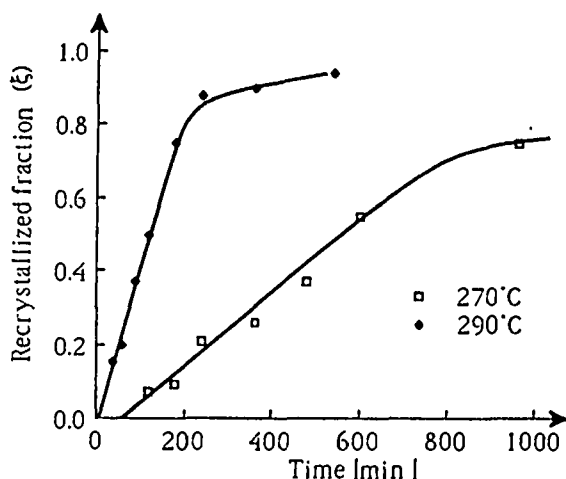


Fig. 2. Kinetic curves of isothermal recrystallization at 270 °C and 290 °C.

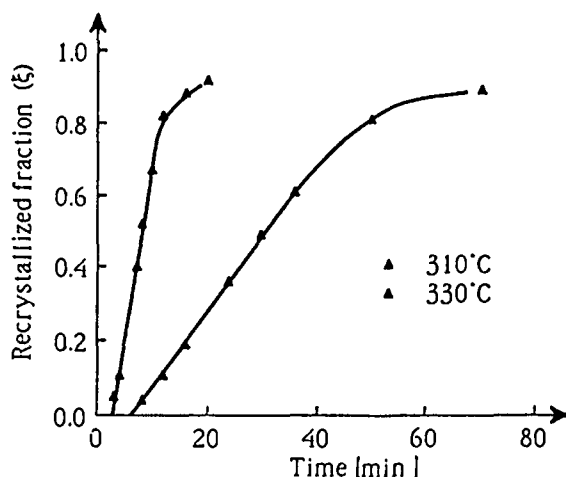


Fig. 3. Kinetic curves of isothermal recrystallization at 310 °C and 330 °C.

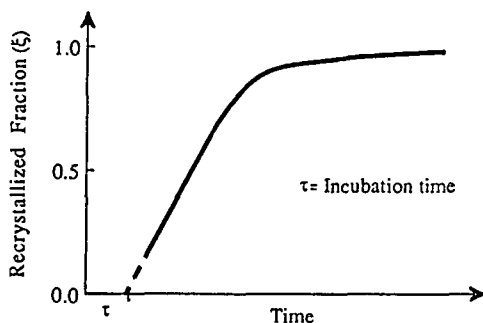


Fig. 4. Definition of incubation time τ .

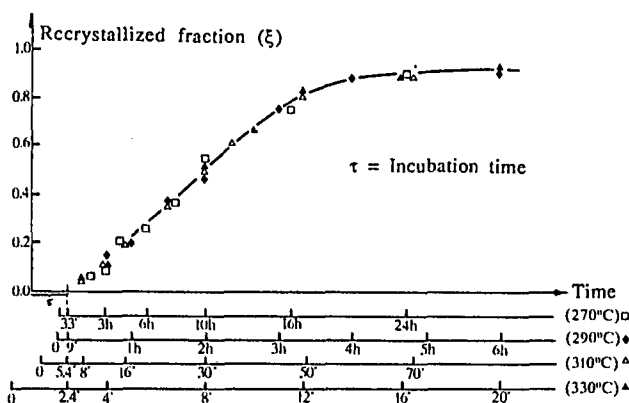


Fig. 5. Superposition of the kinetic curves shown in Figs. 2 and 3 after modification of time scale and neglecting τ .

3.2 Characteristics of the Kinetic Curves

We observe that the rate of recrystallization, $d\xi/dt$, is constant up to $\xi = 0.5$. Furthermore, this rate follows a simple temperature law:

$$\frac{d\xi}{dt} = v_e = v_0 (2^{\frac{T-T_0}{9}}) \quad (5)$$

where: v_0 = constant rate of recrystallization at T_0 , the reference temperature, and v_e = constant rate at T .

Thus, within $270 \leq T \leq 330$ °C the rate of recrystallization doubles for each increase in 9 K. In other words, in the temperature range examined v_e increases one hundred fold.

In view of Eq. (5) we may superimpose the 4 kinetic curves after appropriately modifying the time scale and neglecting the incubation time, τ . For purely operational reasons we defined the latter as shown schematically in Fig. 4.

From Fig. 5 it can be seen that the superposition is excellent, thus permitting us to determine an equivalent time at which a given ξ is attained at different temperatures:

$$t = t^* (2^{\frac{T-T^*}{9}}) \quad (6)$$

where t^* is the time necessary to reach ξ at that temperature T^* for which $v_e = 1\%/min$.

In our case $T^* = 301.6$ °C.

Figure 5 shows too, that the superposition of the kinetic curves is not only valid up to $\xi = 0.5$ but over the entire curve. This implies that Eq. (5) is satisfied along the entire curve provided v_0 is considered a function of ξ and not merely a constant.

The generalized form of Eq. (5) is then:

$$v = v^* (2^{\frac{T-T^*}{9}}) \quad (7)$$

where v = rate at T , T^* = reference temperature, and v^* = rate at T^* , varying with ξ .

The above two characteristics signify that for a given state of prior cold work:

- (i) time and temperature of annealing are perfectly interchangeable
- (ii) the kinetic curves are homologous

One may object that neglecting τ is not permitted in the above consideration. Yet, when using Eq. (6) to calculate $\tau = f(T)$ we obtain values that do not differ substantially from those determined by the extrapolation method of Fig. 4. Obviously, the linear extrapolation of the kinetic curves to $\xi = 0$ has no physical meaning, since it is the exact form of the kinetic curve for very low ξ values which determines the real value of τ . This form is not known.

3.3 Interrupted Heat Treatments

The time-temperature cycle employed is inserted in Fig. 6. The purpose of these treatments was to influence N^v and \bar{D}_v since, if recrystallization were of the nucleation and growth type, in analogy of common phase transformations, such an influence should be observed by interrupted annealing treatments. The results obtained are assembled in Fig. 6. Taking into account the dispersion of $\pm 3\%$ in ξ when interrupting the process at 330 °C, the superposition of the 4 curves according to Eq. (6) is indeed very good.

3.4 Analysis of the Recrystallization Kinetics

3.4.1 Activation Energy

According to Himmel¹³):

$$\xi = 1 - \exp(-Bt^n)$$

where $B = B_0 \exp\left(-\frac{nQ}{RT}\right)$ (8)

When replotting Figs. 2 and 3 on a $\ln \ln 1/(1-\xi)$ vs. $\ln t$ basis, the straight lines in Fig. 7 result, the slope of which corresponds to n .

With these results we obtain a mean value for $n = 1.35$, whereas Q varies between 190 and 218 kJ/mol. These values for Q appeared to us rather high considering the purity of the copper used. Therefore, the activation energy was also determined at the „Werkstoff-Institut der Technischen Universität Braunschweig“ (Prof. Haessner) by means of scanning differential calorimetry. Using the method of Henderson¹⁴) and Meissel¹⁵) Q was determined to 196 kJ/mol, in excellent agreement with the value measured by us by a purely metallographic method.

3.4.2 Microstructural Analysis

The microstructural parameters indicated in the following are corrected for truncation and sampling. Evolution of grain size in the course of recrystallization is illustrated in Fig. 8. We see that all data points fall within two limiting straight lines fixing approximately the upper and lower scattering limit. We may therefore conclude that in the course of recrystallization the mean grain size at any moment – and not just at the end as found previously⁹) – is a function only of the recrystallized fraction, ξ , independent of the thermal path along which this ξ has been reached. This can be expressed by a simple relation, valid for $0.15 \leq \xi \leq 0.9$:

$$\bar{d}_v = 8.9 \xi + 17 \quad (R = 0.90) \quad (9)$$

where R = confidence level.

In addition, Fig. 8 shows that \bar{d}_v attains rapidly 17 μm , i. e. $\frac{2}{3}$ of its final value. Such a behaviour corresponds to direct and continuous observations in the SEM according to which grain boundary movement during recrystallization often occurs in a spasmodical manner.

Let us look now at the evolution of N^v , the number of recrystallized grains per unit volume. After correction for truncation and sampling one obtains the results presented in Fig. 9.

Before we describe these results let us point out that the precision at which N^v can be determined strongly depends upon that of \bar{D}_v , according to

$$\frac{\Delta N^v}{N^v} = 3 \frac{\Delta \bar{D}_v}{\bar{D}_v} \quad (10)$$

Strictly speaking relation (10) holds between N^v and \bar{d}_v , but in view of Eq. (4) it is equally applicable to \bar{D}_v . Since the value for the right side of Eq. (10) has been found to be $\pm 7\%$, the precision of N^v is at best $\pm 20\%$. Adding the dispersion of the process itself leads to a variation in N^v of at least $\pm (20 \text{ to } 25)\%$, and this with the very high precision with which we could determine \bar{D}_v . Taking all this into account, we see that all the points in Fig. 9 lie within a band – obviously larger for a small and narrower for a high ξ – which has the extent of the expected scatter.

We may, therefore, conclude that for a given ξ , N^v is independent of temperature. Furthermore, N^v attains a maxi-

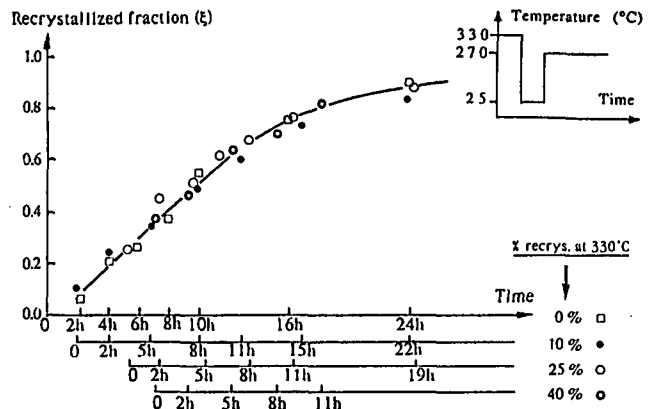


Fig. 6. Superposition of the kinetic curves obtained in the interrupted mode of recrystallization after modifying the time scale and neglecting τ .

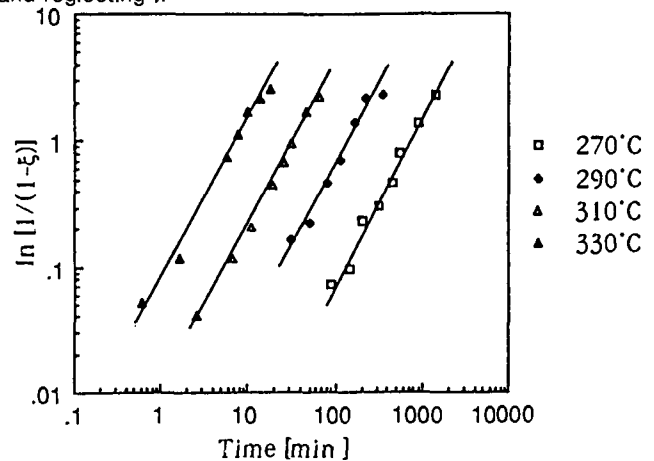


Fig. 7. Double-logarithmic plot of the isothermal kinetic curves determined according to Avrami's equation.

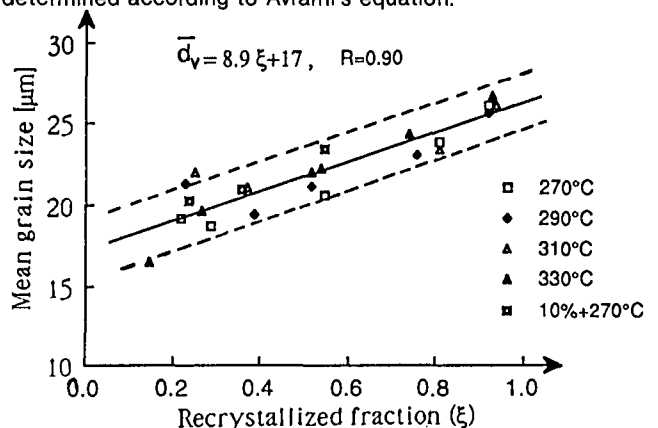


Fig. 8. Evolution of the size of recrystallizing grains (\bar{d}_v) as a function of ξ during isothermal and during interrupted treatment.

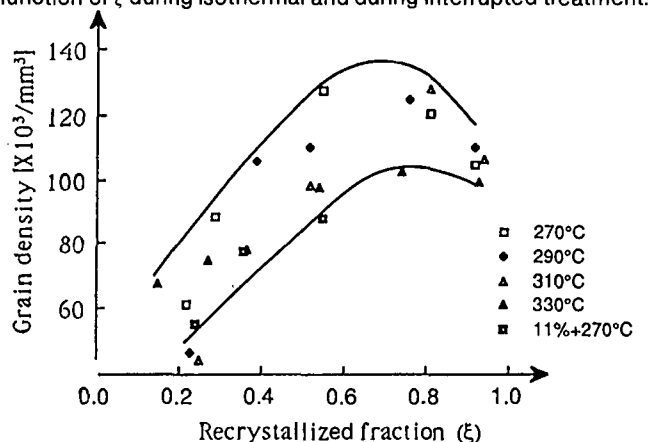


Fig. 9. Evolution of the number of recrystallizing grains per unit of volume (N^v) as a function of ξ during isothermal and during interrupted treatment.

mum around $\xi = 0.75$. This implies that some local grain coarsening must occur before recrystallization is complete.

In summary it appears then impossible, for a given recrystallized fraction, to vary either the number of grains per unit volume or their size by varying the thermal path along which recrystallization proceeds.

4 Discussion

The temperature independence not only of the final but of any intermediate grain size is an unexpected result. According to Boéchat¹⁰) such independence should only be evident after a so-called „regulation“, i. e. toward the end of recrystallization. It is possible that the high precision of our measurements made it possible to lay bare the relation which may previously have been masked by too large a dispersion of the results.

Let us now have a look at the homologous character of the kinetic curves as expressed notably by Eq. (6). First of all we would like to point out that the validity of this relation is not evident a priori. One may only assume that time and temperature are interchangeable if all participating mechanisms have the same temperature dependence – which is highly unlikely – or if only one mechanism is operative in the process under study. The purpose of the interrupted heat treatments was precisely to throw some light on this latter point. If, indeed, recrystallization is a nucleation growth process, each process with its proper activation energy, then number and size of grains for a given ξ

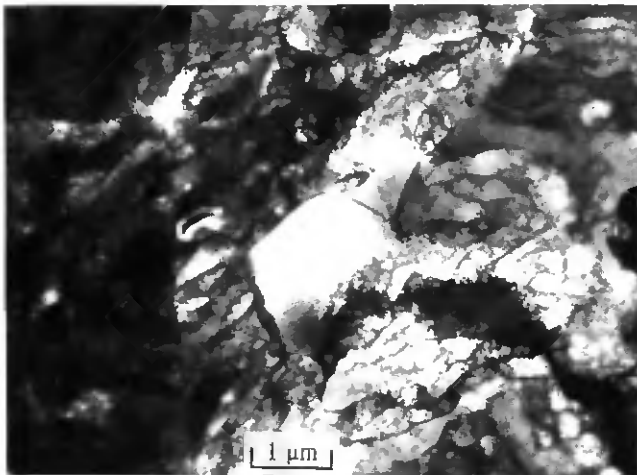


Fig. 10. Small dislocation-free area with sharp boundary observed in the TEM during the initial stages of recrystallization at 290 °C.

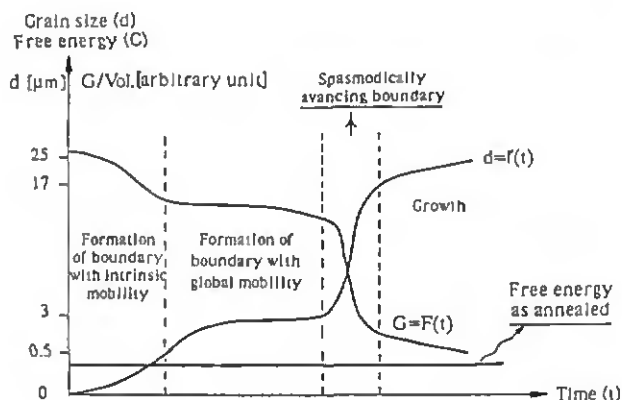


Fig. 11. Schematic variation of free energy and grain size with time during recrystallization (proposed model).

would be affected by the interrupted heat-treatment technique we employed. Yet, this is not the case. Consequently, one must deduce that only one mechanism, that of growth, is operative during recrystallization. Such a conclusion is supported by the value of the activation energy obtained by the Arrhenius equation¹⁷⁾:

$$\frac{d\xi}{dt} = A_1 \exp\left(-\frac{Q}{kT}\right) \quad (11)$$

For Q the values lie between 2.1 and 2.27 eV, in perfect agreement with those obtained from Himmel's equation and from scanning differential calorimetry.

In the introduction we have pointed out the necessity to distinguish between Avrami's theory and Avrami's equation. With our experimental results we have obtained an exponential n in Avrami's equation which varies between 1.34 and 1.36 confirming the results of Comte⁹⁾ and other researchers^{4) to 7)}. According to Avrami's theory a value lying between 3 and 4 should have resulted. This large discrepancy suggests that Avrami's theory as such is not applicable to recrystallization. According to a table assembled by Christian¹⁸⁾ one distinguishes in general between 2 types of transformations:

- diffusion controlled
- interface controlled.

Recrystallization obviously is not diffusion-controlled. The term "interface-controlled phenomenon" commonly refers to the control exerted by the intrinsic mobility of a moving interface on the process in question. Grain coarsening is the most typical solid state reaction for this kind of control. But, does recrystallization fall into the same category? In order to contribute a possible answer to this question let us try to understand, by deductive reasoning, what might happen during recrystallization, by drawing from all the information and experience which we have assembled over the past decade:

In an initial phase – only visible in the TEM – a large number of dislocation-free areas (or volume elements) are formed (Fig. 10), which are not to be confused with cellular dislocation structures because of their rather sharp interface. Such areas have varying sizes starting at about $0.1 \mu\text{m}$. We propose that they are formed as a result of movements of dislocations attempting thereby to reduce their interaction energy. In other words, during the formation of such areas the free energy drops continually. Obviously then, this initial phase is not a nucleated phase since the two imperative nucleation requirements, i.e.

- initial increase in free energy
- existence of a critical nucleus size

are not satisfied. Furthermore, sundry experiments conducted in the course of our work suggest that the number of such initial dislocation-free regions per unit volume is a large multiple of N^v at any moment of recrystallization, i. e. only a very small number grow subsequently to recrystallized grains. This is also contrary to the behaviour of stable nuclei in phase transformation or precipitation phenomena.

At some of these initially formed dislocation-free sites enough energy might momentarily be accumulated to activate their boundaries sufficiently to eliminate dislocations in their immediate wake. How this occurs is not yet known; the only attempt to describe it is that of Gleiter¹⁹⁾ for an individual dislocation. Apparently, a cataclysmic

process sets in, since the energy liberated by dislocation elimination must far exceed the energy for grain boundary movement. The recrystallization front subsequently stops somewhere in a region of low dislocation density. Additional movement of the grain boundaries to reach final size would then have to be reactivated.

Such a model would explain the spasmodic movement of grain boundaries observed in the SEM and would also explain why the recrystallized grain size rapidly reaches $\frac{2}{3}$ of its final size. Recrystallization could thus not be merely classified as an interface-controlled phenomenon, whose kinetic depends upon the intrinsic mobility of the interface, but as one which is controlled by the ease with which the interface can be activated to overcome the barrier in its wake presented by more or less complex and dense dislocation arrangements. The elimination of such a barrier might depend on density, type, degree of entanglement and orientation of the dislocations relative to the advancing interface.

In Fig. 11 the outlined model is schematically depicted as far as variation of free energy and grain size is concerned. Accordingly, no increase in free energy is needed to form the initial strain-free sites, in clear opposition to a typical nucleation and growth event. The energy necessary to form the initial interface is already contained in the self energy of those dislocations which create it through a movement driven by the tendency to reduce the interaction energy between them. We recall here that the absence of a nucleation phase is not unique in structural modifications; for instance, this has long been known to be the case for spinodal decomposition. Obviously the above description of the recrystallization process is very speculative. Yet, our results and observations, including the low value for the exponent in Avrami's equation do support it. It leaves open a number of critical questions, the most important one to us seems to be the following:

– what is the mechanism of dislocation elimination by the movement of appropriate boundaries of recrystallizing grains?

5 Conclusions

Using orientation contrast in the SEM to clearly distinguish between recrystallizing and deformed areas we were able to reach precise results as far as size, size distribution, number of recrystallizing grains and percent of recrystallized area at any moment is concerned. On the basis of such results obtained on a Cu-OF copper bar, previously 52 % cold drawn, we could show the interchangeability of recrystallization time and recrystallization temperature. Furthermore, during the entire course the average size of the newly recrystallized grains is a function only of ξ and independent of the thermal path along which recrystalliza-

tion proceeds. It was impossible through interrupted heat-treatments to change the number or size of the recrystallizing grains, suggesting that recrystallization is controlled by one mechanism, that of growth, and that the development of initial dislocation-free sites does not involve a nucleation step. A model is proposed which shows the variation in free energy and that of grain size in the course of recrystallization.

The work presented herein constitute part of the thesis, Mrs. K.-P. Huang presented to the Science Faculty of the University of Neuchâtel to obtain the degree of a Doctor of Science. It was entirely financed by the Swiss National Science Foundation to which the authors express their sincere thanks.

Literature

- 1) G. GOTTSTEIN, *Rekristallisation metallischer Werkstoffe*, Deutsche Gesellschaft für Metallkunde e.V., Oberursel (1984).
- 2) W. A. JOHNSON and R. F. MEHL, *Trans. Amer. Inst. Min. Met. Eng.* **135** (1935) 416.
- 3) M. AVRAMI, *J. Chem. Phys.* **7** (1939) 1103 (part I); **8** (1940) 212 (part II); **9** (1941) 177 (part III).
- 4) L. VAZQUEZ, H. J. McQUEEN, and J. J. JONAS, *Acta Metall.* **35** (1987) 1951.
- 5) R. W. CAHN and P. HAASEN, *Physical Metallurgy*, 3th, North-Holland Physics Publishing, Amsterdam (1983).
- 6) S. MURPHY and C. J. BALL, *J. Inst. Met.* **100** (1972) 225.
- 7) A. SANDBERG and R. SANDSTRÖM, *Materials Sci. Tech.* **2** (1986) 917.
- 8) P. COMTE, Thèse de doctorat: "Aspects Quantitatifs de la Cinétique de Recristallisation Thermique dans les Métaux Ecrouis", IMS de l'Université de Neuchâtel (1975).
- 9) W. FORM, G. GINDRAUX, V. MLYNCAR, and J. C. RAMSEYER, *Mémoires Sci. Revue Mét.* **74** (1978) 27.
- 10) J. M. BOÉCHAT, Thèse de doctorat: "Etude Morphologique du Développement de la structure Recristallisée – Exemple du Cuivre –" IMS de l'Université de Neuchâtel (1983).
- 11) R. T. DeHOFF and F. N. RHINES, *Quantitative Microscopy*, McGraw-Hill, New York (1968).
- 12) MURRAY R. SPIEGEL, *Théorie et Applications de la Statistique*, McGraw-Hill, Paris (1985).
- 13) L. HIMMEL, *Recovery and Recrystallization of Metals*, Interscience Publishers (a division of John Wiley & Sons), New York (1963).
- 14) D. W. HENDERSON, *J. Non-Cryst. Sol.* **30** (1979) 301.
- 15) L. V. MEISEL and P. J. COTE, *Acta Metall.* **31** (1983) 1053.
- 16) G. E. PELLISSIER and S. M. PURDY, *Stereology and Quantitative Metallography*, ASTM Special Technical Publication 504, Easton, Pa. (1972).
- 17) J. BURKE, *The Kinetics of Phase Transformations in Metals*, Pergamon Press, London (1965).
- 18) J. W. CHRISTIAN, *The Theory of Transformations in Metals and Alloys*, Pergamon Press, Oxford, (1965).
- 19) K. SMIDODA and H. GLEITER, *Z. Metallkde.* **69** (1978) 81.

(Eingegangen am 8. November 1988)

Sonderdruck aus:

Praktische Metallographie	Practical Metallography
--------------------------------------	------------------------------------

**Zweisprachig
Deutsch/Englisch**

**Bilingual
English/German**



Dr. Riederer Verlag GmbH
Postfach 104052 7000 Stuttgart 1

A Simplified Method to Reconstruct a Spatial Grain Distribution from Planar Observations

Eine vereinfachte Methode zur Ermittlung der räumlichen Korngrößenverteilung aus zweidimensionalen Beobachtungen

K.-P. HUANG, WILLY FORM

(Institut de métallurgie structurale de l'Université de Neuchâtel, Suisse)

Part I: Basic Considerations

Teil I: Grundlegende Betrachtungen

Introduction

Precise studies of the kinetics of recrystallization or grain growth require knowledge of the size distribution of the new evolving grains as well as of the number of new grains formed per unit volume in a given time period. Several methods have been developed and are being used to obtain the desired information. We may divide them into direct and indirect methods. In the direct methods a series of parallel closely spaced metallographic sections observed under the microscope permit the reconstruction of the three-dimensional granular arrangement from planar information¹⁾. The advantage of this method is that it is void of any assumption and thus permits to get at the true spatial arrangement of the grains under study. However, it is tedious and time consuming. Furthermore, it is commonly limited to a relatively small number of grains and suffers consequently from an insufficient representativity of the results obtained.

One therefore prefers indirect methods in which the desired three-dimensional parameters are deduced from observations of one planar cut. The link between two-dimensional observations and spatial grain size distributions is provided by specific models based on a series of assumptions.

For instance, the following relations between the corresponding planar and spatial average grain sizes have been suggested²⁾:

¹⁾ A complete list of the symbols used is given in table 1.

²⁾ Eine vollständige Liste der hier verwendeten Symbole ist im Anhang gegeben.

Einleitung

Eine exakte Studie der Kinetik von Rekristallisationsvorgängen setzt gute Kenntnisse über die Größenverteilung der sich neu bildenden Körner sowie über ihre Zahl pro Zeit und Volumeneinheit voraus. Verschiedene Methoden wurden bisher entwickelt, um die gewünschte räumliche Information aus Beobachtungen ebener Schlitze zu erhalten. Man kann sie in direkte und indirekte Methoden einteilen. Bei den direkten Methoden wird aus mikroskopischen Betrachtungen einer Serie von nahe beieinander liegenden parallelen metallographischen Schnitten direkt die Dreidimensionalität der Korngrößenverteilung rekonstruiert¹⁾. Solche Methoden haben den Vorteil, daß sie frei von jeglichen Annahmen sind und deshalb der wirklichen räumlichen Kornverteilung sehr nahe kommen können. Indessen sind sie sehr zeitaufwendig. Zudem beschränken sie sich in der Regel auf eine kleine Zahl von Körnern, weshalb die Repräsentativität der so erhaltenen Resultate oft in Frage gestellt werden muß.

Aus diesen Gründen werden meistens indirekte Methoden bevorzugt, bei denen die räumlichen Parameter aus ebenen Beobachtungen eines Schliffes mathematisch abgeleitet werden. Der Zusammenhang zwischen solchen zweidimensionalen Beobachtungen und der räumlichen Korngrößenverteilung wird aufgrund von spezifischen Modellen, welche auf einer Anzahl Annahmen beruhen, hergestellt.

Bezüglich Korngröße finden wir in der Literatur beispielsweise folgende Beziehungen zwischen ebenen und räumlichen Parametern²⁾:

$$\overline{D}_v = 1.16 \overline{D}_s \quad (1)$$

by *Comte*¹⁾ and

nach *Comte*¹⁾

$$\overline{D}_v = 1.75 \overline{D}_s \quad (2)$$

by *Pickering*²⁾, respectively.

bzw. *Pickering*²⁾.

Whereas [1] is based on a direct method, the procedure used by *Pickering* is indirect, yet less clear.

Während die Gleichung [1] auf einer direkten Methode beruht, ist die Methode von *Pickering* eine indirekte, deren Herleitung jedoch nicht ganz klar ist.

For the determination of the number of grains per unit volume *De Hoff*³⁾ proposes

Zur Bestimmung der Anzahl Körner pro Volumeneinheit schlägt *De Hoff*³⁾ folgende Gleichung vor:

$$N^v = \frac{N^s}{\overline{D}_v} \quad (3)$$

which is an exact relation in the case of a regular monodispersion of spherical grains ($\overline{D}_v \equiv D_v$).

Diese Beziehung ist exakt für den Fall einer Monodispersion von Kugeln ($\overline{D}_v \equiv D_v$).

Obviously relations [1] to [3] are very simple and easy to use. However, there is considerable uncertainty associated with them, since relations between \overline{D}_v and \overline{D}_s are not simple nor necessarily of general value and since real grain distributions are of the polydispersion type.

Die Gleichungen [1] bis [3] sind sicher einfach und handlich in der Anwendung. Sie sind aber mit einer großen Unsicherheit behaftet, da Beziehungen zwischen \overline{D}_v und \overline{D}_s im allgemeinen nicht so einfach sind und zudem nicht unbedingt von genereller Gültigkeit sind. Ferner haben ja reale Kornverteilungen polydispersen Charakter.

A considerable step in the direction of correctly assessing spatial grain distributions has been taken by *Saltykov* (for references see^{3) 4)}). He offers a rather complete method for the reconstruction of a three-dimensional grain distribution from planar observation assuming that grains may be approximated by spheres. However, this method is complicated, very time consuming and rather inflexible. Thus, for a given number of grain size classes, a series of tables containing each more than 100 coefficients must be established from which by successive subtractions the desired three-dimensional parameters may be obtained. Yet, since *Saltykov*'s method permits to come rather close to true grain distributions, we decided to retain it as an interesting basis, and to examine ways to simplify it. Furthermore, its modified form had to be put into an analytical expression to permit the use of computers to obtain rapidly the desired analytical results.

Ein wesentlicher Schritt in Richtung einer korrekten Erfassung von räumlichen Kornverteilungen wurde von *Saltykov* (Literaturangaben siehe^{3) 4)}) gemacht. Er hat eine ziemlich vollständige Methode für die Erstellung einer räumlichen Kornverteilung aus einem ebenen Schliff entwickelt, wobei er eine kugelige Kornform annimmt. Seine Methode ist jedoch kompliziert, zeitraubend und wenig anpassungsfähig. Beispielsweise muß man für eine fixe Anzahl von Korngrößenklassen eine Serie von Tabellen erstellen, die jede mehr als 100 Koeffizienten enthält. Mittels sukzessiven Subtraktionen werden dann die gewünschten räumlichen Parameter berechnet. Weil man aber mittels der Methode von *Saltykov* sehr nahe an reale Kornverteilungen herankommen kann, haben wir sie in unseren Betrachtungen als interessante Ausgangsvariante genommen und untersucht, wie sie vereinfacht werden könnte. Die modifizierte Form, bei der wir dann angelangt sind, mußte schließlich noch in eine analytische Beziehung gebracht werden, damit

die gewünschten Resultate mittels eines elektronischen Rechners rasch erhalten werden können.

In the first part of our paper we shall describe the general method we arrived at to deduce spatial grain arrangements from planar information. In the second part we shall report on the application of this method to the assessment of grain evolution during recrystallization of OF-Cu bars.

Im ersten Teil unserer Darlegungen beschreiben wir die generelle Methode, welche wir zur Berechnung räumlicher Korngrößenverteilungen entwickelt haben. Im zweiten Teil berichten wir dann über die Anwendung dieser Methode auf das Wachsen von neuen Körnern während der Rekristallisation von OF-Cu-Stangen.

General Description of the Method

Retaining the basic concept of *Saltykov's* method, we assumed an equiaxial grain shape which may be approximated by spheres. One of the very important aspects, when reconstructing a three-dimensional grain distribution from planar observation, is that one has to correct for two effects, namely:

- truncation
- sampling.

The first effect takes into account that in an arbitrary cross-section of a sample a sphere is mostly intersected along a circle which is smaller than the sphere diameter. The second effect is due to the fact that the probability for a small sphere to be cut is smaller than for a large sphere. This latter effect seems to have been neglected by other researchers e.g. by *Pickering*²⁾. Our method involves the following steps:

- Determination of the grain size distribution and of the number of grains per unit area from microscopic observations in an automatic image analyser (Quantimet 920).
- Calculation of the number of grains per unit volume through correction for truncation and sampling.
- Calculation of the mean spatial grain size.

It is above all the second step which requires a new quantitative development involving the following sequence:

- i) We calculate the probability by which a sphere is cut along an arbitrary plane within a given

Generelle Beschreibung der Methode

Wie *Saltykov* haben auch wir eine kugelige Kornform angenommen. Einer der wichtigsten Aspekte bei der Rekonstruktion der räumlichen Kornverteilung aus zweidimensionalen Beobachtungen ist, daß man eine Korrektur für zwei Effekte (und nicht nur für einen) anbringen muß, nämlich für den

- Verkleinerungseffekt und für den
- Erfassungseffekt.

Der erstgenannte Effekt zieht in Betracht, daß in einer beliebigen Schnittebene einer Probe eine Kugel meistens entlang eines Kreises geschnitten wird, der nicht dem Kugeldurchmesser entspricht. Der zweitgenannte Effekt ist mit der Tatsache verbunden, daß die Wahrscheinlichkeit, eine kleine Kugel zu schneiden, kleiner ist als für eine große Kugel. Es scheint, als ob letzterer Effekt von anderen Forschern oft vernachlässigt wurde, z. B. von *Pickering*²⁾. Unsere Methode umfaßt folgende Schritte:

- Bestimmung der Korngrößenverteilung und der Anzahl der Körner pro Flächeneinheit mittels mikroskopischer Beobachtungen in einem automatischen Bildanalysator (Quantimet 920).
- Berechnung der Anzahl Körner pro Volumeneinheit durch Korrektur des Verkleinerungs- und Erfassungseffektes.
- Berechnung der räumlichen Korngrößen.

Es ist vor allem der zweite Schritt, welcher eine mathematische Entwicklung verlangt, die folgende Sequenz beinhaltet:

- i) Wir berechnen zuerst die Wahrscheinlichkeit, mit welcher eine Kugel durch eine belie-

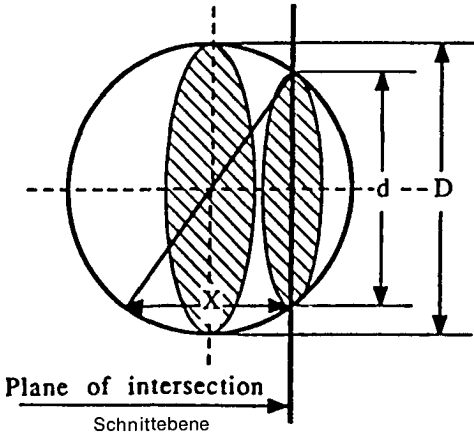


Fig. 1. Schematic drawing of a sphere of diameter D cut by a plane along a circle of diameter d

Fig. 1. Schematische Zeichnung einer Kugel vom Durchmesser D , die durch eine Ebene entlang eines Kreises vom Durchmesser d geschnitten wird.

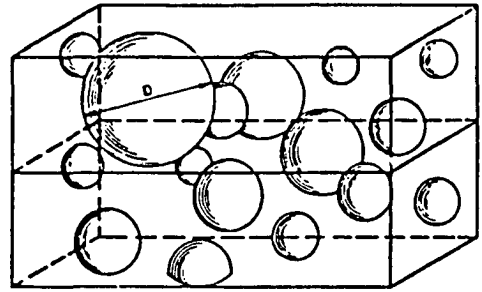


Fig. 2. Sampling effect in a polydispersion of spheres: the larger the sphere the higher the probability to cut it by an arbitrary plane⁴⁾

Fig. 2. Erfassungseffekt in einer Polydispersion von Kugeln: je größer die Kugel, desto größer die Wahrscheinlichkeit, daß sie durch eine beliebige Ebene geschnitten wird.⁴⁾

zone defined by an upper and a lower limit (fig. 1) for the case of a monodispersion, i.e. all spheres have the same size.

bige Ebene geschnitten wird, deren Lage durch eine untere und eine obere Grenze fixiert ist (Fig. 1). Diese Rechnung wird zuerst für den Fall einer Monodispersion ausgeführt, d. h. alle Körner (Kugeln) haben die gleiche Größe.

(II) For the case of a polydispersion of spheres, we distribute the sizes among a fixed number of classes on a logarithmic scale and treat the whole as a series of discrete monodispersions, each class being characterized by its upper limit. We may then calculate the probability that a grain belonging to the k^{th} class is actually observed by the image analyser in the i^{th} class.

II) Für den Fall einer Polydispersion verteilen wir die Korngrößen unter eine fixe Anzahl von Klassen in einer logarithmischen Skala und behandeln die gesamte Verteilung als eine Folge von diskreten Monodispersionen, wobei jede Klasse durch ihren oberen Grenzwert definiert wird. Wir berechnen dann die Wahrscheinlichkeit $P(i,k)$, mit der ein Korn, welches tatsächlich der k^{ten} Klasse angehört, durch die Beobachtungen im Bildanalyser aber der i^{ten} Klasse zugeteilt wird.

(III) Knowing the probabilities $P(i,k)$ ($i,k=1,2,\dots,n$, and $i \leq k$), we are then in a position to correct the observed planar grain size distribution for the truncation effect. To do this we start out with the highest class, which obviously does not contain any cuts from spheres of even higher (nonexisting) classes. Subsequently we correct for truncation all the way down to the first class. This permits us to obtain N_i^{\dagger} from the observed N_i^s .

III) In Kenntnis der Wahrscheinlichkeit $P(i,k)$ ($i=1,2,\dots,n$ und $i \leq k$) können wir dann an der durch ebene Schriffe erhaltenen Korngrößenverteilung den Verkleinerungseffekt korrigieren. Dazu beginnen wir mit der höchsten Klasse, die ja keine Schnitte von Körnern aus höheren (eben nicht existierenden) Klassen enthält. Danach wird sukzessive für jede Klasse bis zur kleinsten hinunter ebenfalls die Korrektur für den Verkleinerungseffekt

fekt angebracht. Dies gestattet uns, N_i^t aus den beobachteten N_i^s zu berechnen.

(IV) We now have to correct for sampling (fig. 2). This is done through dividing N_i^t by d_i leading to N_i^v . Summing up this latter parameter leads to N^v and also gives us \overline{D}_v .

IV) Schließlich müssen wir noch die Korrektur für den Erfassungseffekt anbringen (Fig. 2). Dies wird erreicht, indem wir N_i^t durch d_i dividieren, wodurch man N_i^v erhält. Indem letztere Parameter summiert werden, ergibt sich N^v , was uns erlaubt, \overline{D}_v zu berechnen.

Mathematical Details of the Method

Correction for the Truncation Effect

The probability that in a monodispersion a sphere of diameter D truncated along a circle of diameter d is being intersected along a diameter situated between d and D is given by (fig. 1):

$$P_{(d,D)} = \frac{X}{D} = \frac{1}{D} \sqrt{D^2 - d^2} \quad (4)$$

We may write:

$$D = c \alpha^k \text{ and/und } d = c \alpha^{(k-1)} \quad (5)$$

where

wobei:

$$d_k =]d, D]$$

Introducing [5] into [4] results in:

Wenn [5] in [4] eingesetzt wird, erhält man:

$$P_{(d,D)} = P(d \in d_k | D = c \alpha^k) = \frac{1}{c \alpha^k} \sqrt{(c \alpha^k)^2 - (c \alpha^{(k-1)})^2} = \sqrt{1 - \frac{1}{\alpha^2}} \quad (6)$$

Relation [6] shows that the probability with which a grain of the k^{th} class is truncated in its own class is only dependent upon the geometric group modulus α . This is valid for all classes. We call it the "basic" probability P_o :

Gleichung [6] zeigt, daß die Wahrscheinlichkeit, mit der eine Kugel der k^{ten} Klasse in ihrer eigenen Klasse geschnitten wird, nur vom geometrischen Gruppenparameter α abhängt. Dies trifft für alle Klassen zu. Wir bezeichnen sie mit „elementare“ Wahrscheinlichkeit P_o :

$$P_o = P(d_k, c \alpha^k) = P(k, k) = P(1, 1) = P(2, 2) = \dots = P(n, n)$$

Equation [6] is of general value and may equally well be applied to the case of a polydistribution. For this latter case we may formulate the probability that a grain from the k^{th} class (d_k) is actually observed in the i^{th} class (d_i) ($i \leq k$) in the following way:

Ferner besitzt Gleichung [6] Allgemeingültigkeit und kann deshalb auch auf eine Polydispersion von Körnern angewandt werden. Für diesen letzteren Fall können wir die Wahrscheinlichkeit, daß ein Korn der k^{ten} Klasse (d_k) in der i^{ten} Klasse (d_i) ($i \leq k$) beobachtet wird, wie folgt formulieren:

$$\begin{aligned} P_{(i,k)} &= P(d \in d_i | D \in c \alpha^k) = \frac{1}{c \alpha^k} [\sqrt{(c \alpha^k)^2 - (c \alpha^{(i-1)})^2} - \sqrt{(c \alpha^k)^2 - (c \alpha^i)^2}] = \\ &= \frac{1}{\alpha^{k+i-1}} (\sqrt{\alpha^{2(k+i-1)} - 1} - \sqrt{\alpha^{2(k+i-1)} - \alpha^2}) \end{aligned} \quad (7)$$

and

und

$$\begin{aligned}
P_{\text{total}} &= \sum_{i=1}^k P(i,k) = \sum_{i=1}^k P(d \in d_i | D \in c \alpha^k) = \\
&= \frac{1}{\alpha^k} \sqrt{\alpha^{2k} - 1} - \frac{1}{\alpha} \sqrt{\alpha^{2(k+1-k)} - \alpha^2} = \frac{1}{\alpha^k} \sqrt{\alpha^{2k} - 1}
\end{aligned} \tag{8}$$

In the ideal case, P_{tot} must be unity.

Im Idealfall muß $P_{\text{tot}} = 1$ sein.

Once the values for $P(i,k)$ are known we may compute N_i^t .

Sobald die Werte für $P(i,k)$ bekannt sind, können wir N_i^t berechnen.

Correction for the Sampling Effect

Korrektur für den Erfassungseffekt

In order to carry out this correction we consider a sample volume of 1 mm^3 . The relative sampling probability E_{d_i} for a grain of diameter d_i is then given by

Zur Durchführung dieser Korrektur betrachten wir ein Probenvolumen von 1 mm^3 . Die relative Erfassungswahrscheinlichkeit E_{d_i} für einen Korndurchmesser d_i ist gegeben durch

$$E_{(d_i)} = \frac{d_i}{1 \text{ mm}} \tag{9}$$

Since

Aus

$$N_i^v = \frac{N_i^t}{E_{d_i}}$$

we may write:

folgt:

$$N_i^v = \frac{N_i^t}{d_i} \tag{10}$$

Calculation of N^v

Berechnung von N^v

We start out from our grain size distribution of n classes. Our correction procedure begins with the highest class since it is not subject to truncation effects from higher classes.

Als Ausgangspunkt dient uns die Korngrößenverteilung von n Klassen. Unsere Korrektur beginnt mit der höchsten Klasse, da sie – wie schon oben vermerkt – durch keine Verkleinerungseffekte von höheren Klassen behaftet ist.

We proceed in two steps. First, we calculate N_i^e which is the number of grains per mm^2 in the i^{th} class after correcting for truncation effects from all higher classes. Since no such effects are present in the highest class, we may write:

Wir gehen in zwei Schritten vor: Zuerst berechnen wir N_i^e , d.h. die Zahl der Körner pro mm^2 in der i^{ten} Klasse nach der Korrektur für die Verkleinerungseffektbeiträge von allen höheren Klassen. In der höchsten Klasse, wo keine solchen Beiträge vorliegen, können wir schreiben:

$$N_n^e = N_n^s \tag{11}$$

We then correct for the observed grains which obviously all belong to lower classes to obtain the desired value for N_n^t :

Anschließend bringen wir den Verkleinerungseffekt für die beobachteten Körner an, die natürlich alle in Wirklichkeit zu niedrigeren Klassen gehören, und erhalten so N_n^t :

$$N_n^t = \frac{N_n^e}{P_{(n,n)}} = \frac{N_n^s}{P_o} \tag{12}$$

and

und

$$N_n^v = \frac{N_n^t}{d_n} = \frac{N_n^s}{P_o d_n} \quad (13)$$

For the next lower class this procedure yields: Für die zweithöchste Klasse erhalten wir auf diese Weise:

$$N_{n-1}^e = N_{n-1}^s - N_n^t P_{(n-1,n)} \quad (14)$$

$$N_{n-1}^t = \frac{N_{n-1}^e}{P_{(n-1,n-1)}} = \frac{1}{P_o} [N_{n-1}^s - N_n^t P_{(n-1,n)}] \quad (15)$$

and

und

$$N_{n-1}^v = \frac{N_{n-1}^t}{d_{n-1}} = \frac{1}{P_o d_{n-1}} [N_{n-1}^s - N_n^t P_{(n-1,n)}] \quad (16)$$

For the i^{th} class this procedure yields: Für die i^{te} Klasse ergibt das beschriebene Verfahren:

$$N_i^e = N_i^s - N_{i+1}^t P_{(i,i+1)} - N_{i+2}^t P_{(i,i+2)} - \dots - N_n^t P_{(i,n)} \quad (17)$$

$$N_i^t = \frac{N_i^e}{P_{(i,i)}} = \frac{N_i^e}{P_o} \quad (18)$$

$$N_i^v = \frac{N_i^t}{d_i} = \frac{N_i^e}{P_o d_i} \quad (19)$$

N^t is obtained by summing up:

N^t wird durch Summierung erhalten:

$$N^t = \sum_{i=1}^n N_i^t \quad (20)$$

Since the number of grains we corrected for truncation is identical to the number of the observed grains, we also have: Da die Zahl der Körner, für welche der Verkleinerungseffekt korrigiert wurde, der Zahl der beobachteten Körner gleich ist, ergibt sich auch:

$$N^t = \sum_{i=1}^n N_i^t = \sum_{i=1}^n N_i^s = N^s \quad (21)$$

After correction for sampling we obtain the desired N^v : Nach Korrektur für den Erfassungseffekt erhält man schließlich den gewünschten Wert für N^v :

$$N^v = \sum_{i=1}^n N_i^v = \sum_{i=1}^n \frac{N_i^t}{d_i} \quad (22)$$

The mean spatial grain diameter \overline{D}_v may then be defined by the following relation: Der mittlere räumliche Korndurchmesser \overline{D}_v kann durch folgende Beziehung definiert werden:

$$\bar{D}_v = \frac{1}{k} \sum_{j=1}^k D_{vj} = \frac{\sum_{i=1}^n N_i^v D_{vi}}{\sum_{i=1}^n N_i^v} \quad (23)$$

where k signifies the total number of observed grains.

Let us now compare equation [22] with *DeHoff's* equation valid for the monodispersion of spheres³):

$$N^v = \frac{N^s}{\bar{D}_v} \quad (3)$$

where \bar{D}_v is the real sphere diameter ($\bar{D}_v \equiv D_v$).

For this purpose we remember that the grains in each class may be considered as forming a monodistribution represented by the upper grain size value of the class, to that N^v is the sum of the spheres of the monodistributions of all classes.

The mean spatial grain diameter \bar{D}_v defined by [23] may now be expressed by the following relation:

$$\bar{D}_v = \frac{\sum_{i=1}^n \frac{N_i^t}{D_{vi}} D_{vi}}{N^v} = \frac{\sum_{i=1}^n N_i^t}{N^v} = \frac{N^t}{N^v} \quad (24)$$

Furthermore, for the actual polydistribution: $N^t = N^s$ but $N_i^t \neq N_i^s$.

We obtain thus

$$\bar{D}_v = \frac{N^t}{N^v} = \frac{N^s}{N^v} \quad (25)$$

and finally

$$N^v = \frac{N^s}{\bar{D}_v} \quad (26)$$

This is exactly the equation which we have presented in the introduction as equation [3], showing that *DeHoff's* equation, under the above assumption, is also valid for a polydistribution of spheres.

Equation [26] is the desired relation between planar observation of a granular (spherical) ar-

wobei k für die Gesamtzahl der Körner steht.

Gleichung [22] kann mit *De Hoff's* Gleichung für die Monodispersion verglichen³) werden:

wo \bar{D}_v der tatsächliche Kugeldurchmesser (Korndurchmesser) ist, d. h. $\bar{D}_v \equiv D_v$.

Dabei erinnern wir daran, daß wir die Körner in jeder Klasse als eine Monodispersion ansehen, welche durch den oberen Korndurchmesserwert charakterisiert wird. Demnach ist N^v die Summe der Körner der Monodispersionen von allen Klassen.

Der mittlere räumliche Korndurchmesser, \bar{D}_v , welcher durch die Gleichung [23] definiert ist, kann nun durch folgende Beziehung ausgedrückt werden:

Ferner gilt für die tatsächliche Polydispersion $N^t = N^s$, obgleich $N_i^t \neq N_i^s$.

Wir erhalten demnach

und schließlich

Dies ist genau die Gleichung [3] der Einleitung, was bedeutet, daß *De Hoff's* Beziehung unter den von uns oben gemachten Annahmen auch für die Polydispersion von kugelförmigen Körnern gültig ist.

Gleichung [26] ist die gesuchte Beziehung zwischen Beobachtungen am ebenen Schliff einer

rangement and its probable spatial parameters. Equations [13] and [22] may readily be programmed and give a rapid answer for N^v and \bar{D}_v , once the planar observations made by an automatic image analyser have been classified.

Generally speaking, the truncation correction shifts the observed grain size histogram to higher values, whereas the correction for the sampling effect displaces this histogram to lower values.

Appendix. List of symbols used

Anhang. Liste der verwendeten Symbole

α	geometric group modulus geometrischer Gruppenmodul
c	lower limit of a class untere Klassengrenze
d_i	Feret diameter of the i^{th} class, $d_i =]c\alpha^{i-1}, c\alpha^i]$ Feretdurchmesser der i^{ten} Klasse, $d_i =]c\alpha^{i-1}, c\alpha^i]$
d_{qi}	Feret diameter measured by the image analyser Feretdurchmesser, wie er im Bildanalyser gemessen wird
\bar{d}_q	mean grain diameter of d_q mittlerer Korndurchmesser von d_q
D_{vi}	three-dimensional grain diameter räumlicher Korndurchmesser
\bar{D}_v	mean grain diameter of D_{vi} mittlerer Korndurchmesser von D_{vi}
\bar{d}_v	mean grain diameter calculated from the mean volume \bar{V} mittlerer Korndurchmesser aus dem mittleren Kornvolumen \bar{V} bestimmt
\bar{V}	mean grain volume defined by V_{ξ}/N^v mittleres Kornvolumen, definiert durch V_{ξ}/N^v
ξ	recrystallized volume fraction rekristallisierter Volumenanteil
s_i	area of grain of diameter d_i Fläche eines Kornes vom Durchmesser d_i
S	total area of recrystallized grains Gesamtfläche der kristallisierten Körner

Korngrößenverteilung und ihren räumlichen Parametern. Gleichungen [13] und [22] können leicht programmiert werden und gestatten, sofort die Daten für N^v und \bar{D}_v zu erhalten, sobald die durch einen automatischen Bildanalyser erfaßten ebenen Beobachtungen klassifiziert sind.

Ganz allgemein stellt man fest, daß das Korngrößenhistogramm durch die Korrektur des Verkleinerungseffektes nach höheren Werten verschoben wird, während die Korrektur für den Erfassungseffekt das Histogramm zu kleineren Werten hin verlegt.

V_i	volume of grain of diameter d_i Volumen der Körner vom Durchmesser d_i
V_{ξ}	total recrystallized volume per unity of volume ($= \xi$) gesamtes rekristallisiertes Volumen pro Volumeneinheit ($= \xi$)
N_i^s	Number of grains per mm^2 of the i^{th} class as measured by the image analyser Anzahl der Körner pro mm^2 der i^{ten} Klasse, wie sie im Bildanalyser erfaßt wird
N_i^e	idem but after correction for the contributions by all classes superior to the i^{th} class Anzahl der Körner pro mm^2 , nach Korrektur für die Beiträge von allen Klassen höher als die i^{te} Klasse
N_i^t	true number of grains per mm^2 of the i^{th} class after truncation correction wirkliche Anzahl der Körner pro mm^2 der i^{ten} Klasse, nach Korrektur für den Verkleinerungseffekt
N_i^v	number of grains per mm^3 of the i^{th} class Anzahl der Körner pro mm^3 der i^{ten} Klasse
$E_{(i)}$	sampling probability of a grain in the i^{th} class per mm^3 Erfassungswahrscheinlichkeit pro mm^3 in der i^{ten} Klasse
P_0	basic probability of truncation elementare Wahrscheinlichkeit des Verkleinerungseffektes
$P_{(i,k)}$	probability that a grain of the k^{th} class is truncated in the i^{th} class Wahrscheinlichkeit, daß ein Korn der k^{ten} Klasse in der i^{ten} Klasse beobachtet wird

Sonderdruck aus:

Praktische Metallographie	Practical Metallography
--------------------------------------	------------------------------------

**Zweisprachig
Deutsch/Englisch**

**Bilingual
English/German**



Dr. Riederer Verlag GmbH
Postfach 104052 7000 Stuttgart 1

Part II: Application to the Recrystallization Kinetics of Cold Drawn OF-Cu Bars

Teil II: Anwendung auf die Rekristallisationskinetik von kaltgezogenen OF-Cu-Stangen

The details of the experimental procedures applied to our studies on the recrystallization kinetics in polycrystalline 99.99 % OF-Cu samples, previously cold drawn 52 % have been published elsewhere¹). Therefore, we recall here merely those elements which are important for the application of our method to grain size analysis.

Image Analysis

Thanks to an excellent orientation contrast in the SEM, recrystallized grains may readily be distinguished from cold worked grains at any stage of recrystallization. From micrographs taken in the SEM we traced the circumference of all the recrystallized grains on a transparent paper which was then analysed by the Quantimet. The planar grain size was measured as the average between the maximum and minimum Feret diameter measured for each grain in 16 directions:

$$d_q = \frac{d_{fmax.} + d_{fmin.}}{2} \quad (1)$$

(A complete list of symbols is given in Part I of this paper.)

Simultaneously, the number of recrystallized grains per unit area, N^S was counted. In order to guarantee good reproducibility ($\Delta d \pm 5\%$), the total area analysed for each recrystallized state was at least 0.25 mm^2 .

Statistical Aspects

We distributed the observed grain sizes d_q into n logarithmic classes. In our case we found that $n = 30$ was optimal, since a lower number reduces

Der experimentelle Aufbau unserer Studie über die Rekristallisationskinetik von kaltgezogenen OF-Cu-Stangen wurde in ¹) ausführlich beschrieben. Wir beschränken uns hier deshalb auf diejenigen Aspekte, welche zum Verständnis der Anwendung unserer Methode auf die Korngrößenanalyse von Wichtigkeit sind.

Bildanalyse

Dank dem ausgezeichneten Orientierungscontrast im REM können rekristallisierte Körner leicht von kaltverformten Körnern unterschieden werden, und dies in jedem Zeitpunkt der Rekristallisation. Wir zeichneten die Grenzen der rekristallisierten Körner auf ein Transparentpapier auf, welches über die im REM aufgenommenen Mikrophotos gelegt wurde. Die so erhaltene Kornstruktur, d. h. die rekristallisierte Korngröße und deren Verteilung, wurde dann im Quantimet automatisch ausgemessen. Die zweidimensionale Korngröße wurde als Mittelwert zwischen maximalem und minimalem Feretdurchmesser definiert, der für jedes rekristallisierte Korn in 16 Richtungen bestimmt wurde:

(Eine vollständige Liste der hier verwendeten Symbole ist in Teil I dieser Veröffentlichung gegeben.)

Gleichzeitig wurde im Quantimet die Zahl der rekristallisierten Körner pro Flächeneinheit, N^S , gezählt. Um eine gute Reproduzierbarkeit zu garantieren ($\Delta = \pm 5\%$) wurde für jeden erfaßten rekristallisierten Zustand eine Fläche von mindestens $0,25 \text{ mm}^2$ ausgemessen.

Statistische Aspekte

Die beobachteten Korngrößen d_q wurden in n logarithmische Klassen aufgeteilt. In unserem Falle war $n = 30$ optimal, da ein kleineres n die

the precision, whereas a higher number produces "holes" in the grain size distribution. The grain diameters varied between 2 μm and 200 μm . Thus, the value for the geometric group modulus α becomes:

$$\ln \alpha = \frac{\ln 200 - \ln 2}{30} \quad (2)$$

or $\alpha = 1.1659$

Introducing this value into equation [6] of part I gives us the basic probability $P_0 = 0.514$.

It follows from this value for P_0 that in any class of grains 51 % of these grains when cut by a plane belong to that class, whereas 49 % are truncated into lower classes.

Correction for Truncation and Sampling

With the value of $\alpha = 1.1659$ and the choice of $n = 30$ we may now calculate the truncation probabilities $P(i,k)$ according to equation [7] (part I). The results obtained are presented in table 1. Using equations [11] through [19] (part I), we may then calculate the value N_i^t corrected for truncation and the value for N_i^v . Finally, equation [22] (part I) permits us to obtain the desired value for N^v , and [25] (part I) the value for \overline{D}_v . Figure 1a shows the histogram of the grain size distribution as determined by the image analyser on the cross section of a specimen that was 79 % recrystallized after 16 h at 270 °C. The histogram in fig. 1b results from correction for truncation whereas fig. 1c was obtained when, in addition, the sampling effect was corrected for. We see – as already mentioned above – that whereas truncation correction tends to shift the histogram of the planar size distribution to higher grain size values, sampling has the opposite effect.

From figs. 1b and c we see also that N_i^t and N_i^v take on negative values in the lowest classes. Yet, even where N^t contains negative terms it is often larger than N^s .

Genauigkeit vermindert, während ein größeres n zu große statistische Fluktuationen in der Korngrößenverteilung hervorruft. Die Korngrößen variierten zwischen 2 μm und 200 μm . Der Wert für den Gruppenmodul α wird somit

was zu $\alpha = 1.1659$ führt.

Wird dieser Wert in die Gleichung [6] von Teil I eingesetzt, so ergibt sich für die elementare Wahrscheinlichkeit $P_0 = 0.514$.

Aus diesem Wert für P_0 ersieht man, daß die Körner, falls sie in irgend einer Ebene geschnitten werden, in jeder Klasse zu 51 % in ihrer eigenen Klasse erscheinen, während 49 % in niedrigere Klassen versetzt werden.

Korrektur für den Verkleinerungs- und für den Erfassungseffekt

Mit dem Wert für $\alpha = 1.1659$ und der Wahl für $n = 30$ können wir jetzt die Verkleinerungswahrscheinlichkeiten $P(i,k)$ gemäß Gleichung [7] von Teil I berechnen. Die so erhaltenen Resultate sind in der Tabelle 1 zusammengestellt. Unter Anwendung der Gleichungen [11] bis [19] von Teil I können wir dann N_i^t bestimmen, welche Werte hinsichtlich des Verkleinerungseffektes korrigiert sind, und ebenfalls N_i^v . Schließlich gestattet uns Gleichung [22] (Teil I) den gewünschten Wert für N^v und Gleichung [25] (ebenfalls von Teil I) den Wert für \overline{D}_v zu erhalten. Fig. 1a zeigt das Histogramm der Korngrößenverteilung, wie es im Bildanalysator auf dem ebenen Schliff einer Probe erhalten wurde, die nach 16 h bei 270 °C zu 79 % rekristallisiert war. Das Histogramm in Fig. 1b wurde nach Korrektur für den Verkleinerungseffekt erhalten. Wir sehen – wie dies schon in Teil I erwähnt wurde – daß die Korrektur für den Verkleinerungseffekt das Histogramm zu höheren Werten verschiebt, während durch die Korrektur für den Erfassungseffekt die gegenläufige Wirkung erzielt wird.

Man erkennt aus Fig. 1b und c, daß N_i^t und N_i^v in den niedrigsten Klassen negative Werte annehmen können. Und dennoch ist der Wert für N^t meistens größer als für N^s , selbst dann, wenn N^t negative Glieder enthält.

Table 1. Truncation probabilities $P_{(i,k)}$ for the case of $n = 30$ and $\alpha = 1.1659$

Tabelle 1. Wahrscheinlichkeiten für den Verkleinerungseffekt $P_{(i,k)}$ für $n = 30$ und $\alpha = 1.1659$

(i,k)	P_{tot}	$P_{(k,k)}=P_0$	$P_{(k-1,k)}$	$P_{(k-2,k)}$	$P_{(k-3,k)}$	$P_{(k-4,k)}$	$P_{(k-5,k)}$	$P_{(k-6,k)}$	$P_{(k-7,k)}$	$P_{(i,k)}$
(i,30)	0.9999	$P_{(30,30)}$	$P_{(29,30)}$	$P_{(28,30)}$	$P_{(27,30)}$	$P_{(26,30)}$	$P_{(25,30)}$	$P_{(24,30)}$	$P_{(23,30)}$	$P_{(i,30)}$
(i,29)	0.9999	$P_{(29,29)}$	$P_{(28,29)}$	$P_{(27,29)}$	$P_{(26,29)}$	$P_{(25,29)}$	$P_{(24,29)}$	$P_{(23,29)}$	$P_{(22,29)}$	$P_{(i,29)}$
...
(i,8)	0.9561	$P_{(8,8)}$	$P_{(7,8)}$	$P_{(6,8)}$	$P_{(5,8)}$	$P_{(4,8)}$	$P_{(3,8)}$	$P_{(2,8)}$	$P_{(1,8)}$	—
(i,7)	0.9399	$P_{(7,7)}$	$P_{(6,7)}$	$P_{(5,7)}$	$P_{(4,7)}$	$P_{(3,7)}$	$P_{(2,7)}$	$P_{(1,7)}$	—	—
(i,6)	0.9173	$P_{(6,6)}$	$P_{(5,6)}$	$P_{(4,6)}$	$P_{(3,6)}$	$P_{(2,6)}$	$P_{(1,6)}$	—	—	—
(i,5)	0.8857	$P_{(5,5)}$	$P_{(4,5)}$	$P_{(3,5)}$	$P_{(2,5)}$	$P_{(1,5)}$	—	—	—	—
(i,4)	0.8409	$P_{(4,4)}$	$P_{(3,4)}$	$P_{(2,4)}$	$P_{(1,4)}$	—	—	—	—	—
(i,3)	0.7758	$P_{(3,3)}$	$P_{(2,3)}$	$P_{(1,3)}$	—	—	—	—	—	—
(i,2)	0.6774	$P_{(2,2)}$	$P_{(1,2)}$	—	—	—	—	—	—	—
(i,1)	0.5141	$P_{(1,1)}$	—	—	—	—	—	—	—	—
		0.5141	0.1632	0.0984	0.0651	0.0448	0.0316	0.0226	0.0163	...

Example:

- a) $P_{(30,30)} = P_{(8,8)} = 0.514$ indicates that a grain of the 30th or the 8th class has a probability of 51.4% to find itself in its proper class (30th or 8th, respectively).
- b) $P_{(28,29)} = P_{(6,7)} = 0.1632$, indicates that a grain of the 29th or of the 7th class has a probability of 16.32% to find itself in the 28th and 6th class respectively.

Beispiel:

- a) $P_{(30,30)} = P_{(8,8)} = 0.514$ bedeutet, daß ein Korn der 30. bzw. der 8. Klasse mit einer Wahrscheinlichkeit von 51.4% in seiner eigenen (also in der 30. bzw. der 8.) Klasse beobachtet wird.
- b) $P_{(28,29)} = P_{(6,7)} = 0.1632$ bedeutet, daß ein Korn der 29. oder der 7. Klasse mit einer Wahrscheinlichkeit von 16.32% in der 28. bzw. der 6. Klasse beobachtet wird.

Obviously, our correction for truncation contains a certain imprecision which is most pronounced in the lowest classes. In order to eliminate the negative terms and to come closer to $N^i = N^s$ as required by [21] (part I), we modified the expressions [6] and [7] (part I), for the truncation probabilities P_0 and $P_{(i,j)}$ in the following fashion:

Selbstverständlich ist unsere Korrektur für den Verkleinerungseffekt mit einer gewissen Ungenauigkeit behaftet, welche in den kleinsten Klassen am ausgeprägtesten ist. Um die negativen Glieder zu eliminieren und auch, um näher an die Gleichheit von N^i und N^s zu kommen, wie durch Gleichung [21] in Teil I gefordert, modifizierten wir die Gleichungen [6] und [7] (Teil I) für die Wahrscheinlichkeiten des Verkleinerungseffektes, P_0 und $P_{(i,k)}$ auf folgende Weise:

$$P_0^* = P_0 \frac{1}{\sqrt{1 - \alpha^{-2(k-i_0)}}} \quad i_0 < k \quad (3)$$

and

und

$$P_{(i,k)}^* = P_{(i,k)} \frac{1}{\sqrt{1 - \alpha^{-2(k-i_0)}}} \quad i_0 < i \leq k \quad (4)$$

No.	Diameter	count
1	2.00-	0
2	2.33-	3
3	2.72-	7 X
4	3.17-	10 X
5	3.70-	13 XXX
6	4.31-	13 XXX
7	5.02-	39 XXXXX
8	5.86-	75 XXXXXXXXXXX
9	6.83-	79 XXXXXXXXXXXXX
10	7.96-	73 XXXXXXXXXXXXX
11	9.28-	137 XXXXXXXXXXXXXXXXXXXXX
12	11.82-	164 XXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXX
13	12.62-	180 XXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXX
14	14.71-	226 XXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXX
15	17.15-	232 XXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXX
16	20.00-	226 XXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXX
17	23.31-	252 XXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXX
18	27.18-	167 XXXXXXXXXXXXXXXXXXXXX
19	31.69-	137 XXXXXXXXXXXXXXXXXXXXX
20	36.93-	93 XXXXXXXXXXXXXXX
21	43.08-	43 XXXXXXX
22	50.22-	13 XX
23	58.36-	3
24	68.27-	0

Total $\Sigma N_i^0 = 2242/\text{mm}^2$

No.	Diameter	count
1	2.00-	-6
2	2.33-	-4
3	2.72-	-4
4	3.17-	-8
5	3.70-	9 X
6	4.31-	-8
7	5.02-	-2
8	5.86-	39 XXXXXX
9	6.83-	31 XXXXX
10	7.96-	-9
11	9.28-	140 XXXXXXXXXXXXXXX
12	11.82-	135 XXXXXXXXXXXXXXX
13	12.62-	139 XXXXXXXXXXXXXXX
14	14.71-	228 XXXXXXXXXXXXXXX
15	17.15-	249 XXXXXXXXXXXXXXX
16	20.00-	239 XXXXXXXXXXXXXXX
17	23.31-	351 XXXXXXXXXXXXXXX
18	27.18-	208 XXXXXXXXXXXXXXX
19	31.69-	239 XXXXXXXXXXXXXXX
20	36.93-	156 XXXXXXXXXXXXXXX
21	43.08-	74 XXXXXXX
22	50.22-	23 XX
23	58.36-	6 X
24	68.27-	0

Total $\Sigma N_i^1 = 2265/\text{mm}^2$

Fig. 1b. After correction for truncation

Fig. 1b. Nach Korrektur für den Verkleinerungseffekt

Here, i_0 is the lowest class fixed by the resolution of our Quantimet measurements. We took as i_0 that class beyond which the grains may first be detected. The corrected histograms are given in figs. 1d and e.

Table 2 contains the observed and the corrected values for N^1 , N^y and \bar{D}_v for 24 states reached in the course of recrystallization at temperatures situated between 270 and 330 °C for various

Figs. 1a to e. Grain size histogram of a cold worked and partly recrystallized OF-Cu sample as measured by the image analyser after annealing for 16 h at 270 °C

Fig. 1a bis e. Korngrößenhistogramm einer 52 % kaltgezogenen und teilweise rekristallisierten OF-Cu-Probe, wie es im Bildanalyser nach Glühung von 16 h bei 270 °C erstellt wurde.

Fig. 1a. Original data

Fig. 1a. Originalhistogramm

No.	Diameter	count
1	2.00-	-3021
2	2.33-	-1887
3	2.72-	-1484
4	3.17-	-2367
5	3.70-	2194 XXXXXX
6	4.31-	-1782
7	5.02-	-518
8	5.86-	8620 XXXXXXXXXXXXXXXXXXXXX
9	6.83-	6416 XXXXXXXXXXXXXXX
10	7.96-	-1031
11	9.28-	12937 XXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXX
12	11.82-	10711 XXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXX
13	12.62-	9477 XXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXX
14	14.71-	13303 XXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXX
15	17.15-	12439 XXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXX
16	20.00-	10254 XXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXX
17	23.31-	12928 XXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXX
18	27.18-	6354 XXXXXXXXXXXXXXX
19	31.69-	6463 XXXXXXXXXXXXXXX
20	36.93-	3623 XXXXXXXXXXX
21	43.08-	1478 XXXX
22	50.22-	401 X
23	58.36-	93
24	68.27-	0

Total $\Sigma N_i^y = 105596/\text{mm}^2$

Fig. 1c. After additional correction for sampling

Fig. 1c. Nach zusätzlicher Korrektur für den Erfassungseffekt

Hier bezeichnet i_0 die niedrigste Klasse, welche durch die Auflösung unseres Bildanalyzers die ersten Körner beobachtet werden. Die so korrigierten Histogramme sind in Fig. 1d und e wiedergegeben.

Die Tabelle 2 enthält die beobachteten und die korrigierten Werte von N^1 , N^y und \bar{D}_v für 24 Zustände, welche im Verlauf unserer Rekristallisationsstudien untersucht wurden, und die sich

No.	Diameter	count
1	2.00-	0
2	2.33-	0
3	2.72-	0
4	3.17-	0
5	3.70-	5
6	4.31-	-4
7	5.02-	1
8	5.86-	51 XXXXX
9	6.83-	46 XXXXX
10	7.96-	-4
11	9.28-	134 XXXXXXXXXXXXXXX
12	11.82-	131 XXXXXXXXXXXXXXX
13	12.62-	137 XXXXXXXXXXXXXXX
14	14.71-	225 XXXXXXXXXXXXXXX
15	17.15-	246 XXXXXXXXXXXXXXX
16	20.00-	237 XXXXXXXXXXXXXXX
17	23.31-	349 XXXXXXXXXXXXXXX
18	27.18-	207 XXXXXXXXXXXXXXX
19	31.69-	238 XXXXXXXXXXXXXXX
20	36.95-	156 XXXXXXXXXXXXXXX
21	43.08-	74 XXXXXXX
22	50.22-	23 XX
23	58.56-	6 X
24	68.27-	0

Total $\sum N_i^I = 2258/\text{mm}^2$

Fig. 1d. As fig. 1b but after correction for negative values
 Fig. 1d. Wie Fig. 1b, aber nach Korrektur für negative Werte bei den niedrigsten Klassen

times. The fraction of recrystallized area, as seen by the image analyzer is denoted by ξ . The significance of the last column will be explained in the following chapter.

Discussion

The principle used implicitly in our mathematical treatment states that the probability that an event will occur is equal to the relative frequency with which it produces itself when a large number of observations are made. In our case, each specimen on which we have analysed an area of 0.25 mm² contains between 300 and 700 recrystallized grains depending upon temperature and duration of the heat treatment applied. This seems to us a sufficient number for a representative statistical analysis. Furthermore, since recrystallized grains are of rather equiaxed shape it is certainly justified to use the solutions derived for spheres.

As far as the sequence of our mathematical treatment is concerned we have first corrected

No.	Diameter	count
1	2.00-	0
2	2.33-	0
3	2.72-	0
4	3.17-	0
5	3.70-	1102 XXX
6	4.31-	-1031
7	5.02-	112
8	5.86-	7540 XXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXX
9	6.83-	5796 XXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXX
10	7.96-	-589
11	9.28-	12390 XXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXX
12	11.82-	10408 XXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXX
13	12.62-	9325 XXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXX
14	14.71-	17030 XXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXX
15	17.15-	12291 XXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXX
16	20.00-	10176 XXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXX
17	23.31-	12830 XXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXX
18	27.18-	6523 XXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXX
19	31.69-	6436 XXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXXX
20	36.95-	3611 XXXXXXXXX
21	43.08-	1474 XXXX
22	50.22-	400 X
23	58.56-	93
24	68.27-	0

Total $\sum N_i^V = 111980/\text{mm}^2$

Fig. 1e. As fig. 1c but after correction for negative values
 Fig. 1e. Wie Fig. 1c, aber nach Korrektur für negative Werte bei den niedrigsten Klassen

über das Temperaturgebiet zwischen 270 °C und 330 °C während verschiedenen Zeiten erstreckten. Das Verhältnis zwischen jeweils rekristallisierter zur gesamten Kornfläche wurde mit ξ bezeichnet. Die Bedeutung der letzten Kolonne dieser Tabelle soll im folgenden Abschnitt erläutert werden.

Diskussion

Das Prinzip, welches implizit in unserer mathematischen Behandlung enthalten ist, besagt, daß die Wahrscheinlichkeit, mit der ein Vorgang auftritt, der Häufigkeit der daran beteiligten Elemente gleich ist, vorausgesetzt, daß die Zahl der Beobachtungen sehr groß ist. In unserem Fall enthält jede der analysierten Proben innerhalb der Fläche von 0,25 mm² zwischen 300 bis 700 rekristallisierte Körner, je nach Glüh Temperatur und -zeit. Dies dürfte eine genügend große Zahl sein für eine repräsentative statistische Analyse. Da ferner die rekristallisierten Körner eine gleichmäßige Form aufweisen, ist es sicher gerechtfertigt, Beziehungen anzuwenden, welche für Kugeln hergeleitet wurden.

Was den Ablauf unserer mathematischen Behandlung anbetrifft, so haben wir zuerst die

Table 2. Results obtained for recrystallized grain parameters after correction for truncation and sampling effects

Tabelle 2. Resultate der rekristallisierten Kornparameter nach Korrektur für Verkleinerungs- und Erfassungseffekt

No.	Specimen State Probenzustand	Measurements by QTM QTM-Messungen			Results obtained by calculation berechnete Ergebnisse				
		ξ	\bar{d}_q [μm]	N^9/mm^2	\bar{D}_v [μm]	\bar{d}_v [μm]	N^1/mm^2	$N_{\text{prob.}}^y/\text{mm}^3$	$N_{[111]}^y/\text{mm}^{3**}$
1	initial*)	1	35.2	927	34.3	41.3	931	27 100	25 300
2	270 °C/4 h	0.20	15.8	926	15.7	18.7	921	58 800	56 000
3	270 °C/6 h	0.276	15.7	1 293	15.1	18.2	1 294	85 900	78 800
4	270 °C/10 h	0.53	16.7	2 133	17.0	20.1	2 130	125 400	125 800
5	270 °C/16 h	0.79	19.7	2 242	18.9	23.4	2 239	118 500	114 200
6	270 °C/24 h	0.90	21.3	2 225	21.8	25.6	2 235	102 600	102 900
7	290 °C/1 h	0.21	17.4	786	17.5	20.8	775	44 300	44 100
8	290 °C/90 min	0.37	15.9	1 672	16.2	19.0	1 672	103 400	101 700
9	290 °C/2 h	0.50	17.2	1 842	17.0	20.7	1 833	107 800	108 600
10	290 °C/3 h	0.74	18.7	2 301	18.7	22.6	2 290	122 400	125 100
11	290 °C/6 h	0.90	20.8	2 347	21.6	25.2	2 327	107 700	110 500
12	310 °C/16 min	0.22	18.0	786	18.7	21.5	792	42 400	41 700
13	310 °C/24 min	0.35	17.1	1 317	17.3	20.6	1 313	76 000	77 400
14	310 °C/30 min	0.50	18.0	1 759	18.3	21.5	1 754	96 000	94 800
15	310 °C/50 min	0.79	19.1	2 510	20.0	22.9	2 519	125 900	125 300
16	310 °C/70 min	0.92	21.4	2 241	21.9	26.0	2 221	101 400	103 800
17	330 °C/4 min	0.13	13.3	930	14.2	16.0	936	65 700	61 100
18	334 °C/4 min	0.27	16.2	1 134	15.7	19.2	1 138	72 400	70 200
19	330 °C/8 min	0.52	18.2	1 790	18.8	21.8	1 798	95 600	95 300
20	330 °C/12 min	0.72	19.8	2 054	20.4	23.9	2 046	100 500	102 500
21	330 °C/20 min	0.91	21.7	2 154	22.4	26.2	2 168	97 000	98 400
22***)	11% + 270 °C/2h	0.22	16.5	897	16.7	19.8	888	53 300	54 100
23***)	11% + 270 °C/5h	0.34	17.2	1 283	17.2	20.5	1 292	75 100	73 500
24***)	11% + 270 °C/8h	0.53	19.0	1 647	19.3	22.9	1 646	85 400	85 400

*) completely annealed, prior to 52% cold work / vollständig weichgeglüht, danach 52%iges Kaltziehen

**) $N_{[111]}^y/\text{mm}^3$ calculated from equation [11] / $N_{[111]}^y/\text{mm}^3$ wurde mittels Gleichung [11] berechnet

***) 11% recrystallized at 330 °C / 11% rekristallisiert bei 330 °C

for truncation and then for sampling, since the former is independent of the latter. On the other hand, the sampling result is always related to truncation. In fact, the sampling probability depends directly on the grain diameter. Thus, once truncation has been corrected for, the distribution of the true grain diameters is unveiled and the sampling effect is then identifiable.

Korrektur für den Verkleinerungseffekt und dann erst diejenige für den Erfassungseffekt angebracht, da ja ersterer von letzterem unabhängig ist. Andererseits steht aber das Resultat des Erfassungseffektes stets in enger Beziehung zum Verkleinerungseffekt, da ja der Erfassungseffekt direkt vom Korndurchmesser abhängt. Sobald daher die Korrektur für den Verkleinerungseffekt angebracht ist, wird die Verteilung der wirklichen Korndurchmesser ersichtlich und der Erfassungseffekt kann dann identifiziert werden.

The success of our model is underlined by the fact that $N^l \approx N^s$ as may be seen in table 2. This latter relation signifies that the truncation effect is well estimated by our model and that the correction of the probabilities in terms of $P^*(i,k)$ is reasonable. Nevertheless, the definition of grain size is rather arbitrary. Furthermore, depending on the definition selected, one might obtain different results in stereological considerations. It seemed to us, therefore, interesting to examine possible relationships between \overline{d}_q , \overline{D}_v and \overline{d}_v (calculated from the mean volume). Our respective study yielded a rather astonishing first result, namely that $\overline{D}_v = \overline{d}_q$. This means that in our case the truncation effect is completely compensated by the sampling effect. This is all the more astonishing as the sampling effect is strongly dependent on grain size distribution, whereas truncation is not. We do not yet know whether this result is purely accidental or whether it has more general applicability. At any rate the equality between \overline{d}_q and \overline{D}_v clearly shows that the contribution of the sampling effect to spatial considerations is of the same order as that exerted by the truncation effect. A considerable error may thus be committed by neglecting it.

When following grain size evolution during recrystallization we are also interested in the variation of \overline{d}_v as defined by the mean volume \overline{V} of an equivalent sphere, since in the course of recrystallization

$$N^v \cdot \overline{V} = V_\xi = \xi \quad (5)$$

$$\overline{d}_v = \sqrt[3]{\frac{\pi}{6} \overline{V}} \quad (6)$$

From the values in table 2 we obtain by linear regression:

$$\overline{d}_v \approx 1.2 \overline{d}_q \quad (7)$$

This relationship has the decisive advantage that \overline{V} may be calculated directly from planar measurements, since

$$\overline{V} = \frac{\pi}{6} (1.2 \overline{d}_q)^3 \quad (8)$$

Der Erfolg unseres Modelles wird dadurch unterstrichen, daß $N^l \approx N^s$, wie aus Tabelle 2 ersichtlich. Dies bedeutet, daß der Verkleinerungseffekt durch unser Modell gut abgeschätzt wird und daß die Korrektur für die Wahrscheinlichkeiten als $P^*(i,k)$ vernünftig erscheint. Man darf jedoch nicht vergessen, daß die Definition einer Korngröße recht willkürlich ist. Je nach der gewählten Definition kann man sogar möglicherweise verschiedene Resultate aus stereologischen Betrachtungen erhalten. Es schien uns daher interessant zu sein, mögliche Beziehungen zwischen \overline{d}_q , \overline{D}_v und \overline{d}_v (aus dem mittleren Volumen berechnet) zu untersuchen. Unsere diesbezügliche Studie brachte dabei ein auf den ersten Blick überraschendes Resultat hervor, nämlich daß $\overline{D}_v = \overline{d}_q$. Dies bedeutet, daß in unserem Falle der Verkleinerungseffekt genau durch den Erfassungseffekt kompensiert wird. Dies scheint um so erstaunlicher, als der Erfassungseffekt stark von der Korngrößenverteilung abhängt, während dies beim Verkleinerungseffekt nicht der Fall ist. Wir wissen noch nicht, ob dieses Resultat einen zufälligen Charakter oder Allgemeingültigkeit hat. Auf jeden Fall zeigt die Gleichheit von \overline{d}_q und \overline{D}_v , daß der Beitrag des Erfassungseffektes zur räumlichen Betrachtung von der gleichen Größenordnung ist wie derjenige des Verkleinerungseffektes. Folglich kann ein bedeutender Fehler auftreten, falls er vernachlässigt wird.

Bei einer Betrachtung der Neukornentwicklung während der Rekristallisation sind wir auch an der Veränderung von \overline{d}_v interessiert, da im Verlaufe der Rekristallisation

Aus den Werten der Tabelle 2 erhalten wir durch lineare Regression:

Diese Beziehung hat den entscheidenden Vorteil, daß \overline{V} direkt aus Messungen an einem ebenen Schliiff abgeleitet werden kann, da

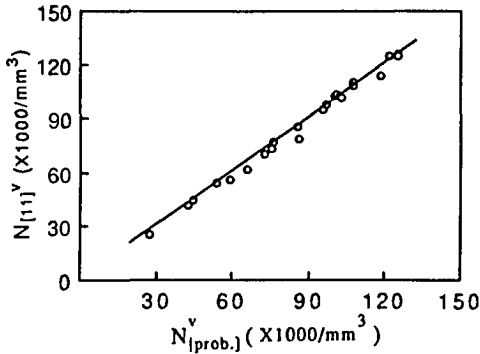


Fig. 2. Comparison between N^V as obtained from probability calculations, $N_{prob.}^V$, and that calculated directly from equation [11], $N_{[111]}^V$

Fig. 2. Vergleich zwischen N^V -Werten, wie sie aus Wahrscheinlichkeitsbetrachtungen erhalten wurden, $N_{prob.}^V$, und den Werten $N_{[111]}^V$, die direkt aus Gleichung [11] errechnet wurden

It is then also easy to calculate the recrystallized fraction, ξ .

Es ist dann ebenfalls sehr einfach, den rekristallisierten Anteil, ξ , zu berechnen.

We recall that:

Wir erinnern daran, daß

$$N^V = \frac{N^S}{D_v} \quad (9)$$

We may use equation [7] to derive a very simple and straight forward relation between N^V on one hand, and ξ and \bar{d}_q (both measured by the image analyser), on the other hand:

Wir können nun Gleichung [7] benutzen, um eine ganz einfache und direkte Beziehung zwischen N^V einerseits, und ξ und \bar{d}_q (im Bildanalyser gemessen), andererseits herzuleiten

$$V_\xi = \xi = N^V \left(\frac{\pi}{6} \bar{d}_v^3 \right) = N^V \left[\frac{\pi}{6} (1.2 \bar{d}_q)^3 \right] \quad (10)$$

This yields for N^V :

Dies ergibt für N^V :

$$N_v = \frac{\xi}{\frac{\pi}{6} (1.2 \bar{d}_q)^3} = \frac{\xi}{0.905 \bar{d}_q^3} \quad (11)$$

The values thus obtained are assembled in the last column of table 2. We are now in a position to compare N^V as obtained from [11] with N^V resulting from our probability calculations. The respective results are plotted in fig. 2. We see that an excellent correspondence exists between N^V obtained from complex probability calculation and N^V calculated according to [11]. This indicates also that the relation [7] between \bar{d}_q and \bar{d}_v is indeed a very good one. The above way of proceeding permits thus to describe rather completely the grain structure of our study in a very simple way which does not require the substantial efforts and complex methods of probability and statistics which we developed and exposed previously to transform planar into spatial grain

Die so erhaltenen Werte sind in der letzten Kolonne der Tabelle 2 zusammengestellt. Wir sind nun in der Lage, den Wert für N^V gemäß Gleichung [11] mit demjenigen für N^V zu vergleichen, den wir durch die Wahrscheinlichkeitsberechnungen erhalten haben. Die entsprechenden Werte sind in Fig. 2 graphisch dargestellt. Wir sehen daraus, daß eine ausgezeichnete Übereinstimmung zwischen den beiden auf sehr verschiedene Art erhaltenen Werten für N^V besteht. Dies bedeutet auch, daß die Beziehung [7] zwischen \bar{d}_q und \bar{d}_v tatsächlich gut ist. Der eben aufgezeigte Weg erlaubt deshalb, die Kornstruktur in unserer Studie recht vollständig zu beschreiben und zwar auf eine Art und Weise, die nicht den sehr großen Aufwand und die kompli-

parameters. However, in order to reach this stage of simplification we had first to go through these considerable mathematical complexities. Furthermore, we have not yet tested its general applicability.

Summary

A modified *Saltykov* method based on probability and statistics permits the calculation of spatial grain parameters from planar observation and this with a much smaller computational effort than is necessary with the original *Saltykov* method. In addition, contrary to this latter method, our method may readily be programmed and is easy to use with the help of a computer.

Applying our method to number and size of newly developed grains at various stages of recrystallization of cold worked OF-Cu bars we obtain results which clearly indicate that the calculated spatial parameters closely reflect the true picture. The relationship we established between the average Feret diameters measured in an automatic image analyzer and the average diameter of grain-equivalent spheres simplifies drastically the determination of spatial parameters from planar observations. Yet, we do not yet know how far this relationship is of general character. Our results also clearly point to the necessity to take into consideration both truncation and sampling effects when correcting planar parameters, since the latter effects are of the same order as the former. In our case we even found that both effects – being opposite in nature – cancel each other. The neglect of the sampling effect may even be the main reason why some authors obtain a coefficient close to 2 in the relationship between spatial and planar grain size parameters, rather than one closer to unity.

zierten Methoden zur Erfassung von Wahrscheinlichkeit und Statistik benötigt, um ebene in räumliche Parameter zu verwandeln, wie wir dies in Teil I dargelegt hatten. Es war jedoch notwendig, sich durch diese bedeutenden mathematischen Schwierigkeiten hindurchzuarbeiten, um dieses Niveau der Vereinfachung zu erreichen. Zudem muß nochmals hervorgehoben werden, daß die Allgemeingültigkeit der vereinfachten Beziehungen noch nicht erwiesen ist.

Zusammenfassung

Wir haben eine vereinfachte Methode gemäß *Saltykov* vorgestellt, welche auf Wahrscheinlichkeitsbetrachtungen und Statistik beruht. Sie gestattet auf eine klare Art und Weise, die räumlichen Kornverteilungsparameter aus ebenen Beobachtungen abzuleiten und dies mit einem viel kleineren Rechenaufwand, als dies die ursprüngliche *Saltykov*-Methode verlangte. Zudem können im Gegensatz zur letzteren Methode, die Beziehungen unserer Methode leicht programmiert werden und sind daher einfach quantifizierbar mittels eines elektronischen Rechners.

Bei der Anwendung unserer Methode auf die Bestimmung von Größe und Zahl sich bildender Körner während der Rekristallisation von kaltgezogenen OF-Cu-Stangen erhielten wir Resultate, welche klar aufzeigen, daß die berechneten räumlichen Parameter der Wirklichkeit sehr nahe kommen. Zudem stellten wir eine Beziehung her zwischen mittlerem Feretdurchmesser, welcher mittels eines Bildanalytators bestimmt wird, und dem mittleren Durchmesser von äquivalenten Kugeln, welche die Bestimmung von räumlichen Parametern aus ebenen Beobachtungen drastisch vereinfacht. Wir wissen allerdings noch nicht, ob diese Beziehung allgemeingültigen Charakter hat. Unsere Resultate weisen auch auf die Notwendigkeit hin, bei der Korrektur von ebenen Parametern nicht nur den Verkleinerungseffekt, sondern ebenfalls den Erfassungseffekt miteinzubeziehen, da beide Effekte von etwa gleicher Größenordnung sind. In unserem Falle ergibt sich sogar, daß sich beide Effekte genau aufheben. Die Vernachlässigung des Erfassungseffektes ist möglicherweise der Hauptgrund, weshalb gewisse Autoren, welche

eine indirekte Methode benützen, einen Proportionalitätsfaktor zwischen ebener und räumlicher Korngröße von nahezu 2 erhalten, anstatt einen Wert in der Nähe von 1.

Acknowledgements

The work presented herein constitutes part of the doctoral thesis presented by Mrs. K.-P. Huang to the Science Faculty of the University of Neuchâtel. It was financed by the Swiss National Science Foundation to which the authors express their sincere thanks.

References Part I/Literatur Teil I

- 1) P. COMTE, Aspects quantitatifs de la cinétique de relaxation thermique dans les métaux écrouis, Thèse de doctorat, IMS de l'Université de Neuchâtel (1975)
- 2) F. B. PICKERING, The Basis of Quantitative Metallography, The Institute of Metals, London (1976)

Accepted: December 7, 1989

Authors' address/Anschrift der Verfasser:

Université de Neuchâtel, Institut de Métallurgie Structurale, Avenue de Bellevaux 51, CH-2000 Neuchâtel

Dank

Die Autoren danken dem Schweizerischen Nationalfonds zur Förderung der wissenschaftlichen Forschung für die Finanzierung der hier dargelegten Studie. Diese Arbeit hat zum Teil die Dissertation zur Grundlage, die von *Frau K.-P. Huang* der Universität Neuenburg zur Erreichung des Dr. ès sc. Grades eingereicht wurde.

- 3) R. T. DE HOFF, F. N. RHINES, Quantitative Microscopy, McGraw-Hill, New York (1968)
- 4) H. E. EXNER, Intern. Metall. Reviews, 17 (1972) 25

References Part II/Literature Teil II

- 1) K. P. HUANG, W. FORM, Z. Metallkunde, 80 (1989) 686

Angenommen: 7. Dezember 1989
Autorenübersetzung

Forme réduite de la thèse présentée sous forme de 2 publications.
Le texte complet de la thèse est déposé chez le directeur de thèse le
Prof. W. Form à l'Institut de Métallurgie structurale de l'Université
de Neuchâtel.

Huang, K.-P. et Form, W.

On the Invariant and Homologous Character of the Recrystallization
Kinetics of Polycrystalline Copper

Zeitschrift für Metallkunde, 80 (1989) 686-691

Huang, K.-P. et Form, W.

A Simplified Method to Reconstruct a Spatial Grain Distribution
from Planar Observations

Eine vereinfachte Methode zur Ermittlung der räumlichen
Korngrößenverteilung aus zweidimensionalen Beobachtungen

Practical Metallography 27 (1990) 332-350