

Cu-Ag 合金高温流变特性及其改进的本构模型

王梦寒¹, 孟烈¹, 危康¹, 岳宗敏¹, 汪丰林²

(1. 重庆大学, 重庆 400044)

(2. Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai 980-8577, Japan)

摘要: 在变形温度为 973~1123 K 和应变速率 0.01~10 s⁻¹ 条件下对 Cu-6%Ag (质量分数) 合金进行等温热压缩试验。利用试验所得流变应力-应变曲线, 分析了高应变速率下 Cu-6%Ag 合金高温塑性变形时微观组织的演变行为; 研究了高温塑性变形中材料的变形机制; 构建了一种简化的本构模型, 并引入 Arrhenius 方程及 Z 参数对模型进行改进。结果表明: Cu-6%Ag 合金在热塑性变形过程中发生了明显的动态回复和动态再结晶; 在应变速率为 0.1、1 及 10 s⁻¹, 温度为 1123 K 的变形条件下发生孪生, 造成流变应力突变而升高, 出现应力谷值; 经改进后的本构模型, 考虑了应变、变形温度及变形速率对流变特性的影响, 预测精度较高, 更利于通过计算机语言写入有限元软件进行分析计算。

关键词: Cu-6%Ag 合金; 高温塑性变形; 微观组织; 孪生; 本构模型

中图分类号: TG146.1⁺1

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2017)12-3733-06

Cu-Ag 合金作为电器通用器材的原材料, 在电线、电机线圈及超导体增强材料等方面被广泛应用。随着电器产品轻量化、小型化及超薄化的发展, 具备高强度、高导电性的 Cu-Ag 合金材料的开发已倍受关注^[1-3]。Ko 等^[4]研究了 Cu-3%Ag (质量分数, 下同) 合金的机械性能和电导率, Yao 等^[5]研究了 Ag 析出物对 Cu-12%Ag 合金强度和电导率影响等。此外, Cu-Ag 合金组织形态及其拉伸变形后微观组织变化也受到了广泛的关注^[6-9]。为探究 Cu-Ag 合金高温热压缩下的变形特点, 作者对其动态再结晶动力学模型进行了初步研究^[10]。目前, 在公开的学术文献中, 对该合金热变形行为及其本构模型的相关报道极少。

Cu-Ag 合金在高温条件下变形时容易开裂, 为探究其原因, 作者拟通过热压缩试验, 观察合金变形后的组织形态, 分析其热变形过程中的应力-应变特点, 并构建其本构模型, 以表征材料的塑性流变特性; 通过研究 Cu-6%Ag 合金在高温变形条件下的流变行为, 观察其微观组织形态, 引入一种简化的本构模型, 使其能够相对准确地表征合金的流变特性, 为 Cu-6%Ag 合金热加工工艺参数的制定提供参考。

1 实验

试样取自 Cu-6%Ag 合金铸态棒料, 试样尺寸为 $\Phi 8 \text{ mm} \times 12 \text{ mm}$ 。以 10 K/s 的升温速度对试样进行加

热, 试样加热时间与温度控制的变化曲线如图 1 所示。实验设计热压缩温度分别为 973, 1023, 1073, 1123 K; 应变速率分别为 0.01, 0.1, 1 及 10 s⁻¹; 每组实验中试样的压下量均为 50%。

压缩变形结束即用液氮对试样进行快速冷却处理, 以获得高温热变形后合金微观组织。将试样沿纵向切开, 经磨样、抛光、用 FeCl₃ 及 HCl 混合腐蚀液进行 30~50 s 腐蚀后, 在金相显微镜下观察微观组织。

2 结果及分析

通过对 Cu-6%Ag 合金试样进行等温热压缩试验, 将获得的应力、应变数据进行拟合, 得到如图 2 所示的应力-应变曲线。为研究 Cu-6%Ag 合金的高温变形

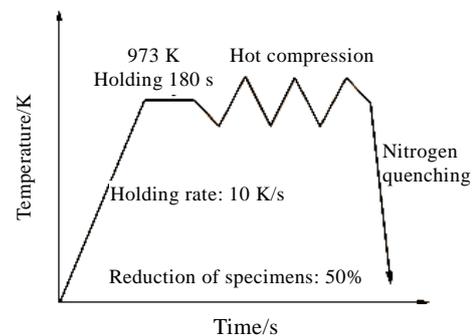


图 1 热压缩试验流程

Fig.1 Experiment procedure for hot compression tests

收稿日期: 2016-12-10

基金项目: 中央高校基本科研业务费资助项目 (CDJZR14130006)

作者简介: 王梦寒, 女, 1975 年生, 博士, 副教授, 重庆大学材料学院, 重庆 400044, 电话: 023-65111493, E-mail: cqquwmh@163.com

机制, 对该合金在不同变形条件下的应力-应变关系及变形特点进行了分析。

2.1 流变应力-应变曲线及变形机制

由图 2 所示的不同变形条件下的应力-应变曲线可知, 温度和应变速率的变化对该合金高温变形时的流变应力有较大的影响。在同一变形温度及应变下, 流变应力随变形速率增加而增大; 在相同应变速率及应变下, 随着变形温度升高合金的流变应力减小。

分析其变形特点, 在变形初始阶段, 加工硬化导致其变形抗力迅速升高, 随后塑性变形所积累的能量促进动态回复, 导致流变应力增长放缓, 当积累的能量达到再结晶形核所需驱动力时即发生动态再结晶。当加工硬化与动态回复或动态再结晶软化达到动态平衡时, 流变应力趋于稳定^[11]。由于热激活作用在高温下更为显著, 导致在相同应变速率下, Cu-Ag 合金屈服应力随温度升高而减小, 随应变速率增加热激活位错线越过能垒^[12], 导致在同一变形温度下, Cu-Ag 合金屈服应力随着变形速率的增加而增大, 不同变形条件下的屈服应力如图 3 所示。

值得注意的是, 在一些特定条件下, 这种平衡可

能被打破。如应变速率 0.01 s^{-1} , 变形温度 1023 及 1073 K; 应变速率 0.1 s^{-1} , 变形温度 1023、1073 K; 应变速率 1 s^{-1} 、变形温度 1123 K 时, 当应变达到 0.55 左右, 应力发生突变, 迅速升高。而当变形在高温 (1073、1123 K) 和高应变速率 (10 s^{-1}) 下进行, 材料在应变为 0.55 左右即失稳断裂, 微观组织的演变可能是产生此类现象的重要影响因素。

2.2 微观组织演变

为进一步获悉该合金的高温变形特性, 通过微观组织观察, 变形温度为 1123 K、不同应变速率下 Cu-6%Ag 合金显微组织状态如图 4 所示。由图 4 可知, 当变形温度为 1123 K 时, 随应变速率增大, 合金晶粒被逐渐细化。原因可能在于, 低应变速率下, 由于变形温度足够高, 晶界上的原子容易偏离其平衡位置导致晶界能升高, 在晶界处形成高能区, 达到能量阈值后即开始再结晶并长大, 如图 4a 所示; 随着应变速率的增大, 位错大量堆积缠结增大了合金的储存能, 高能区增多, 动态再结晶在较大的范围内发生, 如图 4b, 4c 所示; 当应变速率达 10 s^{-1} 时, 塑性变形所产生的能量不断补充动态再结晶所消耗的能量, 开始出现大范围动态再结晶, 再结晶晶粒因长大受阻而细化, 如图 4d 所示。

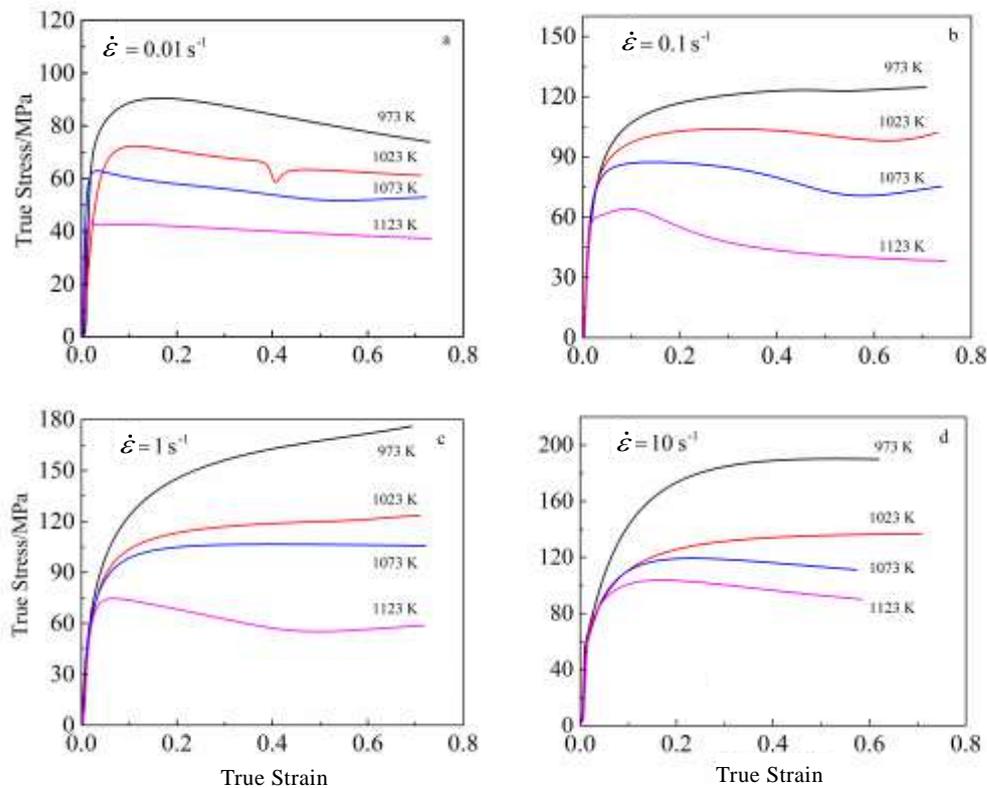


图 2 不同变形条件下 Cu-6% Ag 双相合金真应力-应变曲线

Fig.2 True stress-strain curves for Cu-6%Ag binary alloy under different deformation conditions: (a) 0.01 s^{-1} , (b) 0.1 s^{-1} , (c) 1 s^{-1} , and (d) 10 s^{-1}

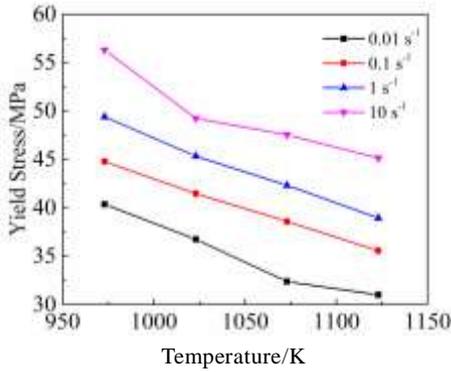


图 3 不同变形条件下的屈服应力
Fig.3 Yield stress in different deformation processes

研究发现, 大应变速率下 Cu-6%Ag 合金变形机制发生改变, 出现孪生行为。应变速率为 10 s^{-1} 时, 孪生范围增大, 如图 4b~4d 所示; 应变速率为 0.01 s^{-1} 时, 没有出现孪生。可能的原因是, 随着应变速率增大, 位错在晶界附近大量堆积引起应力集中产生高能区域, 动态再结晶虽然能够减小高能区域能量, 但晶界高能区域总体呈扩大趋势, 从而晶界处应力集中无法得到有效释放, 增大了孪生倾向, 使具有多滑移系的面心立方金属 Cu-6%Ag 合金出现孪生行为。并且孪晶界相对稳定, 阻碍进一步变形时的位错滑移, 使塑性变形引起的加工硬化远大于动态再结晶软化, 导致在应变为 0.55 左右时, 流变应力发生突变而升高。当变形速率为 10 s^{-1} 时, 孪生晶界大量出现, 晶界处应力集中更加显著, 从而产

生微裂纹, 最终导致材料失稳断裂。

2.3 本构模型

在进行塑性变形问题分析时, 变形材料的本构模型是相关分析及计算的重要依据。Hollomon 方程 ($\sigma = B\epsilon^n$) 常用来表征材料流变特性, 但其适用性有一定的局限。为此 Akbari 等引入峰值应力 (σ_p) 及峰值应变 (ϵ_p) 对方程进行改进, 提出^[13]:

$$\sigma = \sigma_p - B|\epsilon - \epsilon_p|^m \quad (1)$$

其中, B 和 n 为材料常数。由式 (1) 可知, 当 $\epsilon = \epsilon_p$ 时, 即有 $\sigma = \sigma_p$ 且 $B|\epsilon - \epsilon_p|^m$ 恒为正, 故预测值 $\sigma \leq \sigma_p$, 因此该模型适用于动态回复型应力-应变曲线的预测。

首先对式 (1) 两边同时取对数可得:

$$\ln(\sigma_p - \sigma) = \ln B + n \ln(|\epsilon - \epsilon_p|) \quad (2)$$

σ_p 及 ϵ_p 可通过应变硬化速率-流变应力 ($\theta - \sigma$) 曲线获得, 其中 $\theta = d\sigma/d\epsilon$ 。典型的 $\theta - \sigma$ 曲线如图 5 所示。

取应变 (ϵ) 从 0.05~0.55 及其对应的应力 (σ), 即可获得 $\ln(\sigma_p - \sigma)$ 与 $\ln(|\epsilon - \epsilon_p|)$ 之间的函数关系, 通过线性拟合即可获得 $\ln B$ 及 n 值。不同条件下的 $\ln B$ 及 n 值如表 1 所示。

至此, 式 (1) 中所有参数计算完毕, 但各参数之间相互独立, 不利于通过计算机语言表达。为研究各参数间的规律, 引入温度补偿应变速率因子 (Z 参数), 对该模型进行改进。

在热塑性变形中, 通常使用包含变形激活能和温

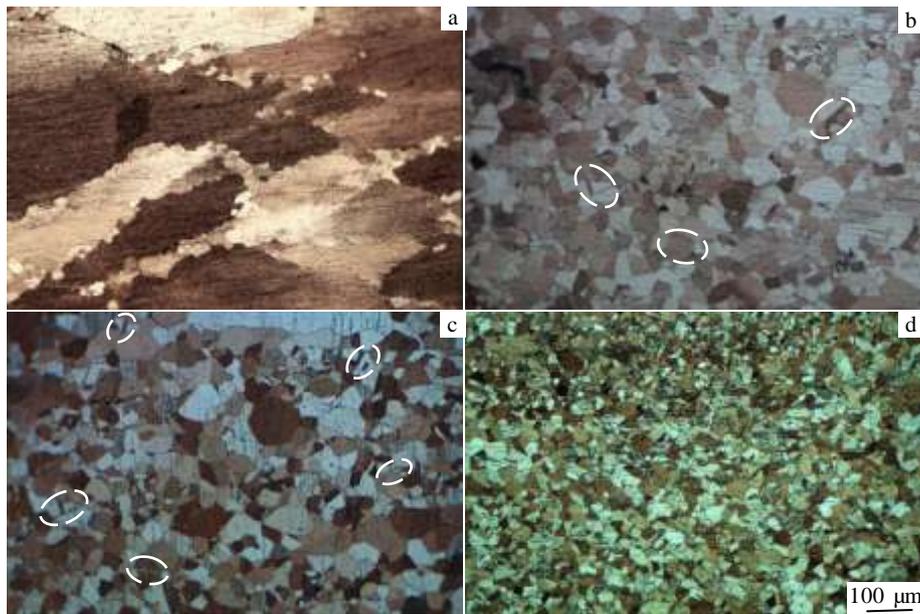


图 4 变形温度为 1123 K, 不同应变速率下 Cu-6%Ag 合金显微组织

Fig.4 Microstructures of Cu-6%Ag alloy at 1123 K with different strain rates: (a) 0.01 s^{-1} , (b) 0.1 s^{-1} , (c) 1 s^{-1} , and (d) 10 s^{-1}

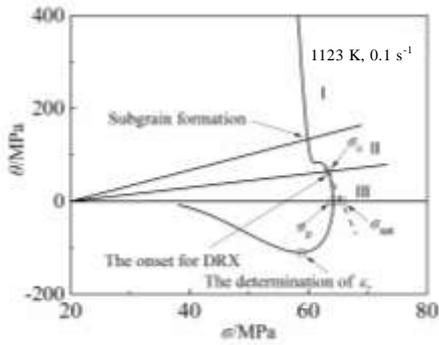


图 5 典型 Cu-Ag 合金 θ - σ 曲线

Fig.5 Typical work hardening rate versus true stress (θ - σ) curves of Cu-Ag alloy

度的 Arrhenius 方程来表示应变速率、温度以及流变应力之间的关系^[14-17]。

$$\dot{\epsilon} = AF(\sigma)\exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \quad (3)$$

其中 $F(\sigma)$ 为流变应力函数:

$$\begin{cases} F(\sigma) = \sigma^n \quad (\alpha\sigma < 0.8), \text{ 低应力时} \\ F(\sigma) = \exp(\beta\sigma) \quad (\alpha\sigma > 1.2), \text{ 高应力时} \\ F(\sigma) = [\sinh(\alpha\sigma)]^n, \text{ 所有应力} \end{cases} \quad (4)$$

式中: R 为气体常数 (8.314 J/mol K); Q 为材料变形激活能 (kJ/mol); T 为绝对温度 (K), $\dot{\epsilon}$ 为应变速率; σ 为流变应力 (MPa); n 为加工硬化指数; A, α, β 为材料常数, 其中 $\alpha = \beta/n$ 。

为了综合考虑应变速率与温度之间的关系, Zener 和 Hollomon 等人提出用 Z 参数来修正变形温度对变形速率的影响, 如式 (5) 所示^[18]:

$$Z = \dot{\epsilon} \exp\left(\frac{Q}{RT}\right) = A[\sinh(\alpha\sigma)]^n \quad (5)$$

式中各个参数分别为^[19]: $n=7.404, Q=402.17$ kJ/mol, $\ln A=44.84$ s⁻¹, $\alpha=0.0091$ 。联立式 (3)、(4) 计算得:

$$\sigma_p = \frac{1}{\alpha} \operatorname{ar sinh}\left[\exp\left(\frac{\ln Z - \ln A + Q/RT}{n}\right)\right] \quad (6)$$

由图 6a、6b 可知, $\ln B、n$ 非常数。经线性拟合可得:

$$B = \exp(0.22346 \ln Z - 6.07162) \quad (7)$$

$$n = 0.12715 \ln Z - 4.20394 \quad (8)$$

$\ln \epsilon_p$ 及 $\ln Z$ 间的关系如图 6c 所示, 经线性拟合得:

$$\epsilon_p = \exp(0.12715 \ln Z - 4.20394) \quad (9)$$

综上所述, Cu-6%Ag 合金本构模型为:

表 1 $\ln B$ 及 n 值

Table 1 Values of $\ln B$ and n

Strain rate/s ⁻¹	973 K		1023 K		1073 K		1123 K	
	n	$\ln B$	n	$\ln B$	n	$\ln B$	n	$\ln B$
0.01	1.52	4.16	1.28	3.61	0.87	3.09	0.91	2.11
0.1	2.09	4.82	2.33	5.45	1.77	4.44	0.98	4.17
1	1.56	4.64	1.39	3.49	3.03	5.65	1.09	3.97
10	2.51	5.74	1.54	4.21	1.59	4.04	1.43	4.09

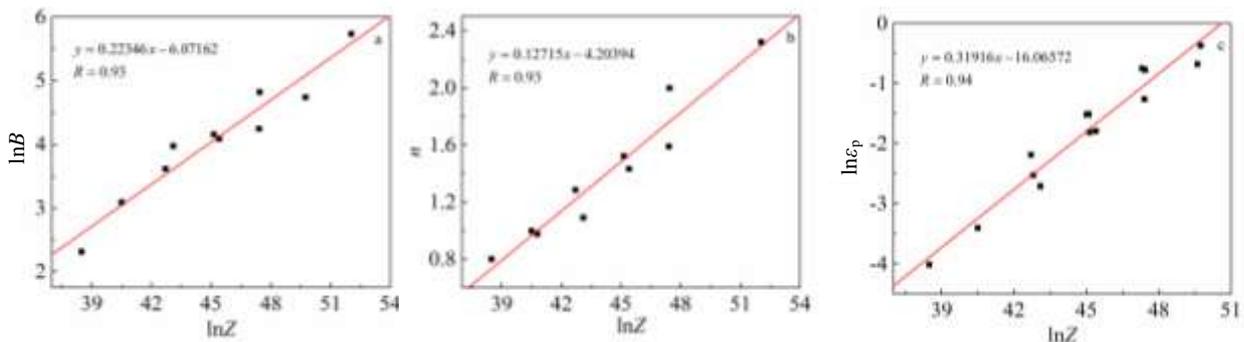


图 6 $\ln B、n$ 及 $\ln \epsilon_p$ 与 $\ln Z$ 之间的关系

Fig.6 Relationships among $\ln B, n$ and $\ln \epsilon_p$ with $\ln Z$: (a) $\ln B$ - $\ln Z$, (b) n - $\ln Z$, and (c) $\ln \epsilon_p$ - $\ln Z$

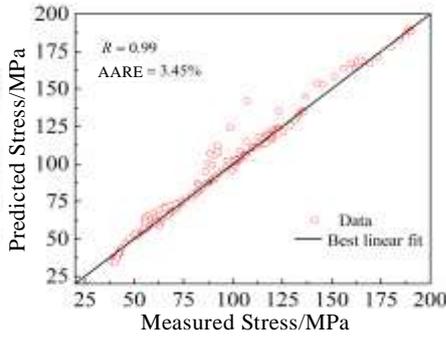


图 7 不同变形条件下流变应力与本构模型预测结果相关性
Fig.7 Correlations between experimental and predicted flow stress under different conditions

$$\begin{cases} \sigma = \sigma_p - B \left| \varepsilon - \varepsilon_p \right|^n \\ \sigma_p = \frac{1}{0.0091} \operatorname{ar sinh} \left[\exp \left(\frac{\ln Z - 44.84 + 402170/RT}{7.404} \right) \right] \\ B = \exp(0.22346 \ln Z - 6.07162) \\ n = 0.12715 \ln Z - 4.20394 \\ \varepsilon_p = \exp(0.12715 \ln Z - 4.20394) \end{cases} \quad (10)$$

3 本构模型验证

研究中引入了相关系数 (R) 评价实验值与预测值之间的线性关系, 同时引入相对误差 (AARE) 作为无偏统计量, 辅助评价本构模型的预测能力。

$$R = \frac{\sum_{i=1}^N (E_i - \bar{E})(P_i - \bar{P})}{\sqrt{\sum_{i=1}^N (E_i - \bar{E})^2 \sum_{i=1}^N (P_i - \bar{P})^2}} \quad (11)$$

$$AARE = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \left| \frac{E_i - P_i}{E_i} \right| \times 100\% \quad (12)$$

其中 E_i 为实验值, P_i 为模型计算值, \bar{E} , \bar{P} 分别为 E_i 和 P_i 的平均值, N 为样本数。经计算, 改进后模型的预测值与实验值的相关系数达到了 0.99, 平均相对误差为 3.45%, 相关度如图 7 所示。证明改进后的本构模型能较有效地表征 Cu-6%Ag 合金的高温流变特性。但是在达到峰值应力后, 预测应力值有下降的趋势, 应变达到 0.55 后, 模型的预测精度会随着应变的增大而降低, 如图 8b, 8c 所示。原因可能在于, 动态再结晶晶粒的孪生行为导致应力突变而急剧升高, 出现应力谷值, 而该模型只考虑了温度、应变速率以及应变等因素对流变应力的影响, 并未考虑微观组织演变, 故该模型还有进一步改进的必要。

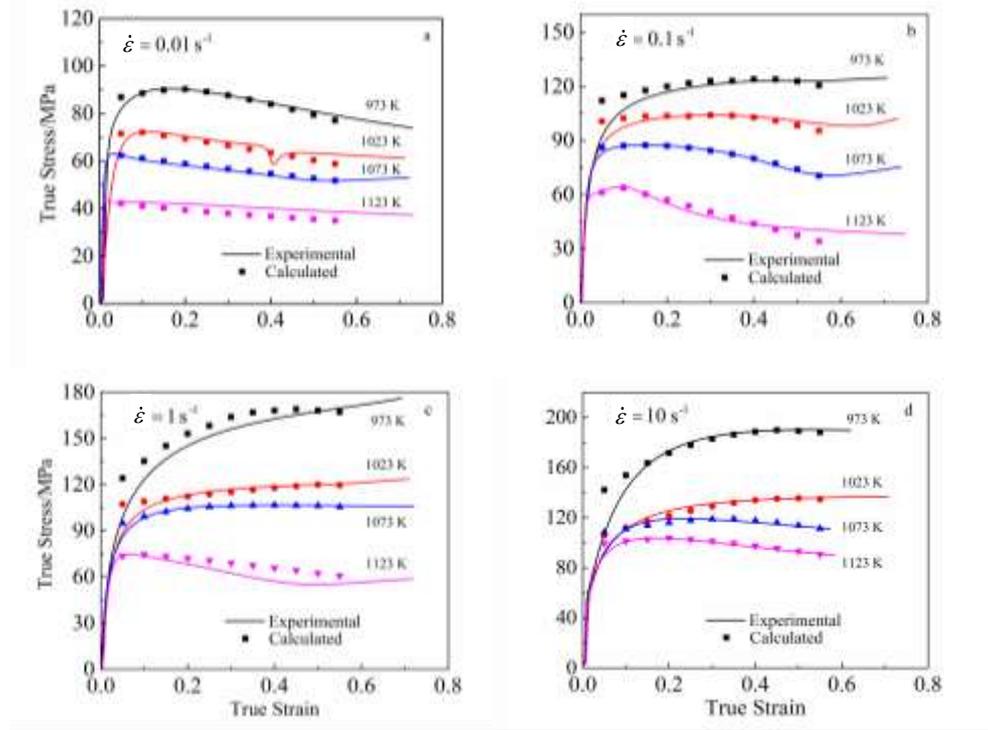


图 8 改进后模型预测流变应力值与实验值比较

Fig.8 Comparison between predicted and measured flow stress curves of Cu-6% Ag binary alloy by the modified constitutive model under different strain-rates: (a) 0.01 s^{-1} , (b) 0.1 s^{-1} , (c) 1 s^{-1} , and (d) 10 s^{-1}

4 结 论

1) Cu-6% Ag 合金为温度与应变率敏感性材料, 其流变特性受变形温度和变形速率的影响。在 1073 K、 0.1 s^{-1} 和 1123 K、 1 s^{-1} 变形条件下, 应变达到 0.55 左右时, 流变应力发生突变而急剧升高, 出现应力谷值。

2) 当应变速率为 10 s^{-1} 时, 出现大范围孪生现象, 位错滑移受到阻碍, 流变应力发生突变而升高, 孪晶界处的应力集中, 导致材料发生低应变 (0.55) 失稳。

3) 引入温度、应变率对一种简化的本构模型进行了改进, 改进后的本构模型为:

$$\left\{ \begin{array}{l} \sigma = \sigma_p - B \left| \varepsilon - \varepsilon_p \right|^n \\ \sigma_p = \frac{1}{0.0091} \operatorname{ar sinh} \left[\exp \left(\frac{\ln Z - 44.84 + 402170/RT}{7.404} \right) \right] \\ B = \exp(0.22346 \ln Z - 6.07162) \\ n = 0.12715 \ln Z - 4.20394 \\ \varepsilon_p = \exp(0.12715 \ln Z - 4.20394) \end{array} \right.$$

4) 通过平均相对误差计算及相关系数评价, 得到改进后模型预测值与实验值的相关系数达 0.99, 平均误差为 3.45%。证明改进后的本构模型能够较准确地预测 Cu-6% Ag 合金高温流变应力。

参考文献 References

- [1] Abd Ei-khalek A M. *Mater Sci Eng A*[J], 2010, 527(18-19): 4818
 [2] Ning Yuantao(宁远涛), Zhang Xiaohui(张晓辉), Wu Yuejun(吴跃军). *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2007, 36(10): 1807
 [3] Sakai Y, Inoue K, Asano T *et al. Appl Phys Lett*[J], 1991, 59(23): 2965

- [4] Ko Y G, Namgung S, Lee B U *et al. J Alloy Compd*[J], 2010, 504(S1): 448
 [5] Yao D W, Song L N, Dong A P *et al. Mater Sci Eng A*[J], 2012, 558: 607
 [6] Bengehalem A, Morris D G. *Acta Mater*[J], 1997, 45(1): 397
 [7] Tian Y Z, Li J J, Zang P *et al. Acta Mater*[J], 2012, 60(1): 269
 [8] Tian Y Z, Wu S D, Zhang Z F *et al. Scripta Mater*[J], 2011, 65(6): 477
 [9] Tian Y Z, Wu S D, Zhang Z F *et al. Mater Sci Eng A*[J], 2011, 528(13-14): 4331
 [10] Wang M H, Wang W H, Dong J J *et al. Acta Metall Sin*[J], 2012, 25(6): 420
 [11] Lin Yongcheng(蔺永诚), Chen Mingsong(陈明松), Zhong Jue(钟掘). *Journal of Central South University: Science and Technology*(中南大学学报自然科学版)[J], 2008, 39(3): 549
 [12] Tang Changguo(唐长国), Zhu Jinhua(朱金华), Zhou Huijiu(周惠久). *Acta Metall Sin*(金属学报)[J], 1995, 31(6): 248
 [13] Akbari Z, Mirzadeh H, Cabrera J M. *Materials & Design*[J], 2015, 77: 126
 [14] Mcqueen H J, Yue S, Ryan N D *et al. J Mater Process Technol*[J], 1995, 53(1-2): 293
 [15] Shi H, McLaren A J, Sellars C M *et al. Mater Science Tech*[J], 1997, 13(3): 210
 [16] Sellars C M, McTegart W J. *Acta Metallurgica*[J], 1996, 14(9): 1136
 [17] Mirzaei A, Zarei-Hanzaki A, Haghdadi N *et al. Mater Sci Eng A*[J], 2014, 589: 76
 [18] Zener C, Hollomon H. *J Appl Phys*[J], 1944, 15(1): 22
 [19] Wang Menghan(王梦寒), Huang Long(黄龙), Xian Guocai(咸国材). *Chinese Journal of Rare Metals*(稀有金属)[J], 2013, 37(5): 695

High Temperature Deformation Properties and Modification of Constitutive Model of Cu-Ag Alloy

Wang Menghan¹, Meng Lie¹, Wei Kang¹, Yue Zongmin¹, Wang Fenglin²

(1. Chongqing University, Chongqing 400044, China)

(2. Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai 980-8577, Japan)

Abstract: The hot deformation behavior of Cu-6%Ag (mass fraction) alloy was described by hot compression tests in the temperature range of 973~1123 K and strain rates of $0.01 \sim 10 \text{ s}^{-1}$. The microstructure evolution of the alloy was investigated. The true stress-strain curves were studied to reveal the hot deformation mechanism of Cu-6%Ag alloy. A simple constitutive model was established. The Arrhenius equation and Z were quoted to modify the model. The results show that the dynamic recovery and dynamic recrystallization occur in Cu-6%Ag alloy during hot deformation. And twinning behavior is observed at the strain rates of 0.1, 1 and 10 s^{-1} and the temperature of 1123 K. This twinning behavior results in sharp changing of flow stress. With the increase of flow stress, a valley of stress is observed directly. The modified model which integrates the influence of temperature, strain rate and strain on flow characteristic could predict the stress accurately and be compiled easily.

Key words: Cu-6%Ag alloy; hot deformation; microstructure; twinning; constitutive model

Corresponding author: Wang Menghan, Ph. D., Associate Professor, College of Materials Science and Engineering, Chongqing University, Chongqing 400044, P. R. China, Tel: 0086-23-65111493, E-mail: cqwmh@163.com