

3004 铝合金“反常”锯齿屈服现象的研究*

彭开萍^{1)†} 陈文哲^{1)‡} 钱匡武¹⁾

1) 福州大学材料科学与工程学院, 福州 350002)

2) 福建工程学院, 福州 350004)

(2005 年 11 月 14 日收到, 2006 年 1 月 17 日收到修改稿)

在应变速率为 $5.56 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ — $5.56 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ 的范围内, 在不同温度下(从 223K 至 773K), 对 3004 铝合金进行系列拉伸试验, 探索其锯齿屈服规律. 通过激活能的计算、内耗研究、微观组织观察和能谱分析, 探讨锯齿屈服的机理与物理本质. 结果表明, 3004 铝合金在形变过程中会出现动态应变时效现象; 发现了一种“反常”的锯齿屈服现象. 在出现锯齿屈服的温区内, 存在锯齿屈服临界应变量转变温度 T_1 , 在温度低于 T_1 的温区, 出现“正常”的锯齿屈服, 即临界应变量具有负的温度系数, 这是由于 Mg 溶质原子气团与位错之间发生交互作用的结果. 而在温度高于 T_1 的温区, 则出现“反常”的锯齿屈服, 即其临界应变量具有正的温度系数, 这是由于在被钉扎的位错缠结处发生溶质原子 Mg 偏聚, 导致固溶体中有效的溶质原子 Mg 减少的结果.

关键词: 动态应变时效, 锯齿屈服, 铝合金, 内耗

PACC: 6220F, 6170G

1. 引言

在一定的温区和应变速率范围内, 一些含间隙式或置换式溶质原子的金属或合金在塑性变形过程中会出现不稳定流变, 其拉伸曲线不再光滑, 而是表现出某种形式的锯齿波, 即出现了所谓的“锯齿屈服现象”, 许多文献中则称之为 Portevin-Le Chatelier (PLC) 效应. Nabarro 和 Lubahn 等将 PLC 效应与在金属材料中出现的动态应变时效(dynamic strain aging, DSA) 现象联系起来. 所谓动态应变时效指的是金属在塑性变形的同时发生时效而强化的现象, 其本质是扩散着的溶质原子与运动中的位错交互作用的结果^[1]. 许多常用的金属和合金^[2-4]以及复合材料^[5]、金属间化合物^[6]等材料在常规的应变速率和温度范围内塑性变形时, 其机械性能在很大程度上, 受到动态应变时效的影响, 它严重影响材料的组织与性能, 使材料的强度提高^[7-9], 塑性下降^[10, 11]. 为了更好地研究 DSA 现象, 前人对许多材料的 DSA 的宏观特征进行了大量的研究, 发现出现锯齿屈服的临界应变量 ϵ_c . 通常都具有负的温度系数, 即随着温度升高, ϵ_c 减小, 称为正常锯齿屈服^[1, 12]; 而在某些时效沉淀

强化的合金中, 锯齿屈服的临界应变量 ϵ_c . 在一定条件下却具有正的温度系数, 即随着温度升高, ϵ_c 增大, 称为“反常”锯齿屈服^[13, 14]. 关于这一现象, 科学家们曾经进行了广泛的研究, 建立了各种物理模型^[15-17]. 但这些模型基本上都是依据宏观物理现象建立起来的数学模型. 迄今为止, 还没有见到从微观现象中揭示“反常”锯齿屈服的物理本质的报道. 本文就是把 3004 铝合金作为研究对象, 从激活能、内耗、电镜组织等几方面来讨论“反常”锯齿屈服的微观特征, 从而丰富 DSA 的理论, 同时进一步加深对金属材料塑性变形的物理过程的理解.

2. 试验方法

本研究采用的材料是 3004 铝合金, 其化学成分 (wt%) 为 Mn-0.7, Mg-0.8, Fe-0.4, Si-0.2, Cu-0.15, Ti-0.03, 剩余的是 Al. 将铝锭加工成标距 30mm、直径 6mm 的标准拉伸样. 试验前进行均匀化退火, 退火工艺为 $(723 \pm 3) \text{ K}$, 保温 12h (加 Al_2O_3 粉末保护剂以防止氧化), 空冷, 获得平均晶粒尺寸为 0.08mm 的组织.

* 国家自然科学基金(批准号 50441013)和福建省教育厅(批准号 JA03015)资助的课题.

† E-mail: pkp715@163.com

拉伸试验在 Instron1185 型电子拉伸机上进行. 选取四个应变速率: $5.56 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$, $5.56 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$, $2.78 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$, $5.56 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$, 在每个应变速率下从 223K 至 573K 进行系列温度拉伸试验, 其中 233K, 253K 和 273K 下的拉伸试验在无水酒精溶液中进行, 用液氮作冷却剂, 333K, 373K 试样采用水浴加热, 试验温度控制在 $\pm 1\text{K}$ 范围内. 423—573K 采用 Instron 可控式三段控温电阻炉加热, 温度间隔为 25K, 试验温度控制在 $\pm 3\text{K}$ 范围内.

应变速率敏感性试验是在某一温度下以 $5.56 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ 的应变速率拉伸至 2% 的应变时, 应变速率迅速切换到 $5.56 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$, 测出此时应力的变化值 $\Delta\sigma$, 然后根据应变速率敏感性 s 的计算公式: $s = \frac{\Delta\sigma}{\Delta \ln \dot{\epsilon}}$ 算出应变速率敏感性. 从 233K—573K, 每间隔 25K 进行一次应变速率敏感性试验, 每个温度下至少进行三次试验, 取应力变化的平均值 $\Delta\sigma$.

3004 铝合金在 398K 温度下先进行变形量分别为 1%、2.7%、4%、6% 的预应变, 预应变后的试样进

行内耗试验. 内耗的测量是在多功能低频内耗仪上完成的, 试验温度范围由 298K—623K, 频率为 1Hz.

各种预处理态的金属薄膜试样在 JEM-2000EX (加速电压为 160kV) 以及配备有 INCA—超薄窗口能谱仪的 JEM-2010EX (加速电压为 200kV) 透射电子显微镜上进行分析观察并拍照.

3. 结果与讨论

3.1. 临界应变变量与温度的关系

表 1 是分别在四种不同应变速率下, 3004 铝合金出现 DSA 的温度区间. 从表中可以看出, 在一定的应变速率下, DSA 只有在特定的温度范围内才会出现. 图 1 表示应变速率敏感性和温度之间的关系. 从图中可以看出对应锯齿屈服出现的温区, 在 278K—423K, 应变速率敏感性出现了负值, 在其他温区均为正值.

表 1 各种不同应变速率下出现锯齿屈服的温区

| 应变速率/ s^{-1} | 5.56×10^{-5} | 5.78×10^{-4} | 5.56×10^{-4} | 5.56×10^{-3} |
|-----------------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|
| 温度区间/K | 253—373 | 253—397 | 253—423 | 273—498 |

在 DSA 发生的温区内, 当应变速率突变时, 相对于高应变速率, 低应变速率下所产生空位较少, 溶质原子向运动位错扩散所需要的时间会比高应变速率下所需要的时间来得长. 随着时效时间的增加, 将有更多的溶质原子扩散到位错周围, 从而提高了位错与扩散溶质原子间相互作用的应力, 因此流变应力增大, 出现了负的应变速率敏感性. 负的应变速率敏感性是 DSA 的一个重要特征. 正是由于发生了 DSA, 使材料的强度提高 (如图 2 所示).

图 3 为应变速率 $5.56 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ 下出现锯齿屈服的临界应变变量 ϵ_c 和温度的关系曲线. 由图可知, 在 253K—322K 的温区内, ϵ_c 随着温度的升高而下降, 出现了正常的 PLC 效应; 而在 322K—423K 的温区内, ϵ_c 随着温度的升高而升高, 出现了反常的 PLC 效应. 转变温度 T_i 为 322K.

3.2. 正常的锯齿屈服

因为 3004 铝合金的溶质原子种类较多, 因此有必要通过激活能的计算确定引起 DSA 的溶质原子. 根据溶质原子钉扎位错引起锯齿屈服的 McCormick

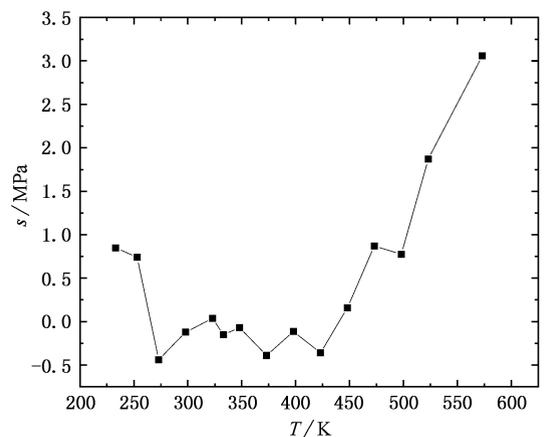


图 1 应变速率敏感性 s 与温度的关系曲线

的理论模型^[18], ϵ_c 与应变速率 ($\dot{\epsilon}$) 和温度的关系满足

$$\epsilon_c^{m+\beta} = (C_1 \alpha C_0)^{3/2} (\dot{\epsilon} k T b / N K U_m D_0) \exp(Q_m / k T), \quad (1)$$

式中 $\dot{\epsilon}$ 为应变速率; C_0 是固溶体中溶质原子平均浓度; C_1 是钉扎位错时, 位错线上的溶质原子浓度; U_m 是溶质原子和位错的交互作用能; Q_m 是溶质原

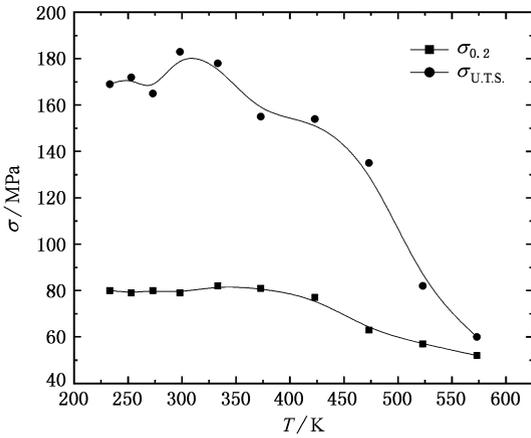


图2 应变速率为 $5.56 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ 时 $\sigma_{0.2}$ 、 $\sigma_{U.T.S.}$ 与温度的关系曲线

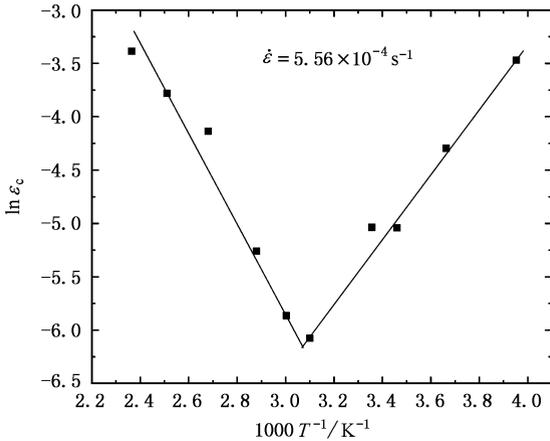


图3 应变速率为 $5.56 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ 时 $\ln \epsilon_c$ 和 $1/T$ 的关系曲线

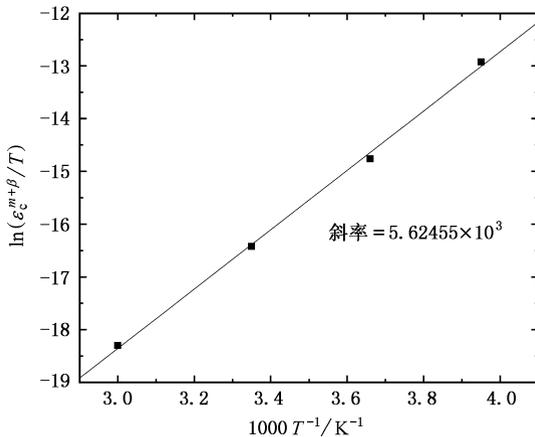


图4 应变速率为 $5.56 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ 时 $\ln(\epsilon_c^{m+\beta}/T)$ 和 $1/T$ 的关系曲线

表示温度. 对(1)式两边取自然对数, 得到 $\ln(\epsilon_c^{m+\beta}/T)$ 与 $1/T$ 之间的关系式: $\ln(\epsilon_c^{m+\beta}/T) = Q_m/RT + c$, 由试验数据作出曲线就可以计算给定的应变速率下的激活能 $Q_m = \text{曲线斜率} \times R$, 式中 R 为气体常数. 但是, 该方法首先需要分别计算各个温度下的 $(m + \beta)$ 值, 当温度为一定时, 由(1)式可导出 $\lg \dot{\epsilon} = (m + \beta) \lg \epsilon_c + c$, 该式表明 $\lg \dot{\epsilon}$ 与 $\lg \epsilon_c$ 是线性的, 斜率就是 $(m + \beta)$ 的值. 如在 273K, 由 $\lg \dot{\epsilon}$ 与 $\lg \epsilon_c$ 的关系曲线, 得出 $(m + \beta)$ 的值是 2.13. 用这个值计算 $\ln(\epsilon_c^{m+\beta}/T)$, 得到 $\ln(\epsilon_c^{m+\beta}/T)$ 与 $1/T$ 关系曲线的斜率(如图4所示), 计算得的激活能是 48.2kJ/mol. 该值与 Mg 在 Al 合金中的扩散激活能(53.1kJ/mol)^[9]很接近, 并且远低于 Mn 在 Al 合金中的扩散激活能(212kJ/mol)^[9]. 因此 3004 铝合金中形成钉扎位错并提供位错以激活能的溶质原子不可能是 Mn 原子. 此外, 该合金中其他元素的含量较低, 因此相应的溶质原子浓度比较低, 溶质原子的扩散能力较弱, 很难形成溶质原子钉扎气团. 而 Mg 是合金中含量较多的溶质原子, 因此也是最主要的气团构成元素, 它以空位扩散的方式聚集在位错周围形成了溶质原子气团, 并钉扎位错. 合金中溶质原子的浓度决定了出现 PLC 的临界应变变量, 溶质原子的扩散是通过空位扩散的方式进行的. 对合金施加一定的塑性变形可以为溶质原子的扩散提供一定的空位. 因此, 要形成足够大的溶质原子气团钉扎位错就需要有一定的塑性变形以形成一定量的空位, 使得溶质原子可以沿空位进行扩散, 即要有一个临界应变变量 ϵ_c . 一般的, 温度越高, 溶质原子的扩散能力越强, 要求的临界应变变量 ϵ_c 越小. 因此, 在低温阶段(图3中的 253K—322K 的温区), 主要表现为随着拉伸温度的提高, 出现锯齿屈服的临界应变变量减小.

3.3.“反常”锯齿屈服

对 3004 铝合金在“反常”锯齿屈服的温区进行了内耗试验. 图5为在 398K 时形变不同应变变量后试样在振动频率为 1Hz 时的内耗温度曲线. 由图可知, 内耗随着预应变量的增大而增大; 当预形变量为 1%(小于临界应变变量)时, 试样的内耗温度曲线随着温度的升高, 内耗值呈单调上升, 没有出现内耗峰; 而预形变量为 2.7%(等于临界应变变量)时, 试样在 330K 附近出现了一个内耗峰, 预形变量为 4%(大于临界应变变量)时, 试样在 365K 附近出现了一个内耗峰, 由于出现内耗峰处的内耗值比较小, 在内耗与温

子迁移的有效激活能; b 是柏氏矢量; D_0 是扩散系数; k 是波尔兹曼常数; K, N, m, β 和 α 是常数; T

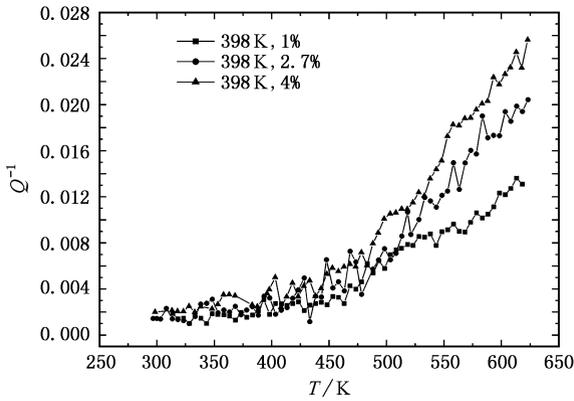


图 5 不同状态试样的内耗与温度的曲线

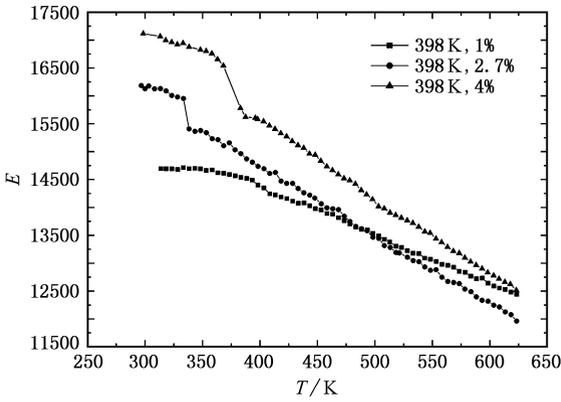


图 6 不同状态试样的模量与温度的曲线



图 7 固溶态的位错组态

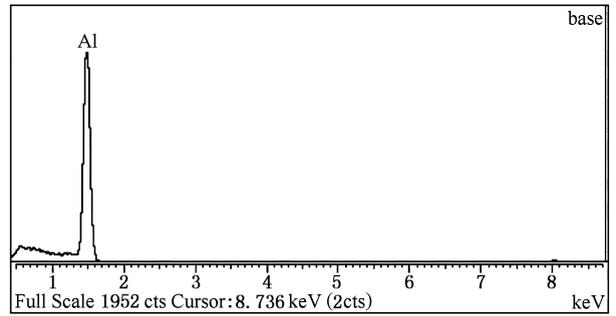


图 8 3004 铝合金基体的 X 射线能谱

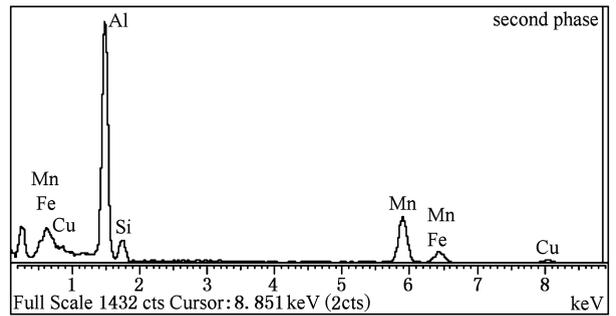


图 9 3004 铝合金第二相的 X 射线能谱

系曲线上看出,形变量 2.7% 的试样的模量值在 323K—330K 温度范围内出现了急剧下降,形变量 4% 的试样的模量值在 355K—370K 温度范围内出现了急剧下降,说明了在该温区内出现了内耗峰.结合微观组织的观察,讨论铝合金的内耗现象.图 7 为铝合金固溶态试样的微观组织,由图可以看出,试样的位错密度很低,只有一些位错列,除了位错之外,还可以看到第二相.对基体进行能谱分析,表明主要是铝元素,其他元素由于含量很少,无法检测出来(如图 8 所示).对基体上的第二相进行能谱分析,发现第二相主要是由 Al 和 Mn 组成(如图 9 所示).这个原先存在的少量第二相并没有影响动态应变时效过程即内耗曲线.

图 10 为经不同预应变之后的微观组织.图 10 (a)是预应变量为 1% 的组织,该应变小于临界应变量,即还没有发生 DSA,位错密度较低,位错排列松散;当预应变量为临界应变量时,位错密度增大,位错开始出现缠结的趋势(如图 10(b)所示);当预应变(4%)大于临界应变量时,即已发生了 DSA,此时位错聚集在一起,发生严重缠结,好像被什么东西所钉扎(如图 10(c)所示),对缠结处进行能谱分析,发现有 Mg 元素(如图 11 所示).可以认为,该铝

度曲线上并不明显,但是可以从图 6 模量与温度关

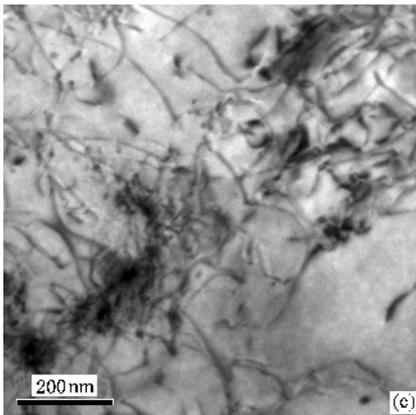
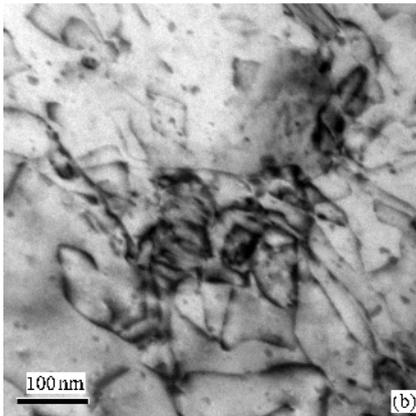
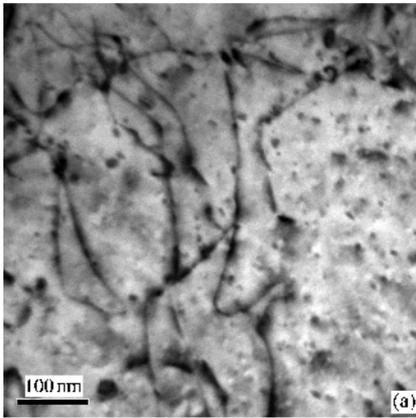


图 10 398K 时不同预应变下的位错组态 (a) 预应变为 1% ; (b) 预应变为 2.7% ;(c) 预应变为 4%

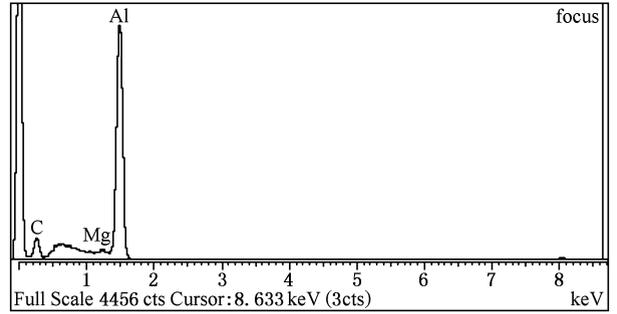


图 11 3004 铝合金位错缠结处的 X 射线能谱

所示),但是这时的沉淀相在电镜下还观察不到.这种沉淀过程在 322K 就已开始,但要析出第二相要到更高的温度(有报道说^[21, 22]在 423—523K 析出半共格的 Mg_2Si 相).所以,在“反常”锯齿屈服温区拉伸时,随着拉伸温度的升高, Mg 不断偏聚到位错上,并发生沉淀过程,使固溶体中的溶质原子含量减少,降低了 Mg 原子的有效浓度,不足以形成足够大的钉扎气团,而且此时被溶质原子钉扎的位错比低温状态下被溶质原子钉扎的要少,只有提供其更大的变形量才能形成足够大的钉扎气团,使临界应变变量增大,从而出现临界应变量为正的温度系数.

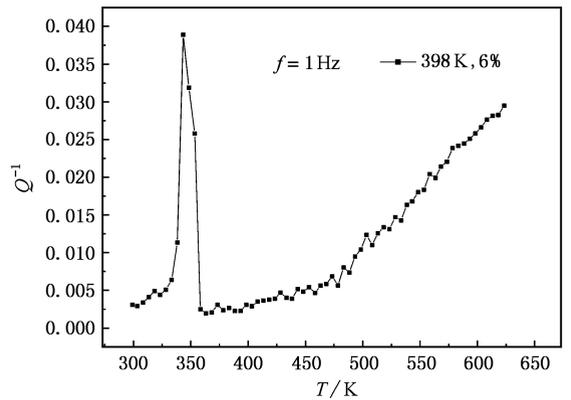


图 12 398K 时预应变 6% 后的内耗温度曲线

合金的动态应变时效过程是由 Mg 原子钉扎位错引起的,这与前面激活能计算得的结论完全符合.因此,当在 398K 温度下,形变量大于出现锯齿屈服的临界应变变量时,发生了 DSA,即溶质原子 Mg 在形变时与位错产生交互作用,钉扎位错,在位错缠结处形成溶质原子偏聚,即出现了内耗峰^[20](如图 5 所示)随着进一步增加形变量,让更多的 Mg 原子聚集在位错周围,这样就出现了沉淀内耗峰(如图 12

4. 结 论

1. 3004 铝合金在给定的应变速率下,PLC 效应仅发生在一定的温区内.存在一个临界应变变量的转变温度 T_c (322K),当 $T < T_c$,出现锯齿屈服的临界应变变量 ϵ_c 具有负的温度系数,即正常的锯齿屈服效应;当 $T > T_c$, ϵ_c 具有正的温度系数,即反常的锯齿屈服效应.

2. 由激活能的计算表明,3004 铝合金中出现的 DSA 现象是由于 Mg 溶质原子气团与位错交互作用的结果.其物理过程是溶质原子与位错的交互作用,使溶质原子钉扎位错,并在被钉扎的位错缠结处溶质原子 Mg 偏聚,导致出现沉淀内耗峰.

3. 出现反常的锯齿屈服效应是由于溶质原子 Mg 在位错上的偏聚,并可能存在第二相的析出,使

固溶体中的有效的(能够钉扎位错的)溶质原子数量减少,即降低了 Mg 原子的有效浓度,从而出现临界应变量为正的温度系数.

感谢中国科技大学固体缺陷与内耗实验室、中国科学院物质结构研究所透射电镜实验室对本研究工作的大力支持.

- [1] Qian K W , Li X Q , Xiao L G , Chen W Z , Zhang H G , Peng K P 2001 *Journal of Fuzhou University* (Natural Science Edition) **29** 8 (in Chinese) [钱匡武、李效琦、萧林钢、陈文哲、张好国、彭开萍 2001 福州大学学报 **29** 8]
- [2] Schuh C A , Nieh T G 2003 *Acta Materialia* **51** 87
- [3] Herenu S , Alvarez-Armas I , Armas A F 2001 *Scripta Materialia* **45** 739
- [4] Choudhary B K , Bhanu Sankara Rao K , Mannan S L , Kashyap B P 1999 *Materials Science and Technology* **15** 791
- [5] Wu Y L , Chao C G 2000 *Materials Science and Engineering A* **282** 193
- [6] Weaver M L , Noebe R D , Kaufman M J 1996 *Intermetallics* **4** 593
- [7] Soubodh K , Pink E 1996 *Scripta Materialia* **35** 1047
- [8] Dehghani K , Jonas J J 2000 *Metallurgical and Materials transactions* **31** 1375
- [9] Sinisa D , Mesarovic J 1995 *J. Mech. Phys. Solids* **3** 671
- [10] Kim I S , Kang S S 1995 *The International Journal of Pressure Vessels and Piping* **62** 123
- [11] Wagner D , Moreno J C , Prioul C , Frund J M , Houssin B 2002 *Journal of Nuclear Materials* **300** 178
- [12] Nortmann A , Schwink C H 1997 *Acta Mater.* **45** 2043
- [13] Baohui T 2003 *Materials Science and Engineering A* **349** 272
- [14] Balik J , Lukac P , Kubin L P 2000 *Scripta Mater.* **42** 465
- [15] Kumar S , Krol J , Pink E 1996 *Scripta Materialia* **35** 775
- [16] Yamasaki S , Bhadeshia H 2003 *Materials Science and Technology* **19** 1344
- [17] Soubodh K , Pink E 1995 *Scripta Metallurgica et Materialia* **32** 749
- [18] McCormick P G 1972 *Acta Metall.* **20** 351
- [19] Pink E , Kumar S , Tian B 2000 *Materials Science and Engineering A* **280** 17
- [20] Feng D 1987 *Metal Physics* (Beijing : Science) p231(in Chinese) [冯 端 1987 金属物理学 (北京 科学出版社) 第 231 页]
- [21] Chen L , Morris J G 1984 *Scripta Metall.* **18** 1365
- [22] Thomas G 1961 *J. Inst. Met.* **90** 57

Study of an anomalous serrated yielding phenomenon in 3004 aluminum alloy^{*}

Peng Kai-Ping^{1)†} Chen Wen-Zhe^{1)‡} Qian Kuang-Wu¹⁾

1) *College of Materials Science and Engineering, Fuzhou University, Fuzhou 350002, China*

2) *Fujian University of Technology, Fuzhou 350004, China*

(Received 14 November 2005; revised manuscript received 17 January 2006)

Abstract

The serrated yielding in metals and alloys is an important and interesting physical phenomenon. No. 3004 aluminum alloy has been subjected to tension test in a range of strain rates $5.56 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ — $5.56 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ and temperatures 223K—773K to investigate the ordinary rules of serrated yielding phenomenon. The micro-mechanism and physical essence of serrated yielding of the material has been studied by means of activation energy, internal friction and microstructure. The results show that the serrated yielding phenomenon is associated with the dynamic strain aging process. In the serrated yielding temperature region, an anomalous serrated yielding phenomenon was found. Within this temperature region, a critical transition temperature T_1 exists. The critical plastic strain for the onset of serrations has a negative or positive temperature coefficient within the temperature region lower or higher than T_1 , respectively. The former is the normal serrated yielding and the latter is called “anomalous”. It is believed that the process at the temperature region lower than T_1 is controlled by the interaction between Mg solute atom atmosphere and dislocations. In the positive coefficient region, the aggregation of Mg atoms and precipitation of second phase decrease the effective amount of Mg atoms in solid solution and leads to the appearance of a positive temperature coefficient of the critical plastic strain for the onset of serrations.

Keywords : dynamic strain aging, serrated yielding, aluminum alloy, internal friction

PACC : 6220F, 6170G

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 50441013) and the Education Department of Fujian Province, China (Grant No. JA03015).

[†] E-mail: pkp715@163.com