

金属玻璃温度依赖的拉压屈服不对称研究*

陈艳 蒋敏强 戴兰宏†

(中国科学院力学研究所, 非线性力学国家重点实验室, 北京 100190)

(2011 年 5 月 20 日收到; 2011 年 5 月 24 日收到修改稿)

考虑静水应力对自由体积演化的影响, 研究了金属玻璃在不同温度下的拉压屈服行为. 结果表明, 在拉伸和压缩载荷下, 屈服强度均满足 $(T/T_g)^{1/2}$ 的温度依赖关系; 同时, 在不同温度下, 材料的压力敏感系数保持为常值 0.1. 随着温度的升高, 压力对自由体积的影响逐渐降低, 从而导致材料的拉压屈服不对称性逐渐趋于不显著. 在高温下, 显著的结构弛豫减缓了自由体积增长速率, 从而抑制材料迅速屈服. 这些结果将有助于更深入的认识金属玻璃屈服及其拉压不对称性的内在机理.

关键词: 金属玻璃, 屈服, 拉压不对称, 自由体积

PACS: 62. 20. fg, 61. 43. Dq

1 引言

金属玻璃因其优越的力学、化学及物理性能而受到材料及力学领域研究者的广泛关注^[1-6]. 同时, 其复杂的力学变形行为对传统的认识和理论提出了一系列挑战, 其中, 如何理解金属玻璃的屈服及断裂行为成为当前研究的一个热点问题^[7-11]. 金属玻璃屈服行为具有压力敏感性^[12-18]. 固有的压力敏感性使得金属玻璃在拉压载荷下表现出不同的屈服行为, 如拉压屈服强度的不对称. 目前的工作主要集中在金属玻璃室温屈服的应力敏感研究^[7,19]及基于拉压对称的屈服强度和塑性流动随温度的变化^[20]. Johnson 和 Samwer^[21]通过建立协同剪切转变模型, 发现金属玻璃的屈服强度与温度满足 $(T/T_g)^{2/3}$ 的标度关系. Schuh 等^[9]建立了类似的幂函数关系, 且幂指数为 1/2. 可以发现, 上述两种理论均没有考虑压力的影响. Prasad 等^[22]通过对 Zr 基金属玻璃在 300 K—525 K 温度下测量约束因子 (即硬度与压缩屈服强度之比), 提出金属玻璃塑性流动在不同温度下均存在压力敏感性. 最近, 在剪切转变模型中引入剪胀效应, Sun 等^[23]建

立了同时考虑压力敏感效应及温度影响的金属玻璃屈服准则. 然而, 温度如何影响金属玻璃的拉压屈服行为及其不对称性? 这个问题目前尚不清楚. 本文基于金属玻璃自由体积模型^[24-26], 通过引入静水应力的影响, 对金属玻璃在不同温度 (300 K—600 K), 单轴拉伸和压缩下的屈服行为进行分析. 研究表明, 无论是拉伸屈服强度还是压缩屈服强度均服从 $(T/T_g)^{1/2}$ 的温度依赖关系. 同时, 压力敏感系数保持为常值, 不随温度的变化而变化. 进一步, 从自由体积演化的角度揭示了金属玻璃拉压屈服行为为温度依赖的内在机理.

2 理论模型及计算

自由体积模型最初由 Cohen 和 Turnbull 提出^[16]. Spaepen^[24]首先将该理论应用到金属玻璃中, 并建立了基于自由体积的塑性流动模型, 该模型不仅能够描述金属玻璃低温下的屈服和非均匀流动, 同时可以表征高温下的均匀流动. 在该模型中, 自由体积 v_f 为每个原子的平均自由体积; 其

* 国家自然科学基金 (批准号: 10725211, 11002144, 11021262, 11132011)、国家自然科学基金委员会 - 中国工程物理研究院联合基金 (批准号: 10976100) 和国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2009CB724401, 2012CB937500) 资助的课题.

† E-mail: lhdai@lnm.imech.ac.cn

净增长率由两部分决定,即剪胀引起的自由体积产生和扩散引起的自由体积湮灭.实际上,由于金属玻璃固有的压力敏感效应^[12,13],外加静水应力会对自由体积的演化产生影响.静水应力引起的自由体积增长或减少将加速或抑制材料黏度的下降和软化过程^[27,28].通过考虑静水应力的影响,自由体积演化方程可表示为

$$\frac{\partial v_f}{\partial t} = v^* f \exp \left[-\frac{\alpha v^*}{v_f} \right] \exp \left[-\frac{\Delta G^m}{k_B T} \right] \times \frac{2\alpha k_B T}{v_f S} \times \left(\cosh \frac{\sigma_e \Omega}{2k_B T} - 1 \right) + f(\sigma_{kk}) - \frac{v^*}{n_d} f \exp \left[-\frac{\alpha v^*}{v_f} \right] \exp \left[-\frac{\Delta G^m}{k_B T} \right], \quad (1)$$

等式右边,第一项表示由剪胀引起的自由体积产生率,第二项表示由静水应力引起的自由体积变化率,第三项表示由扩散导致的自由体积湮灭率. $\bar{v}_f = v_f/\alpha v^*$ 为约化的自由体积浓度(为方便起见,下文统一简称为自由体积浓度),其中 α 为几何因子, v^* 为单个原子的硬球体积. f 是原子振动频率(一般近似为Debye频率); $\sigma_e = \sqrt{3s_{ij}s_{ij}}/2$ 为等效应力,其中偏应力 $s_{ij} = \sigma_{ij} - \sigma_{kk}\delta_{ij}/3$; k_B 是波尔兹曼常数; T 是温度; Ω 是原子体积; $\beta = v^*/\Omega \sim 1$; $S = E/3(1 - \nu)$ 是Eshelby因子,其中 E 为杨氏模量, ν 为泊松比; n_d 是湮灭等于 v^* 的自由体积所需的原子跳跃步数,一般取值为3—10; ΔG^m 是激活能,可以由 $(8/\pi^2)G\gamma_C^2\zeta\Omega_0$ 进行估算(剪切模量 $G \sim E/2(1 + \nu)$,STZ体积 $\Omega_0 \sim 2v^*$, $\gamma_C \sim 0.026$, $\zeta \sim 3$)^[21].

关于静水应力对自由体积的影响,目前主要存在两种假设.第一种,认为原子体积(硬球体积)不因外加静水应力而发生改变,静水应力引起的材料体积膨胀完全归因于自由体积的变化^[26,28].然而,这种情况仅在拉伸静水应力下适用,因为压缩静水应力通常引起自由体积的减小,从而可能造成自由体积为负的情况.另一种,认为外加应力导致材料体积变化由自由体积和原子共同承担,即原子体积和自由体积一样在静水应力作用下发生改变^[13,16].该假设可以同时合理的表征拉伸和压缩静水应力下自由体积的改变.基于此假设,可以得到静水应力引起的自由体积变化率为

$$f(\sigma_{kk}) = \frac{v_f}{K} \cdot \frac{\partial \sigma_m}{\partial t}, \quad (2)$$

式中 K 是体积模量, σ_m 是静水应力.

在不同的温度下,金属玻璃具有不同的初始自由体积.通过从原子尺度计算发现,在玻璃态转变区约化自由体积浓度变化范围为2.7%到4.1%^[29–31].而在室温条件下,Wang等得到了金属玻璃临界屈服点对应的约化自由体积浓度为2.4%^[32].由此可以合理假设初始自由体积浓度的变化范围为2.3%(室温 T)到3.0%(玻璃态转变温度 T_r),且初始自由体积随温度的变化可近似为简单的线性关系^[29]

$$v_0 = 0.023 + 0.007 \cdot \frac{T - T_r}{T_g - T_r}. \quad (3)$$

基于公式(1)–(3),以下针对不同温度下的金属玻璃拉压屈服行为开展数值研究.本文考虑单轴拉伸和单轴压缩的应力加载方式,在单轴拉伸/压缩应力 σ 达到拉伸或压缩屈服强度 σ_y 前保持恒定加载率为 $\pm E \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$.不同温度(300 K, 400 K, 500 K和600 K)下的初始自由体积 v_0 可由(3)式确定,将 v_0 代入(1)式即可实现不同温度下自由体积随外加应力演化的数值计算.本文主要关注弹性变形阶段及塑性屈服临界点的自由体积演化.以下结果基于一种典型的金属玻璃材料,其力学和材料参数为^[26,32,33]:杨氏模量 $E = 96 \text{ GPa}$,泊松比 $\nu = 0.36$, $k_B = 1.38 \times 10^{-23} \text{ J/K}$, $v^* = 1.69 \times 10^{-29} \text{ m}^3$, $\Omega = 2.11 \times 10^{-29} \text{ m}^3$, $T_r = 300 \text{ K}$, $T_g = 623 \text{ K}$, $\alpha = 1$, $f = 6.542 \times 10^{12} \text{ Hz}$, $n_d = 3$ 和 $\beta = 1$.

3 结果与讨论

图1给出了在不同温度下(300 K, 400 K, 500 K和600 K),自由体积分别随单轴拉伸和压缩应力演化的曲线.从总体上看,自由体积在初始阶段演化比较缓慢,当达到某一临界应力时,自由体积迅速增加.自由体积的快速增加往往对应于材料黏度的剧烈下降,即材料屈服^[24,33,34].在室温下(300 K),可以看到屈服临界点对应的约化自由体积浓度大约为2.4%,这与Wang等的结果正好一致^[32];拉压屈服强度较实验测量值偏大,在数值计算的合理范围内.对比压缩情况,拉伸载荷下通常屈服强度较小而临界自由体积浓度较高,这表明在拉伸下自由体积增长更迅速从而促进材料的屈服.从图中,进一步可以发现,拉压强度的差异随着温度的增加而逐渐减小.与低温情况相比,在高温条件

下 (如 500 K 和 600 K) 自由体积表现出先减小后增加的趋势, 其内在机理将在下文中予以讨论.

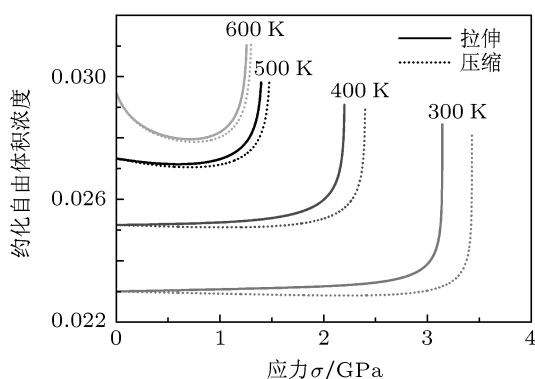


图1 不同温度下自由体积随拉伸/压缩应力的演化曲线

为了揭示压力和温度对屈服强度的影响, 图2给出了不同温度下的拉伸和压缩屈服强度. 可以看到, 拉伸和压缩强度均随着温度的升高而降低, 且拉压存在着明显的差别. 这表明屈服强度不仅依赖于温度同时受到压力的影响. Sun 等考虑了以上两种因素, 建立了金属玻璃的屈服强度准则^[23]. 我们发现通过该准则能够很好的拟合已有的拉伸、压缩强度. 根据 Sun 等的分析^[23], 剪切屈服强度 ($\sim \sigma_y/2$) 满足

$$\tau_y = \hat{\tau} \left(1 - (C \cdot T/T_g)^{1/2} \right) - \mu \sigma_m, \quad (4)$$

式中 $\hat{\tau}$ 是绝对零度时的材料剪切强度, μ 是压力敏感因子, 参数 C 的表达式为 $C = \frac{1}{\Omega_0 \hat{\tau}} G k_B T_g \ln(\omega_0 / \vartheta \dot{\gamma}) / (4\xi_s^2 / A - \xi_s)$, 其中 ω_0 为尝试频率, $\dot{\gamma}$ 为外加应变率, ϑ 是量阶为 1 的无量纲常数, ξ_s 和 A 分别为泊松比和剪胀系数的函数. 利用 (4) 式分别对拉伸和压缩屈服强度进行拟合, 如图2所示. 通过拟合, 可以得到参数 C 和 $(\hat{\tau} + \mu \sigma_m)$ 的值. 在拉伸和压缩条件下, 屈服强度均很好的满足 $(T/T_g)^{1/2}$ 的温度依赖关系且得到了相同的拟合参数 $C = 0.8$, 这表明参数 C 是一个不依赖压力的因子. 由 C 的理论表达式可以发现, 其不包含压力相关的项^[23]. 通过对比拉伸和压缩拟合曲线, 可以进一步确定剪切强度 $\hat{\tau}$ 为 4.1 GPa, 接近理想剪切强度 ($\sim G/10$), 及不同温度下的压力敏感因子, 如图3所示. 我们发现, 压力敏感系数在低温和高温下均保持常值 0.1, 表明温度对压力敏感系数几乎不产生影响. 同时, 该结果与其他数值计算及实验测得的压力敏感系数值 0.12 接近^[12,35,36]. 然而, 由于屈服点对应的静水应力通常随温度的增加而减

小, 因而拉压强度差异仍表现出对温度的依赖.

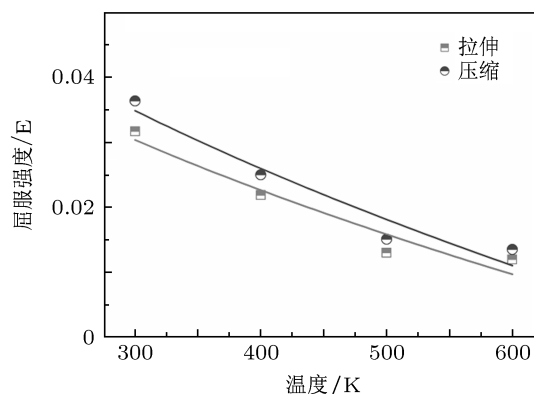


图2 不同温度下的拉伸/压缩屈服强度及强度随温度变化的拟合曲线

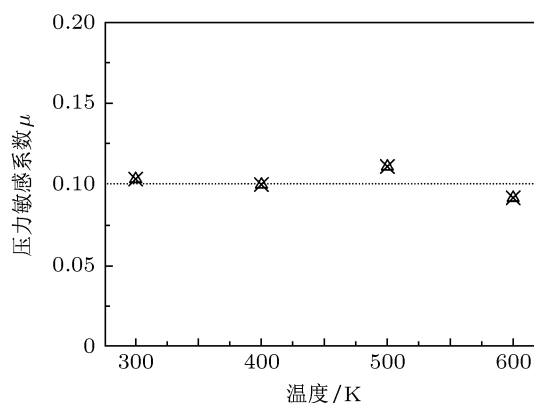


图3 不同温度下的压力敏感系数

进一步, 温度如何影响拉压屈服不对称呢? 以下从自由体积演化的角度来探讨这一问题. 我们知道, 自由体积的净增长量由三部分组成, 即剪切引起的自由体积增长 v_{fe} ; 静水应力引起的自由体积改变 v_{fm} ; 及扩散导致的自由体积湮灭 v_{fa} , 分别对应 (1) 式中的一、二、三项. 图4描绘了在室温 300 K 下, v_{fm} , v_{fe} 和 v_{fa} 随外加应力的演化. 由图4(a)可知在拉伸初始阶段, v_{fm} 较 v_{fe} 增长更快. 当应力达到某一临界应力, 如 2.75 GPa, v_{fe} 迅速增长并超过 v_{fm} , 发挥主导作用. 在整个过程中 v_{fa} 变化很小, 说明材料结构弛豫相当缓慢. 可见, 剪切引起的自由体积快速积累及结构弛豫的落后导致室温屈服往往在瞬间发生. 同时, 静水应力引起的自由体积增长 v_{fm} 促进了拉伸下的材料屈服. 而在压缩载荷下, v_{fm} 表现出相反的作用, 如图4(b)所示. 即压应力引起自由体积的减少抑制了材料的软化过程, 从而使得材料在较大的外加应力下才能发生屈服.

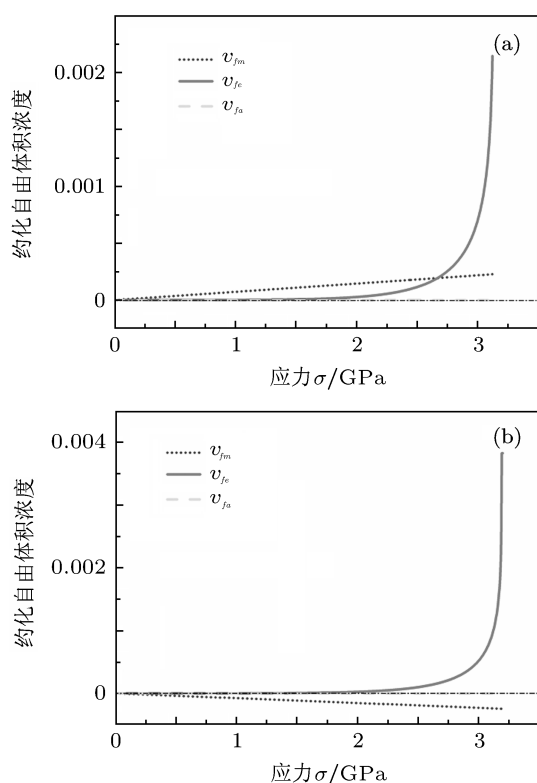


图4 $T = 300\text{ K}$ 时, v_{fm} , v_{fe} 和 v_{fa} 随外加应力的演化
图 (a) 单轴拉伸情况; (b) 单轴压缩情况

随着温度的升高, 扩散引起的自由体积湮灭逐渐变得显著. 当 $T = 600\text{ K}$ 时, 如图 5 所示, 由于结构弛豫伴随的自由体积湮灭速率大于自由体积增长速率, 使得总的自由体积在加载初始阶段表现出下降的趋势; 随着进一步加载, 剪切引起的自由体积增长 v_{fe} 逐渐超过 v_{fa} , 使得材料发生缓慢的软化. 这也解释了前面讨论中为什么总自由体积在低温下增长曲线比高温下更陡峭的原因. 值得指出的是, 在高温下静水应力引起的自由体积变化量 v_{fm} 在拉伸 (如图 5(a) 所示) 和压缩下 (如图 5(b) 所示) 相对另两项均为小量, 对自由体积演化的促进或抑制作用不明显, 从而材料表现出较小的拉伸压缩不对称性. 由此可见, 随着温度的升高, v_{fm} 对自由体积演化的影响被削弱, 从而使得金属玻璃中的拉压强度不对称性减弱.

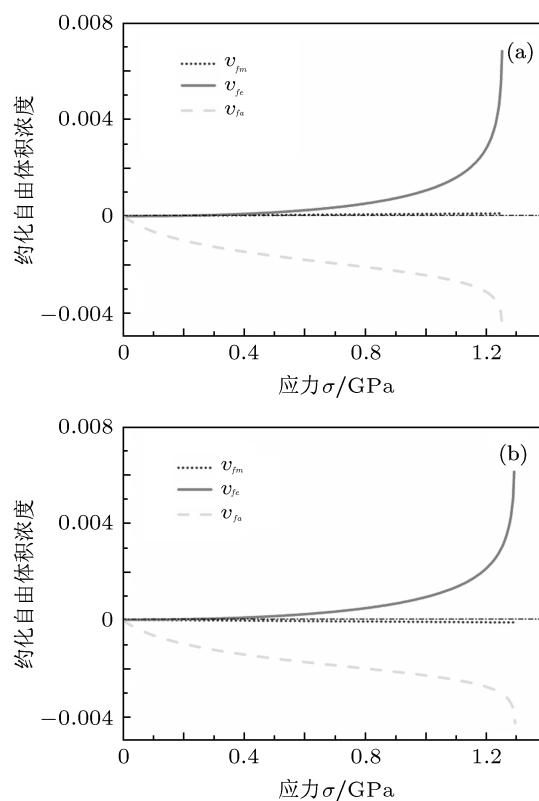


图5 $T = 600\text{ K}$ 时, v_{fm} , v_{fe} 和 v_{fa} 随外加应力的演化
图 (a) 单轴拉伸情况; (b) 单轴压缩情况

4 结 论

通过引入静水应力对自由体积演化的影响, 研究了金属玻璃在不同温度下的拉压屈服行为. 在拉伸和压缩载荷下, 屈服强度均满足 $(T/T_g)^{1/2}$ 的温度依赖关系; 同时, 在不同温度条件下, 材料的压力敏感系数为常值 0.1, 表现出极小的温度依赖. 进一步, 从自由体积演化行为揭示了不同温度下拉压屈服行为不对称的内在机理: 压力对自由体积演化的影响将随着温度的升高而减弱, 从而导致金属玻璃的拉伸压缩不对称性趋于不显著. 在高温下, 明显的结构弛豫将减缓自由体积增长速率从而抑制材料迅速屈服.

- [1] Wang W H, Dong C, Shek C H 2004 *Mater. Sci. Eng. R* **44** 45
- [2] Yao K F, Ruan F, Yang Y Q, Chen N 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 122106
- [3] Li G, Liu J, Liu R P 2007 *Chin. Phys. Lett.* **24** 2323
- [4] Dai L H, Bai Y L 2008 *Int. J. Impact Eng.* **35** 704

- [5] Wang X Y, Chen Y, Zhang N Y, Zhao L P, Pang Y T, Wang W K 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 4004 (in Chinese) [王秀英, 陈莹, 张宁玉, 赵丽萍, 庞岩涛, 王文魁 2007 物理学报 **56** 4004]
- [6] Guo G Q, Yang L, Zhang G Q 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 016103 (in Chinese) [郭古青, 杨亮, 张国庆 2007 物理学报 **60** 016103]

- [7] Jiang M Q, Ling Z, Meng J X, Dai L H 2008 *Philos. Mag.* **88** 407
- [8] Meng J X, Ling Z, Jiang M Q, Zhang H S, Dai L H 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 171909
- [9] Schuh C, Hufnagel T, Ramamurty U 2007 *Acta Mater.* **55** 4067
- [10] Trexler M M, Thadhani N N 2010 *Prog. Mater. Sci.* **55** 759
- [11] Chen M W 2008 *Annu. Rev. Mater. Res.* **38** 445
- [12] Schuh C A, Lund A C 2003 *Nat. Mater.* **2** 449
- [13] Flores K M, Dauskardt R H 2001 *Acta Mater.* **49** 2527
- [14] Ott R T, Sansoz F, Jiao T, Warner D, Fan C, Molinari J F, Ramesh K T, Hufnagel T C 2006 *Metall. Mater. Trans. A* **37** 3251
- [15] Hsueh C H, Bei H, Liu C T, Becher P F, George E P 2008 *Scr. Mater.* **59** 111
- [16] Cohen M H, Turnbull D 1959 *J. Chem. Phys.* **31** 1164
- [17] Zong H T, Ma M Z, Zhang X Y, Qi L, Li G, Jing Q, Liu R P 2011 *Chin. Phys. Lett.* **28** 036103
- [18] Anand L, Su C 2005 *J. Mech. Phys. Solids* **53** 1362
- [19] Zhang Z F, Eckert J, Schultz L 2003 *Acta Metall.* **51** 1167
- [20] Lu J, Ravichandran G, Johnson W L 2003 *Acta Mater.* **51** 3429
- [21] Johnson W, Samwer K 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 195501
- [22] Prasad E K, Raghavan R, Ramamurty U 2007 *Scr. Mater.* **57** 121
- [23] Sun L, Jiang M Q, Dai L H 2010 *Scr. Mater.* **63** 945
- [24] Spaepen F 1977 *Acta Metall.* **25** 407
- [25] Huang R, Suo Z, Prevost J H, Nix W D 2002 *J. Mech. Phys. Solids* **50** 1011
- [26] Gao Y F 2006 *Modelling Simul. Mater. Sci. Eng.* **14** 1329
- [27] Keryvin V 2008 *J. Phys.* **20** 114119
- [28] Steif P S 1983 *J. Mech. Phys. Solids* **31** 359
- [29] Launey M E, Kruzic J J, Li C, Busch R 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 051913
- [30] Li F, Liu X, Hou H, Chen G, Li M 2009 *Intermetallics* **17** 98
- [31] Sietsma J, Thijsse B J 1995 *Phys. Rev. B* **52** 3248
- [32] Wang J G, Zhao D Q, Pan M X, Wang W H, Song S X, Nieh T G 2010 *Scr. Mater.* **62** 477
- [33] Yang Q, Mota A, Ortiz M 2005 *Comput. Mech.* **37** 194
- [34] Jiang M Q, Dai L H 2009 *J. Mech. Phys. Solids* **57** 1267
- [35] Lund A C, Schuh C A 2003 *Acta Metall.* **51** 5399
- [36] Packard C E, Schuh C A 2007 *Acta Mater.* **55** 5348

Temperature-dependent yield asymmetry between tension and compression in metallic glasses*

Chen Yan Jiang Min-Qiang Dai Lan-Hong[†]

(State Key Laboratory of Nonlinear Mechanics, Institute of Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

(Received 20 May 2011; revised manuscript received 24 May 2011)

Abstract

By taking the pressure effect into account in the free volume evolution, the yield asymmetry between tension and compression of metallic glasses (MGs) under different temperatures is investigated. The yield strength in MGs with a $(T/T_g)^{1/2}$ temperature dependence is obtained for both tension and compression. The pressure-sensitive factor is derived to be a constant ~ 0.1 within a broad range of temperatures. Furthermore, it is revealed that the declining effect of pressure on the free volume evolution causes a weaker tension-compression asymmetry with temperature increasing. The significant structural relaxation at high temperature slows down the free volume evolution and hinders the sharp yield. These results improve our understanding of the underlying mechanisms of the yielding and its asymmetry between tension and compression in MGs.

Keywords: metallic glass, yield, asymmetry between tension and compression, free volume

PACS: 62.20.fg, 61.43.Dq

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10725211, 11002144, 11021262, 11132011), the National Natural Science Foundation of China-NSAF (Grant No. 10976100), and the National Basic Research Program of China (Grant Nos. 2009CB724401, 2012CB937500).

[†] E-mail: lhdai@lnm.imech.ac.cn