

مطالعه تبلور مجدد استاتیکی مس پس از تغییر شکل پلاستیک شدید

زهرا عباسی^۱، رامین ابراهیمی^{۲*}

چکیده

خواص مکانیکی و پایداری حرارتی از جمله مهم‌ترین جنبه‌های کاربرد تجاری فلزات شدیداً تغییر شکل یافته هستند. ریزساختار ماده کنترل‌کننده خواص مکانیکی نهایی است. پایداری حرارتی ریزساختار را می‌توان به صورت مقاومت به فرایندهای بازیابی و تبلور مجدد تعریف کرد که این فرایندها بازگرداننده ریزساختار تغییر شکل یافته هستند. نقش اصلی کنترل تحولات ریزساختاری بر عهده‌ی فرایندهای تبلور مجدد و بازیابی است که پدیده‌های فعال شده با دما بوده و باعث بازگردانی ریزساختار تغییر شکل یافته می‌شوند. در این پژوهش تبلور مجدد استاتیکی مس شدیداً تغییر شکل یافته با روش نوین اکستروژن برشی ساده (SSE) مورد بررسی قرار گرفته است. برای این منظور، نمونه‌های تغییر فرم یافته با کرنش‌های مختلف در محدوده دمایی ۱۸۰ تا ۲۹۰ درجه سانتیگراد مورد آنالیز ریزساختاری و آزمایش سختی قرار گرفتند. سپس با محاسبه کسر نرم شدن، ثوابت معادله JMAK در شرایط مختلف تعیین گردیدند. نتایج حاکی از آن است که با افزایش کرنش از ۱/۱۵ به ۶/۹، اندازه کریستال و پایداری حرارتی کاهش می‌یابد، هم‌چنین زمان لازم برای وقوع ۵۰٪ تبلور مجدد در دمای ۲۱۰°C که برای پاس اول ۸۶۴ ثانیه بوده در پاس دوم به ۲۹۹ ثانیه و در پاس ششم به ۲۰۷ ثانیه تقلیل می‌یابد.

واژه‌های کلیدی: نانوساختار، تغییر شکل پلاستیک شدید، بازیابی و تبلور مجدد استاتیکی.

^۱ - دانشجوی کارشناسی ارشد، بخش مهندسی مواد، دانشکده مهندسی، دانشگاه شیراز

^۲ - دانشیار، بخش مهندسی مواد، دانشکده مهندسی، دانشگاه شیراز

* - نویسنده مسوول مقاله: ebrahimi@shirazu.ac.ir

پیشگفتار

مواد فوق ریزدانه^۱ با اندازه دانه‌ای کمتر از یک میکرومتر کسر حجمی بزرگی از مرزدانه را دارا هستند، بنابراین خواص منحصر بفرد بسیاری را از خود نشان می‌دهند [۱ و ۲]. امروزه تکنیک‌های تغییر شکل پلاستیک شدید (SPD) به علت توانایی آنها در ایجاد مواد فوق ریزدانه حجیم عاری از هر نوع تخلخل و آلودگی مورد توجه بسیاری قرار گرفته‌اند؛ عدم وجود تخلخل و آلودگی، در مطالعه خواص فیزیکی و مکانیکی و هم‌چنین کاربردهای تجاری این مواد حائز اهمیت است [۱-۳]. انرژی ذخیره شده در ماده تغییر شکل یافته به جهت کریستالی ماده، نابجایی‌ها و ابعاد ساختار دانه‌های فرعی بستگی دارد؛ لذا ریزساختار ماده نقش اساسی را در خواص نهایی ماده ایفا می‌کند [۴]. پدیده‌های فعال شده حرارتی بازیابی و تبلور مجدد، دو فرایند اصلی بازگرداننده ریزساختار می‌باشند. از این رو پس از تغییر شکل، مواد معمولاً تحت عملیات حرارتی قرار می‌گیرند، چرا که عملیات حرارتی نقش بسزایی در بهینه‌سازی خواص مواد داراست [۴ و ۵]. پایداری حرارتی یک ریزساختار را می‌توان به صورت مقاومت به فرایندهای بازیابی و تبلور مجدد، تعریف کرد و می‌توان از نظر کمی آن را به صورت زمان ۵۰ درصد تبلور مجدد ماده (در آزمایش‌های هم‌دمای) و یا دمای تبلور مجدد ۵۰ درصد ماده (در حرارت‌دهی پیوسته) اندازه‌گیری نمود [۵ و ۶]. بازیابی و تبلور مجدد می‌توانند در دو حالت دینامیکی (در حین تغییر شکل ماده) و یا استاتیکی (پس از پایان تغییر شکل) به وقوع بپیوندند [۴]. تبلور مجدد استاتیکی فرایندی دو مرحله‌ای شامل جوانه‌زنی و رشد است. بعد از شکل گرفتن هسته‌های جدید عاری از کرنش، این هسته‌ها با صرف انرژی ذخیره شده شروع به رشد به درون زمینه تغییر شکل یافته نموده و دانسیته نابجایی‌ها در ناحیه تبلور مجدد یافته بسیار کمتر از ناحیه تغییر شکل یافته می‌شود [۴]. مدل^۲ JMAK، مدلی متداول برای بررسی سینتیک تبلور مجدد است که با رابطه زیر بیان می‌شود [۷]:

$$X_v = 1 - \exp(-kt^n) \quad (1)$$

که X_v و t به ترتیب کسر تبلور مجدد یافته و زمان بوده و k ثابتی است که به جوانه‌زنی و رشد بستگی دارد، n نیز توان اورمی^۴ می‌باشد.

در این پژوهش قطعات مس خالص تجاری توسط اکستروژن برشی ساده (SSE)^۵ تغییر شکل یافتند. نمونه‌ها با کرنش‌های مختلف تحت عملیات آنیل در دماها و زمان‌های مختلف قرار گرفتند تا با وقوع تبلور مجدد استاتیکی، انرژی ذخیره شده ناشی از تغییر شکل پلاستیک شدید با جوانه‌زنی و رشد دانه‌ها آزاد گردد. سپس ریزساختار ماده مورد بررسی قرار گرفت و با اطلاعات حاصل از ریزسختی سنجی، کسر نرم شدن ماده بر اساس مدل JMAK برای شرایط متفاوت موجود محاسبه گردید. با بهره‌گیری از سینتیک تبلور مجدد، زمان تبلور مجدد ۵۰ درصد و انرژی اکتیواسیون ماده نیز برای کرنش‌های مختلف محاسبه گردیدند.

مواد و روش‌ها

مس خالص با اندازه دانه اولیه $50 \mu\text{m}$ به عنوان نمونه برای فرایند اکستروژن برشی ساده مورد استفاده قرار گرفت. به منظور همگن‌سازی، عملیات حرارتی به مدت ۲ ساعت و در دمای 625°C بر روی نمونه‌های اولیه انجام گرفت و سپس نمونه‌ها درون کوره سرد گردیدند. فرایند اکستروژن برشی ساده در دمای اتاق و توسط قالبی با زاویه تغییر شکل حداکثر $\alpha = \pi/4$ بر روی نمونه‌هایی با ابعاد $10 \times 10 \times 30$ میلی‌متر صورت گرفت. نمونه‌ها در حین عبور از قالب، مطابق با شکل ۱ دچار تغییر شکل می‌شوند. طبق رابطه فون میزز، کرنش معادل هر پاس برابر با $1/15$ است، لذا با تکرار فرایند می‌شود [۸]. نمونه‌های حاصل از پاس اول، دوم و ششم اکستروژن در محدوده دمای 180°C تا 290°C و در بازه‌های زمانی متفاوتی در کوره الکتریکی تحت عملیات حرارتی قرار گرفتند. نمونه‌های حاصل ابتدا تا سمباده ۳۰۰۰ و سپس با خمیر الماسه $1 \mu\text{m}$ پولیش گردیدند. آنالیز متالوگرافی توسط میکروسکوپ نوری انجام و ریزسختی

^۱ - Ultra-Fine Grain Materials(UFGs)

^۲ - Severe Plastic Deformation

^۳ - Jonson-Mehl-Avrami-Kolomogrov

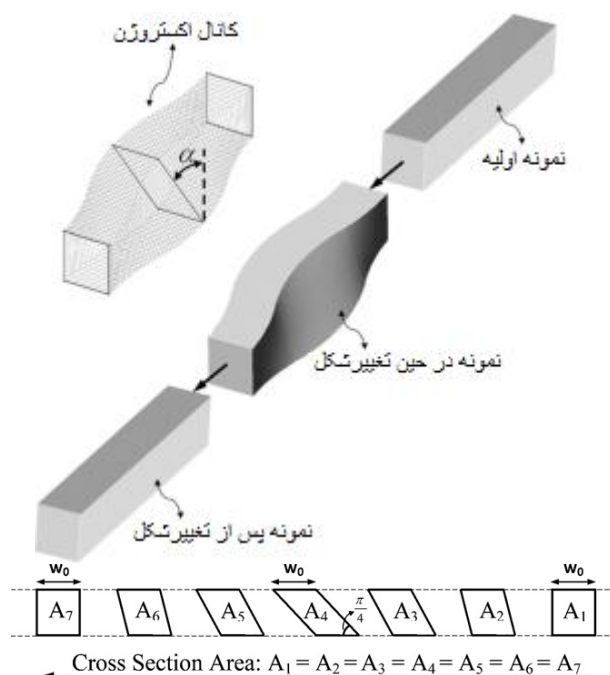
^۴ - Avrami Exponent

^۵ - Simple Shear Extrusion

کسر تبلور مجدد یافته ماده، براساس رابطه ۲ با استفاده از داده‌های تجربی ریزسختی، محاسبه شد [۷]:

$$X_V = \frac{H_0 - H_t}{H_0 - H_{full\ rex}} \quad (2)$$

نمونه‌ها نیز با استفاده از روش ویکرز با اعمال نیروی ۵۰ گرمی به مدت ۱۵ ثانیه بانرخ ۱۰ g/sec اندازه‌گیری شد.



شکل ۱. نمایش شماتیک از فرایند اکستروژن برشی ساده و نحوه تغییر شکل ماده [۸].

اندازه کریستال برای نمونه‌های پاس اول و ششم محاسبه شد. عملیات XRD با اندازه گام ۰/۰۲ درجه، از زاویه ۴۰ تا ۱۰۰ درجه و با پرتوی $\text{Cu K}\alpha$ با طول موج $\lambda = 0.15406 \text{ nm}$ صورت گرفت. نتیجه الگوی پراش ماده در شکل ۳ آورده شده است. به منظور محاسبه اندازه کریستال‌ها، نتایج حاصل با روش ویلیامسون-هال اصلاح‌شده [۹] تحلیل گردیدند. اندازه کریستال برای پاس اول برابر با ۱۰۱ و برای پاس ششم برابر ۲۵ نانومتر، محاسبه شد. شایان ذکر است که اندازه کریستال بدست آمده حاصل از آنالیز XRD بطور کلی کوچک‌تر از اندازه کریستال بدست آمده از سایر روش‌ها مانند TEM است [۱۰].

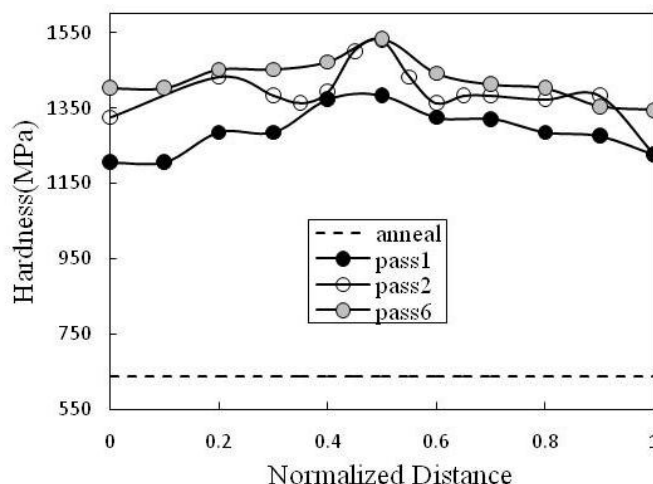
که H_0 ریزسختی ماده تغییر شکل یافته، H_t ریزسختی ماده آنیل شده در زمان t و $H_{full\ rex}$ ریزسختی ماده کاملاً تبلورمجدد یافته است. سپس توان اورمی n با استفاده از رابطه ۳ محاسبه گردید [۷].

$$n = \frac{\partial \ln(\ln(1/(1-X_V)))}{\partial \ln(t)} \quad (3)$$

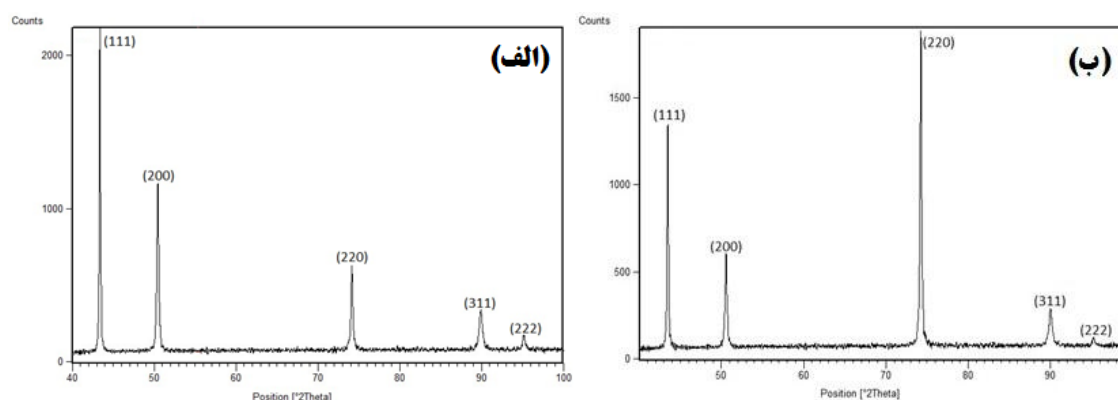
نتایج و بحث

شکل ۲ نمودار ریزسختی ویکرز روی صفحه عمود بر جهت اکستروژن برای کرنش‌های مختلف را نشان می‌دهد. خط پایین شکل نشان‌دهنده سختی ماده پس از همگن-سازی اولیه است. همان‌گونه که مشاهده می‌شود، سختی در ماده متقارن بوده و در وسط نمونه بیش‌ترین مقدار را داراست که این موضوع با توزیع کرنش در محصولات فرایند اکستروژن برشی ساده مطابقت دارد [۸].

¹- Modified Williamson-Hall



شکل ۲. منحنی توزیع سختی بر روی خط مرکز سطح مقطع نمونه اکستروژده



شکل ۳. الگوی پراش نمونه: (الف) پاس اول و (ب) پاس ششم

با آنیل نمونه‌ها در فواصل زمانی و دمایی متفاوت، انرژی ذخیره شده حاصل از تغییر شکل در ماده با پدیده‌های بازیابی و تبلور مجدد آزاد می‌گردد. تبلور مجدد و بازیابی دو پدیده رقیب بوده و با شروع تبلور مجدد، روند بازیابی به شدت کاهش می‌یابد [۷]. مس از جمله موادی است که انرژی نقص در چیده شدن^۱ نسبتاً کمی دارد (78 mJm^{-2}) و از آنجا که بازیابی یا به عبارت دیگر صعود و لغزش متقاطع نابجایی‌ها تحت تأثیر انرژی نقص در چیده شدن است، لذا بازیابی در حین عملیات حرارتی اثر چندانی بر ریزساختار مس نداشته و اغلب تحولات ریزساختاری به تبلور مجدد بازمی‌گردد [۷].

انتخاب دما و زمان مناسب برای مطالعه فرایندهای فعال شده با دما از اهمیت بسزایی برخوردار است. از آنجا که در فرایندهای صنعتی، دماهای بالا و زمان‌های طولانی ملزم به صرف هزینه بالایی بوده و همچنین کنترل زمان‌های کوتاه در عمل غیرممکن است، لذا بازه‌های دمایی و زمانی برگزیده شده در این پژوهش بهینه‌ترین حالت ممکن را دارا می‌باشند. به منظور بررسی اثر دمای آنیل، نمونه پاس اول از دمای اتاق تا دمای 250°C با نرخ ثابت $40^\circ\text{C}/\text{min}$ گرم شد. نمودار شار حرارتی بر حسب دما (شکل ۴) دارای یک پیک در دمای 175°C است که این مقدار با مقادیر موجود در سایر تحقیقات مطابقت دارد [۶ و ۳]. از این دما به عنوان دمای شروع تبلور مجدد در مس فوق ریزدانه یاد می‌شود [۶ و ۳]. لذا در این پژوهش عملیات آنیل در محدوده دمایی بالاتر از 180°C ، دمای شروع تبلور مجدد مس، انجام شد.

^۱ - Stacking Fault Energy

تصاویر انتخابی میکروسکوپ نوری نمونه‌های حاصل از این پژوهش، در شکل ۶ آورده شده است. شکل ۶- (الف) تصویر ریزساختار نمونه همگن‌سازی شده اولیه، ۶- (ب) ریزساختار نمونه پس از تغییر شکل پاس ششم، ۶- (ج) و (د) به ترتیب ریزساختار نمونه پاس ششم پس از عملیات حرارتی در دمای 210°C به مدت ۲۰۰ ثانیه و ۴۰۰ ثانیه را نشان می‌دهند. با مقایسه تصاویر، به وضوح روند جوانه‌زنی در ماده و تحول ریزساختار بر اثر تبلور مجدد قابل مشاهده است.

با به دست آوردن مقادیر k و n برای حالات مختلف، با استفاده از مدل JMAK، زمان تبلور مجدد کسر ۵۰ درصدی ماده طبق رابطه زیر محاسبه می‌گردد [۷]:

$$t_{0.5} = \left(\frac{k}{0.693} \right)^{\frac{1}{n}} \quad (4)$$

و مقادیر بدست آمده برای $t_{0.5}$ در رابطه (۵) جایگذاری می‌گردند [۷]:

$$\frac{1}{t_{0.5}} = C \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \quad (5)$$

سپس با رسم نمودار $\ln(t_{0.5})$ بر حسب معکوس دما و محاسبه شیب این خط می‌توان انرژی فعال‌سازی را محاسبه نمود (جدول ۲). انرژی فعال‌سازی، بیان‌گر میزان انرژی لازم برای وقوع پدیده‌های بازایی و تبلور مجدد است. بطور کلی رابطه زیر میان $t_{0.5}$ و کرنش برقرار است [۱۱]:

$$t_{0.5} = A\varepsilon^p \quad (6)$$

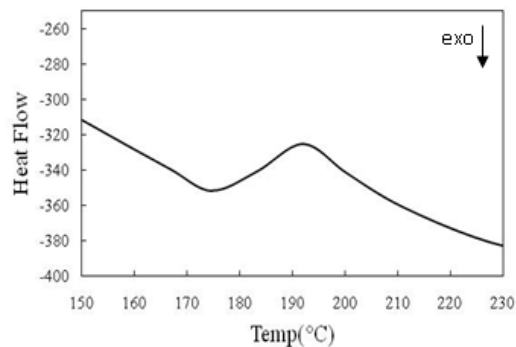
با استفاده از رابطه ۲ کسر نرم‌شدن برای نمونه‌ها پس از عملیات حرارتی در دماها و زمان‌های مختلف محاسبه شد. با استفاده از رابطه ۳ توان اورمی برای کرنش‌های مختلف در این پژوهش محاسبه گردید که نتایج در جدول ۱ آورده شده است. حال با جایگذاری مقادیر بدست آمده در رابطه ۱ منحنی کسر نرم‌شدن بر اساس زمان در دماهای مختلف در شکل ۵ رسم گردید. نمونه شدیداً تغییر شکل پلاستیک یافته، حاوی مقادیر زیادی از مرزدانه‌های فرعی است که انرژی حاصل از تغییر شکل را در خود ذخیره نموده‌اند. این انرژی ذخیره‌شده، نیرو محرکه بازایی و تبلور مجدد است. در شکل ۵ مشاهده می‌شود که با افزایش کرنش و انرژی ذخیره‌شده در ماده در یک دمای خاص، نمودار به سمت زمان‌های کمتر می‌رود. در زمان‌های آغازین مقداری از انرژی ذخیره‌شده در ماده، بدون ایجاد تغییرات محسوس در خواص مکانیکی در اثر بازایی آزاد می‌شود. در این مرحله در اثر بازآرایی نابجایی‌های مرزی، مرزهای کم‌زاویه پایدارتری ایجاد می‌گردند. با این وجود، این تغییر در مرزدانه‌های فرعی قادر به تولید مرزهای بزرگ‌زاویه نبوده و فقط می‌تواند مکان‌های مناسبی برای جوانه‌زنی ایجاد نماید. با افزایش زمان، جوانه‌های تبلور مجدد شکل گرفته و رشد می‌نمایند. این فرایند با صرف انرژی ذخیره‌شده در ماده و کاهش ریزسختی آن همراه است.

جدول ۱. مقدار توان اورمی برای کرنش‌های متفاوت

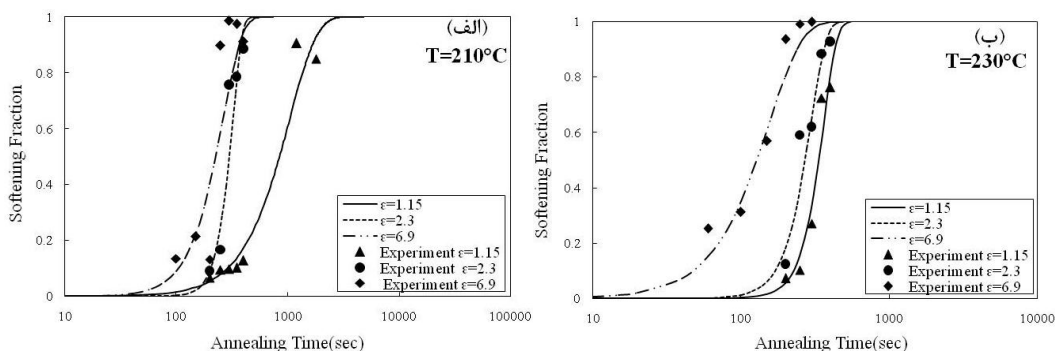
۶/۹	۲/۳	۱/۱۵	ε
۲/۹۴	۳/۶۷	۳/۱۵	n

جدول ۲. مقدار انرژی فعال‌سازی برای کرنش‌های متفاوت

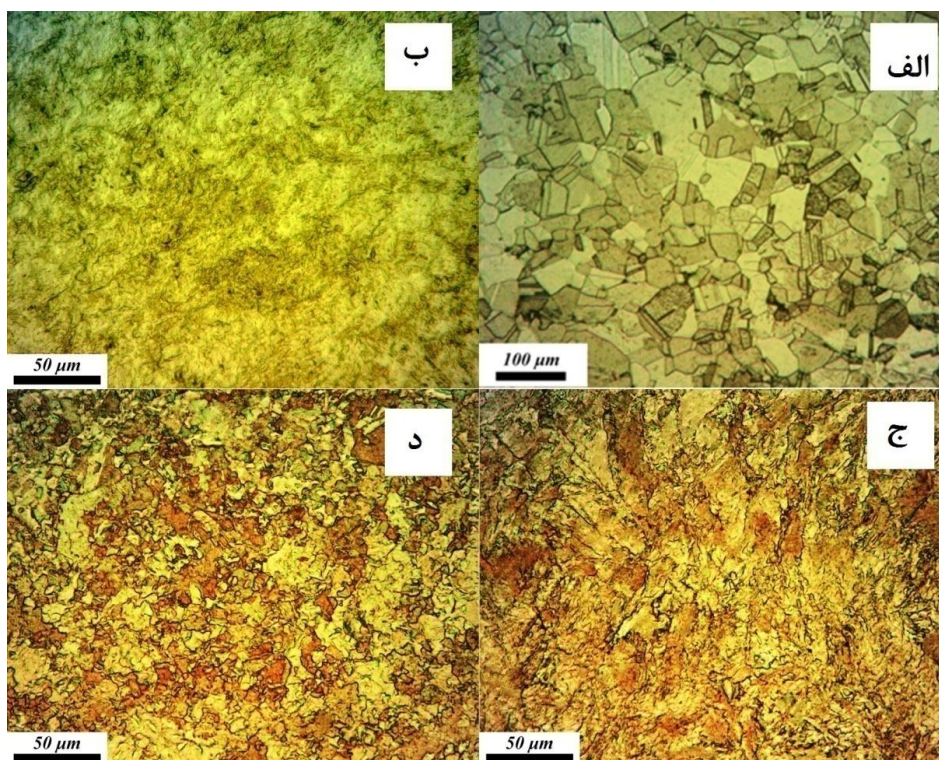
۶/۹	۲/۳	۱/۱۵	ε
۴۹	۳۰	۶۰	Q (kJ/mol)



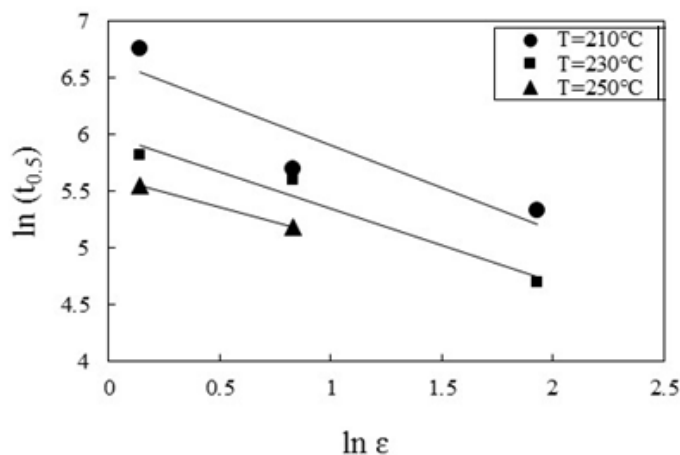
شکل ۴. نمودار شار حرارتی بر حسب دما برای نمونه‌ی پاس اول



شکل ۵. نمودار کسر نرم شدن در کرنش‌های مختلف در دمای (الف) ۲۱۰°C (ب) ۲۳۰°C



شکل ۶. (الف) ریزساختار نمونه همگن‌سازی شده اولیه (ب) ریزساختار نمونه پس از تغییر شکل پلاستیک ششم (ج) و (د) به ترتیب ریزساختار نمونه پاس ششم پس از عملیات حرارتی در دمای ۲۱۰°C به مدت ۲۰۰ ثانیه و ۴۰۰ ثانیه



شکل ۷. منحنی لگاریتم $t_{0.5}$ بر حسب لگاریتم کرنش

نتیجه گیری

نتایج حاصل از بررسی سینتیک تبلور مجدد استاتیکی پس از تغییر شکل پلاستیک شدید مس نشان می‌دهند که با افزایش دمای آنیل و تعداد پاس، تبلور مجدد در زمان‌های کوتاه‌تری آغاز شده، سریع‌تر پیش رفته و در زمان کوتاه‌تری نیز پایان می‌یابد، به طوریکه زمان ۵۰٪ تبلور مجدد در دمای ۲۱۰°C که برای پاس اول ۸۶۴ ثانیه بوده در پاس دوم به ۲۹۹ ثانیه و در پاس ششم به ۲۰۷ ثانیه تقلیل می‌یابد. هم‌چنین با افزایش کرنش ناشی از تغییر شکل از ۱/۱۵ به ۶/۹ (که منجر به افزایش انرژی ذخیره‌شده در ماده می‌شود)، پایداری حرارتی ماده کاهش می‌یابد.

Reference

1. I.V. Alexandrov, and R.Z. Valiev, "Nanostructures from Severe Plastic Deformation and Mechanisms of Large-Strain Work Hardening", Nanostructured Materials, Vol. 12, pp. 709-712, 1999.
2. R.Z. Valiev, R.K. Islamgaliev, and I.V. Alexandrov, "Bulk Nanostructured Materials from Severe Plastic Deformation", Progress in Materials Science, Vol. 45, pp.103-189, 2000.
3. H. Jiang, Y. T. Zhu, D.P. Butt, I.V. Alexandrov, and T.C. Lowe "Microstructural Evolution, Microhardness and Thermal Stability of

که p مقداری کوچک‌تر از صفر را اختیار می‌کند. با رسم منحنی لگاریتم $t_{0.5}$ بر حسب لگاریتم کرنش، خط مستقیمی حاصل می‌شود که شیب آن مقدار p را نتیجه می‌دهد (شکل ۷). مقدار p بطور میانگین برای سه دمای مورد نظر ۰/۶۴۲- بدست آمد. بنابراین رابطه کلی زیر برای این پژوهش استنتاج شد.

$$t_{0.5} = A\epsilon^{-0.642} \quad (7)$$

مقدار انرژی فعال‌سازی نفوذ مرزدانه در مس فوق ریزدانه $Q=78 \frac{kJ}{mol}$ است، که این مقدار کمتر از انرژی فعال‌سازی نفوذ مرزدانه در مس درشت دانه ($Q=107 \frac{kJ}{mol}$) می‌باشد [۱۲]. با توجه به این نتایج، نفوذ در مرزدانه‌های مواد نانو ساختار سریع‌تر رخ می‌دهد. نفوذ سریع‌تر منجر به بهبود فرایندهای بازیابی در مرزدانه‌ها و بهبود لغزش مرزدانه‌ها^۱ می‌شود که همین فرایند عامل کرنش‌سختی اندک در حین تغییر شکل فلزات فوق‌ریزدانه است. همچنین مقدار بالای تنش تسلیم در مواد نانو ساختار نیز به دشواری تولید نابجایی‌ها از مرزدانه‌های غیرتعادلی مربوط می‌شود. مقدار انرژی فعال‌سازی در پاس ششم علی‌رغم کاهش نسبت به پاس اول، در مقایسه با پاس دوم افزایش یافته است. این امر نشان‌دهنده این است که پدیده بازیابی، میزان بیش‌تری از انرژی ذخیره‌شده در ماده را آزاد نموده و شروع تبلور مجدد در نمونه پاس ششم نیازمند انرژی فعال‌سازی بیش‌تری است.

¹- Grain boundary sliding

- Materials Science and Engineering A, Vol. 527, pp.355–360, 2009.
9. T. Ungar, I. Dragomir, A. Revesz, and A. Borbely “The Contrast Factors of Dislocations in Cubic Crystals: the Dislocation Model of Strain Anisotropy in Practice”, *Journal of Applied Crystallography*, Vol. 32, pp. 992-1002, 1999.
 10. T. Ungar, J. Gubicza, G. Ribarik and A. Borbely “Crystallite size distribution and dislocation structure determined by diffraction profile analysis: principles and practical application to cubic and hexagonal crystals” *Journal of Applied Crystallography*, Vol.34, pp 298-310,2002
 11. Ma Bou, Peng Yan, and Jia Bin, “Static Recrystallization Kinetics Model after Hot Deformation of Low-Alloy Steel Q345B”, *Journal of Iron and Steel Research, International*, Vol.17(8), pp.61-66, 2010.
 12. T. L. Brown, “A Study of the Interactive Effects of Strain, Strain Rate and Temperature in Severe Plastic Deformation of Copper”, *Acta Materialia*, Vol. 57, pp.5491–5500, 2009.
 - HPT-processed Cu”, *Materials Science and Engineering A*, Vol. 290, pp.128–138, 2000.
 4. L. Sieradzki, and L. Madej, “A Perceptive Comparison of the Cellular Automata and Monte Carlo Techniques in Application to Static Recrystallization Modeling in Polycrystalline Materials”, *Computational Materials Science*, Vol. 67, pp.156–173, 2013.
 5. A. Takayama, X. Yang, H. Miura, and T. Sakai, “Continuous Static Recrystallization in Ultrafine-grained Copper Processed by Multi-Directional Forging”, *Materials Science and Engineering A*, Vol. 478, pp.221–228, 2008.
 6. W.Q. Cao, C.F. Gu, E.V. Pereloma, and C.H.J. Davies, “Stored Energy, Vacancies and Thermal Stability of Ultrafine-grained Copper”, *Materials Science and Engineering A*, Vol. 492, pp.74–79, 2008.
 7. F. J. Humphreys, and M. Hatherly, “Recrystallization and Related Annealing Phenomena”, 2nd ed., Pergamon, Netherlands, 2004.
 8. N. Pardis, and R. Ebrahimi, “Deformation Behavior in Simple Shear Extrusion (SSE) as a New Severe Plastic Deformation Technique”,