文章编号：1000-5773(2004)01-0021-06

冲击下材料质量混合的实验研究及离散元模拟*

龚 平，唐志平，沈兆武

（中国科学技术大学力学和机械工程系，中国科学院材料力学行为和设计重点实验室，安徽合肥 230026）

摘要：利用化爆驱动飞片对铅-锡和铜-铝的颗粒混合物进行冲击加载。回收样品的金相分析发现，在锡颗粒边界有明显的铅锡质量混合带，带宽约 60～80 μm。利用扫描电镜对混合带进行点扫描，得到带内铅和锡质量分布。计算出的铅锡动态扩散系数为 $D=0.9\ \mathrm{cm^2/s}$，远高于准静态。利用离散元方法进行了数值模拟，定性的显示了高速冲击下材料细观混合的过程和机理。

关键词：质量混合；冲击加载；铅-锡；动态扩散系数；离散元

中图分类号：O347.3 **文献标识码**：A

1 引 言

固体材料相互之间的混合问题是人们长期所关注的。以前这类研究多集中在准静态方面，从原子扩散的角度着手，近年来扩展到了动态方面。Zemsky 等[1]研究了数百千巴动压力下 C^{14} 在铁中的质量扩散，他们发现 C^{14} 从接触界面穿透到样品内部的扩散系数大概是 $10^{-2}\ \mathrm{cm^2/s}$。杨超等人[2]在实验中得到钨在铁中的动态扩散系数约为 $10^{-1}\ \mathrm{cm^2/s}$。这些值比材料已知的原子扩散系数(约为 $10^{-8}\ \mathrm{cm^2/s}$)高好几个量级。目前，关于这个现象的解释主要集中在以下几个方面[3～5]。

(1) 微观层次(原子扩散角度)

① 认为冲击产生的大量位错和空位引起活性能下降，对于提高扩散速率有决定性作用。

② 沿位错管道的扩散。Hart[6]给出位错管道增强的扩散系数为

$$D_\varepsilon/D_T^0=1+K_d f(D_p/D_T^0) \tag{1}$$

式中：D_ε 是增强的扩散系数，D_T^0 是无应变时的扩散系数，D_p 是管道扩散系数，f 是处于位错中心的原子分数，K_d 是位错中溶质原子的百分比。上式若写成与应变率的关系 $D_\varepsilon/D_T^0=1+K|\dot{\varepsilon}|^{1/2}$，$\dot{\varepsilon}$ 是应变率，可知增强的扩散与应变率的平方根成正比。

③ 沿冲击变形导致的原子尺度开裂面的扩散。

(2) 细观层次

Ruoff[7]提出的力学扩散(Mechanical Diffusion)。该假说认为，塑性变形使材料在界面处形成微米尺度的台阶状滑移带，在应力作用下进入另一个物体内部，完成扩散。力学扩散有两个主要特征：扩散率线性正比于应变率；穿透深度正比于应变的平方根。

(3) 宏观层次

界面不稳定性[8,9]，譬如 Richmyer-Myshkov 不稳定性认为，在冲击条件下，材料的塑性流动引起界

* **收稿日期**：2003-06-18；**修回日期**：2003-08-25

基金项目：国家自然科学基金(19772050；10072058)

作者简介：龚 平(1977—)，男，博士研究生，主要研究方向为激光推进、材料动载下的冲击响应.
E-mail：gongp@ustc.edu.cn

面处出现类似流体的涡,进而导致混合。

由于瞬态细观测量技术的限制,还不能给出冲击质量混合的实时图像,使得驱动这种扩散的机制并不明朗。

2 试验方法及结果

为了达到很高的冲击速度,我们利用一个炸药平面波发生器驱动钢飞片(5 mm 厚)来撞击活塞(钢,3 mm 高),由活塞压缩容器内的混合颗粒,飞片和活塞中间设置两组速度探针测量飞片的速度。图 1 为实验装置示意图。

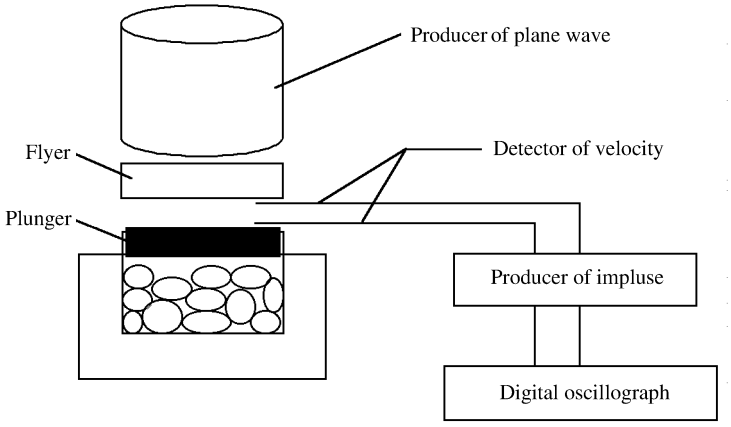


图 1 实验装置示意图

Fig. 1 Experimental arrangement

采用铜-铝混合粉末和锡-铅混合颗粒做了 7 次冲击压缩实验。铜粉末平均粒径约 0.05 mm,密度 8.9 g/cm^3;铝粉末粒径 0.08 mm,密度 2.7 g/cm^3;铅和锡的颗粒直径约 1～3 mm,密度分别为铅 11.346 g/cm^3、锡 7.287 g/cm^3。其它实验参数及测量数据见表 1。实验后对回收样品进行金相分析,得到的金相照片示于图 2 和图 3。

表 1 实验参数

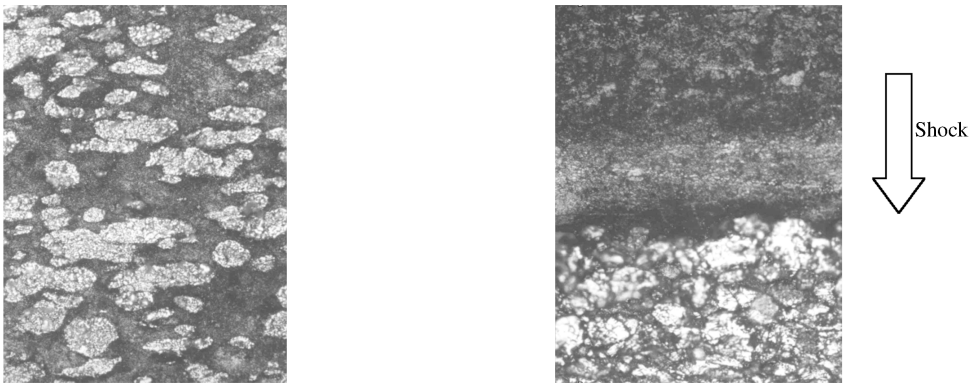
Table 1 Parameter of experiment

No.	Material	Mixture ratio of volume	Initial porosity φ (%)	Velocity/(m/s)
1	Cu、Al	1∶1	15	—
2	Cu、Al	1∶2	50	—
3	Cu、Al	1∶1	50	1801
4(1)	Cu、Al	1∶1	0	1450
5	Pb、Pb	1∶1	50	1343
6	Pb、Sn	1∶1.1(2)	43.8	—
7	Pb、Sn	1∶3.54(2)	45.3	2000

Note:(1) Cu powder top, Al powder bottom, press to $\varphi=0$;(2) Mixture ratio of mass.

1～5 号实验主要研究不同配比和初始孔隙率条件下的冲击混合问题。图 2(a)是实验 1 的金相照片,铜铝粉末体积比为 1∶1。两种粉末首先在容器内初压至约 15%的孔隙度。可以看到冲击下颗粒的变形,呈扁椭球状铝颗粒(银白色)弥散于暗红色的铜基体中,颗粒边缘没有明显的相互混合的现象。图 2(b)则是两种粉末材料首先分层放置并压缩至密实,再进行冲击实验,从图中可看到明显的分界面,界面处部分颗粒有变形翻卷,这是可能导致混合的一种方式。总的说来,未曾在金相显微尺度观察到明显的质量混合图像,因此下文主要讨论铅-锡颗粒的实验结果。

实验 6 和实验 7 采用铅和锡的颗粒材料(直径 1～3 mm),自然堆积在容器内,飞片以 2 km/s 的速



(a) Experiment 1 (φ=15%)　　(b) Experiment 4 (φ=0)

图 2　铜-铝混合粉末实验后的金相照片

Fig. 2　Metallurgic observation of Cu-Al powder

度撞击活塞,压缩铅-锡颗粒,在回收样品中发现,铅-锡颗粒被压缩成一整块。我们将实验 7 的回收样品沿冲击方向锯开,其中的一半(记为样品 A)利用 12.5 ml 盐酸,5 ml 硝酸和 100 ml 水配比的腐蚀液腐蚀[10],得到的金相照片如图 3 所示。图中清晰可见,在锡颗粒(银白色)的中间有小块铅(黑色)的存在,同时沿锡颗粒的边界有几条明显的灰色带状结构,带的宽度约为 60～80 μm。利用扫描电镜对图 3 黑框内的带沿横向进行点扫描,点的半径为 1 μm。为排除化学腐蚀所带来的影响,作为比较,我们对另一半样品(记为样品 B)磨平抛光后直接进行点扫描。横跨这条质量混合带,依次观测了 5 个点,图 4 是相应元素的质量分布图。

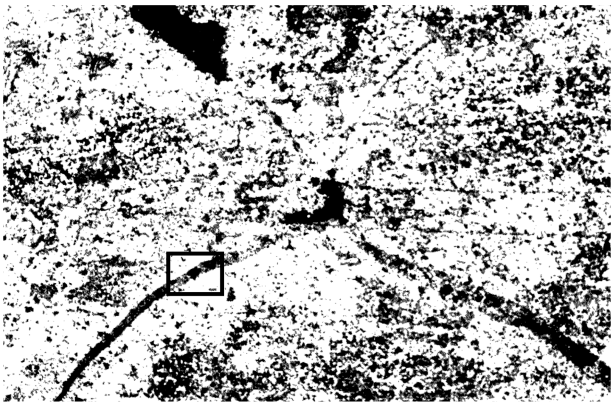
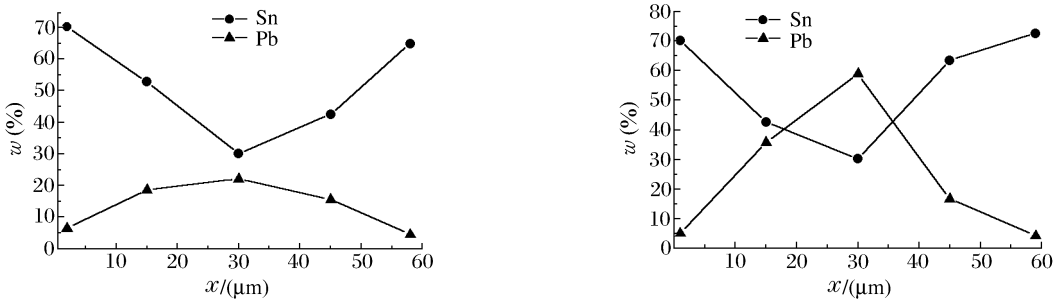


图 3　实验 7 中样品 A 的金相照片

Fig. 3　Metallurgic observation of specimen A in experiment 7



(a) Specimen A　　(b) Specimen B

图 4　横跨混合带的 Pb 和 Sn 元素质量分数分布

Fig. 4　Mass faction distribution of lead and tin across the band by SEM

从图 4 可以看出,铅的质量分布有比较明显的规律:中间高而靠近锡颗粒的两边则较低;而锡的质量分布正好与之相反。这两个曲线可以使我们认为在这个带内,铅和锡确实发生了质量的混合,而不是因为腐蚀液残留在样品表面才导致铅和锡元素同时存在于带内。

从图 4 中得到整个带的宽度约为 60 μm,我们取这个值的一半作为扩散的深度。根据一个用来估算扩散深度的公式[1]

$$l=(2Dt)^{1/2} \tag{2}$$

式中:l 是扩散深度,t 是扩散时间,可以估算出高速冲击条件下的扩散系数。扩散时间取实验中冲击脉冲加载的时间。由于铅锡颗粒混合物的波阻抗小于钢,飞片的实际作用时间会略长些,近似取为波在飞片中来回反射 2～3 次所需的时间,约为 $t=5$ μs。取 $l=30$ μm,这样求出的扩散系数为 0.9 cm^2/s。这一扩散系数比 Sn 在 Pb 中的静态扩散系数[11] 1.2×10^{-10} cm^2/s(384 K)高了近 10 个数量级。这表明在动态情况下,材料的扩散有显著的增强。

3 离散元方法的数值模拟

由于本实验涉及大变形、高速冲击,且实验材料为颗粒材料,一般的有限元程序难以模拟冲击的整个过程,故我们采用了离散元方法来模拟。

离散元方法是近年发展起来的新概念数值模拟方法之一。该方法把模拟对象离散为"元",元和元之间的相互作用类似于分子之间的作用,可以用作用势表示,如 Lennard-Jones 作用势

$$F(d)=\frac{\alpha mn}{d_0(n-m)}\left[\left(\frac{d}{d_0}\right)^{-(n+1)}-\left(\frac{d}{d_0}\right)^{-(m+1)}\right] \tag{3}$$

式中:d_0、d 分别为两元之间的平衡距离和当前距离,F 为作用力,$d>d_0$ 为引力,$d<d_0$ 为斥力,α、m、n 为材料常数。由于元包含了大量分子,材料常数可由材料的宏观力学性能来拟合。元和周围邻居元的相互作用的合力决定该元的运动(牛顿定律)。系统中元的整体运动和相对位置变化构成系统构形的演变规律。除力学变化外,还能描述系统的物理、化学变化。有一个重要参数是 d_{max},当 $d>d_{max}$ 时,则两元之间的"键"联接就被破坏,从力学上看,相当于产生了一条微裂纹,调节 d_{max} 可改变材料的韧脆特性。详细资料可参看文献[12]。针对实验 7,我们利用离散元进行了模拟计算,模拟所用的主要参数见表 2。

表 2 离散元计算主要参数表

Table 2 Main parameters of DEM simulation

Material	m	n	d_{max}/d_0	d_{min}/d_0	α/(MJ/kg)
Sn	1.05	1.55	1.002	0.9	4.661
Pd	1.00	2.50	1.0	0.9	1.598

模拟结果见图 5,计算尺寸 0.07×0.04 cm^2,Pb 和 Sn 各取 2 个半球,元的半径为 3 μm,共 6117 个元。A 边是速度边界条件,速度取 1 km/s,B 和 D 边是可沿垂直方向滑移的固定边界条件,C 是固定边界条件。图 5 可以看到在高速碰撞下,铅颗粒相互斜碰撞产生射流[13],进入下方孔洞区以及两个锡颗粒之间,同时铅颗粒对锡颗粒产生碰撞。在锡颗粒和铅射流之间的强烈挤压和剪切作用下,铅锡材料在细观尺度(微米)发生了质量混合现象,并且沿锡颗粒边界形成一条质量混合带。图 5(c)中给出的混合带的宽度约为 60～70 μm,和实验现象吻合很好。

4 动态扩散机制的讨论

实验中得到的 Pb/Sn 扩散系数比静态扩散系数高了近 10 个量级,比杨超等获得的 W-Fe 冲击扩散系数约大 10 倍。我们分析主要原因可能是由于高速冲击下颗粒材料中的孔洞崩塌造成的。颗粒材料是典型的非均质材料,冲击压缩时颗粒间产生复杂的各个方向的强烈碰撞,形成的塑性流动、射流、层裂碎片等注入孔洞,在孔洞塌陷区产生质量混合和高温热点,而且,混合尺度和温升与孔洞大小相关,这

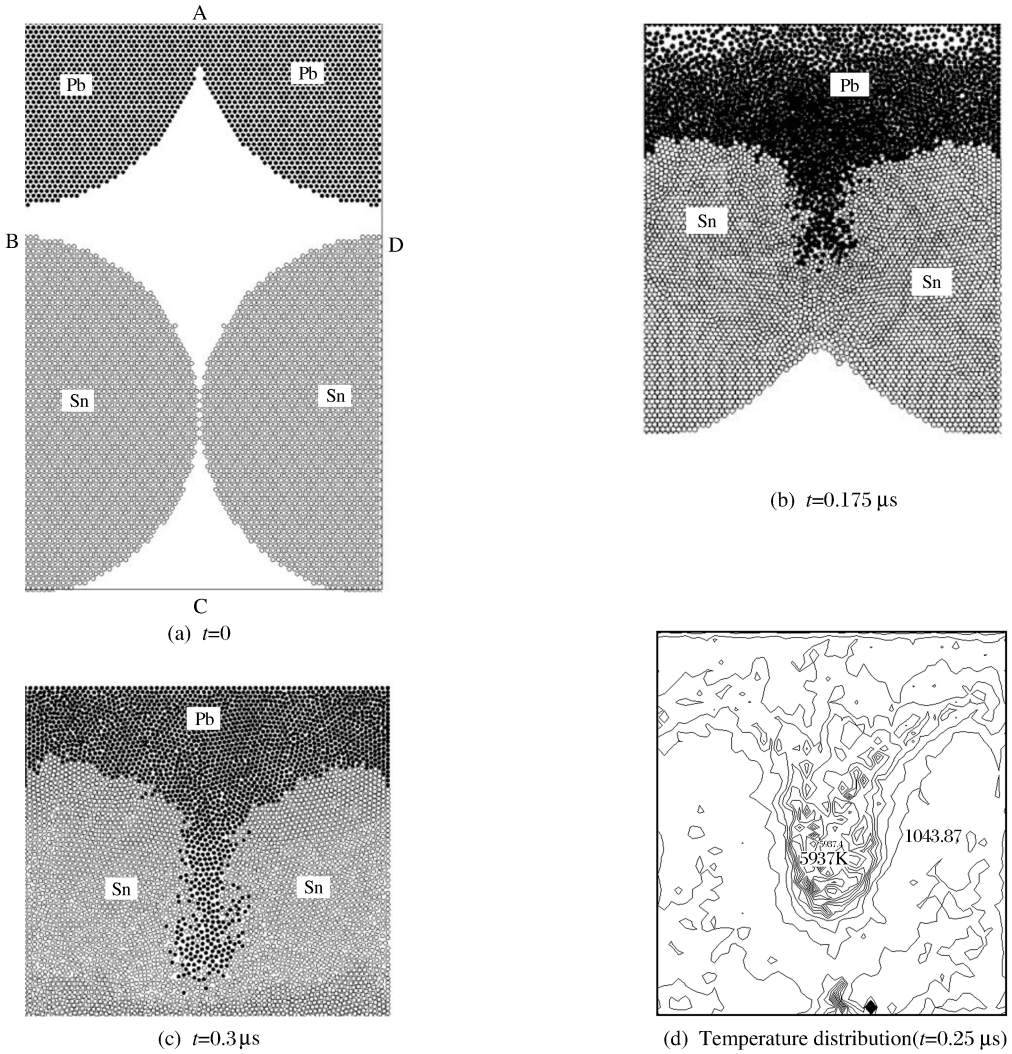


图 5　离散元模拟结果

Fig. 5　DEM simulation results

一点在文献[12]中曾作过详细分析。图 5(d)是计算得到的瞬态温度分布图,在孔洞崩塌区形成了热点,最高温度超过了 5000 K,计算出冲击压力达到 26 GPa,在这样的条件下,扩散系数自然比静态高得多。杨超等人的实验采用平板正碰撞,无孔洞,质量的扩散只能通过正碰撞面相互渗透,碰撞温升较低,扩散系数相对较低。

因此,可以认为,导致实验中铅-锡材料发生质量混合的主要机制是斜碰撞引起的高速剪切应变。由于铅的剪切模量很小(5.59 GPa),在压缩初期将会像流体般射入锡颗粒之间,在高压作用下形成薄带状,带状区域两侧材料具有很高的相对速度(即高速剪切变形),产生质量混合(力学混合)。进一步分析可以设想在高速冲击下,铅、锡颗粒的质量混合有两个过程:"力学混合"是第一步,它产生细观尺度的团族混合物,时间尺度相当于孔洞崩塌时间,约在亚微秒量级;然后在高温作用下(在冲击过程中还有高压),以原子扩散的形式进行原子尺度的混合,这是第二步,时间尺度和热点的冷却速率以及材料缺陷浓度有关,将比第一步长得多。我们感兴趣的是,力学混合是否真的存在? 团族尺寸有多大? 在热点快速冷却下,第二步能否完成? 遗憾的是无法对试样进行实时测量。对回收试样的 SEM 分析中,在探针 1 μm 大小范围无法区分 Pb 和 Sn 微团,即最终混合尺度达到亚微米以下。这说明力学混合的尺度不会比微米大很多,可能是微米或亚微米量级的。从离散元模拟看,热点区已有部分材料熔化,这将有助于

力学混合尺度的细化。但还不能很好地回答上述问题。需要在实验和微观分析方面作进一步的研究和改进。

References:

[1] Zemsky S V, Ryabchikov Y A, Epshteyn G N, et al. Mass Transfer of Carbon under the Influence of a Shock Wave [J]. Phys Met Metall, 1979, 46: 171.

[2] Yang C, Hu J B. Diffusion of Tungsten Atom in Iron and Nickel under the Shock Loading [J]. Ordnance Material Science and Engineering, 1997, 3: 20. (in Chinese)
杨 超, 胡金彪. 冲击载荷下钨在铁和镍中的扩散 [J]. 兵器材料科学与工程, 1997, 3: 20.

[3] Balluffi R W, Ruoff A L. On Strain-Enhanced Diffusion in Metals. Ⅰ. Point Defect Models [J]. J Appl Phys, 1963, 34: 1634.

[4] Ruoff A L, Balluffi R W. On Strain-Enhanced Diffusion in Metals. Ⅱ. Dislocation and Gain-Boundary Short-Circuiting Models [J]. J Appl Phys, 1963, 34: 1848.

[5] Ruoff A L, Balluffi R W. On Strain-Enhanced Diffusion in Metals. Ⅲ. Interpretation of Recent Experiments [J]. J Appl Phys, 1963, 34: 2862.

[6] Hart E W. On the Role of Dislocations in Bulk Diffusion [J]. Acta Met, 1957, 5: 597.

[7] Ruoff A L. Enhance Diffusion during Plastic Deformation by Mechanical Diffusion [J]. J Appl Phys, 1967, 38: 3999.

[8] Yano K, Horie Y. A Numerical Study of Shock-Induced Particle Velocity Dispersion in Solid Mixtures [J]. J Appl Phys, 1998, 84: 1292.

[9] Horie Y, Sawaoka A B. Shock Compression Chemistry of Materials [M]. Tokyo: KTK Scientific Publishers, 1993. 160

[10] Wang S P. Foundation of Metallographical Analysis [M]. Beijing: China Mechanical Press, 1987. 20. (in Chinese)
汪守朴. 金相分析基础 [M]. 北京: 机械工业出版社, 1987. 20.

[11] Decker D L, Weiss J D, Vanfleet H B. Diffusion of Sn in Pb to 30 kbar [J]. Phys Rev B, 1977, 16: 2392.

[12] Tang Z P, Horie Y, Psakhie S G. Discrete Meso-Element Modeling of Shock Processes in Powders [A]. Davison L. High-Pressure Shock Compression of Solids Ⅳ [C]. New York: Springer, 1997. 143－176.

[13] Williamson R L. Parametric Studies of Dynamic Power Consolidation Using a Particle-Level Numerical Model [J]. J Appl Phys, 1990, 68: 1287.

Experimental Investigation and DEM Simulation of Mass Mixing under Shock Loading

GONG Ping, TANG Zhi-Ping, SHEN Zhao-Wu

(*Department of Modern Mechanics, Key Laboratory of Mechanical Behavior and Design of Materials(LMBD), University of Science and Technology of China, Anhui* 230026, *China*)

Abstract: Tin and lead beads are chosen to conduct the high velocity impact experiments with an explosive plane wave generator. The impact velocity is about 2 km/s. A metallurgic picture of the recovered specimen shows that there are four bands along the interfaces between tin and lead. The width across the bands is about 60～80 μm. The SEM examination discloses that these bands are the mass mixing regions of tin and lead. The dynamic diffusion coefficient of the experiments is 0.9 cm^2/s, which is much higher than that at quasi-static case. A discrete element simulation (DEM) demonstrates the process and mechanisms of the observed mass mixing for Pb-Sn beads under shock loading at meso-scale qualitatively.

Key words: mass mixing; shock loading; Pb-Sn; dynamic diffusion coefficient; DEM