文章编号：1000-5773(2011)06-0501-07

爆炸载荷下纳米晶铜晶粒度分布及影响因素研究*

王金相[1]，周　楠[1]，王小绪[1]，杭逸夫[2]

(1.南京理工大学，江苏南京　210094；
2.南京宝泰特种材料有限公司，江苏南京　211100)

摘要：采用爆炸动态加载使粗晶铜发生高应变率塑性大变形的方法制备了纳米晶铜。利用X射线衍射法对其晶粒度进行了检测，借助于LS-DYNA3D非线性有限元程序对试样变形过程进行了数值模拟，在此基础上对应变和应变率进行了统计，分析了宏、细观应变对晶粒细化程度的影响。结果表明：采用爆炸加载法可制备出纳米晶铜，平均晶粒度范围可有效控制在100 nm以内；爆炸加载过程中应变率高达10^4 s^{-1}，应变的提高有利于晶粒细化；在爆炸加载方向晶粒度成不均匀分布。

关键词：爆炸加载；纳米晶铜；晶粒度；应变；应变率
中图分类号：O389；TG392　　**文献标识码**：A

1　引　言

纳米晶金属块体材料是指晶粒的特征尺寸在纳米级的金属单相或多相三维固体材料。由于其具有晶粒尺寸小、晶界比例大的特征，因此具备高的屈服和断裂强度、室温超塑性、优异的疲劳特性、高比热和高膨胀系数以及高电阻率等优异性能[1-6]，使其具有广阔的应用前景。如在汽车和飞机制造业中，高强度的纳米晶金属丝扣零件可有效解决高度应力集中问题；在医学领域，具有高强度和良好疲劳性能的纳米晶钛可作为关节假体、口腔和牙齿植入物、固定骨伤部位的工具等；在军事领域，超塑性纳米晶重金属材料则是理想的破甲药型罩材料[7]。

目前制备纳米晶金属块体材料的方法可分为两大类[8]：一类是先制备纳米级的金属小颗粒，再通过粉末压制、烧结的途径来获得纳米晶金属块体材料，如粉末冶金方法等；另外一类方法是对宏观的大块金属材料进行特殊的工艺处理来得到纳米晶金属块体材料，如严重塑性变形法(包括等通道挤压法、压力扭转法和高速喷丸法等)、非晶晶化法以及通过特殊工艺直接制备纳米晶块体材料的电沉积法等。Gleiter[9]首次采用惰性气体凝聚以及真空原位技术制备了纳米金属材料，其平均晶粒尺寸为10 nm；Valiev等[10]首次采用严重塑性变形法获得了亚微晶和纳米晶块体金属材料。采用粉末冶金[11]、电沉积[12]、严重塑性变形[13-14]等方法，均可将晶粒尺寸细化到10～100 nm，使得材料的屈服强度提高数倍。但用粉末冶金方法得到的材料其密实性较差，而且制备过程中不可避免地存在杂质和孔隙等缺陷，影响纳米材料的性能；电沉积法仅用于制备薄膜层状块体；严重塑性变形方法可制备体积大、致密度高、晶粒界面洁净的纳米块体材料，但制备成本较高，晶粒范围较大[10]

本研究提出了利用爆炸加载使粗晶铜发生高应变率塑性大变形制备纳米晶铜块体材料的方法，该方法能够有效降低制备成本，在避免外来污染和残留孔隙危害的同时获得三维大尺寸纳米晶块体金属

* **收稿日期**：2010-05-24；**修回日期**：2010-10-26
基金项目：国家自然科学基金(10902054)；瞬态物理重点实验室基金(9140C3008030805)；新教师基金(200802881013)；南京理工大学卓越计划“紫金之星”项目
作者简介：王金相(1978—)，男，博士，副研究员，主要从事爆炸与冲击动力学和终点弹道学研究. E-mail：wjxdlut@sina.com

材料。与传统的纳米晶金属材料制备方法相比，爆炸加载方法具有显著的优点：(1) 以块体粗晶金属为原料，从根本上避免了外来污染和残留孔隙的危害；(2) 同严重塑性变形(SPD)法、动态塑性变形方法(DPD)等相比，使用炸药爆炸驱动飞板撞击粗晶铜的爆炸加载法能获得更高的应变率，可直接得到具有更细晶粒尺度范围的三维大尺寸块体纳米晶金属材料；(3) 毋须专用设备，具备爆炸加工的经济、设备简单的优点，为纳米晶金属块体材料的大规模生产创造了条件，便于推广和应用。在爆炸冲击波加载的过程中，由于材料的绝热温升及自身的塑性变形机制使材料内诱发高密度位错，通过动态回复形成亚晶粒，在塑性变形较大的区域通过动态再结晶形成均匀的超细晶粒，一次性获得纳米晶金属块体材料，开发应用前景广阔。

在冲击载荷作用下，纳米晶粒的形成是晶粒变形、晶格畸变、位错演化、非等熵压缩、微尺度传热诸因素相互作用的结果。上述因素又受应变、应变率、原始组织状态、材料种类等因素的影响，在采用爆炸加载方法成功制备出纳米晶铜的基础上，重点讨论了应变、应变率等因素对其试样晶粒度及其分布规律的影响。

2 爆炸加载制备纳米晶铜实验

图 1 为制备纳米晶铜的爆炸加载装置示意图。爆炸加载属于一种动态塑性变形方法，炸药爆炸驱动飞板加速运动，飞板对粗晶铜柱进行冲击压缩。高纯度多晶铜是一种高层错能的面心立方结构金属，这种材料即使在室温下也具有非常好的延展性，在很高的应变率下，也不会发生断裂、破坏或产生绝热剪带而造成能量流失、位错密度下降[13]。因此本研究选用纯铜作为试样材料，其晶粒度为 50～60 μm。

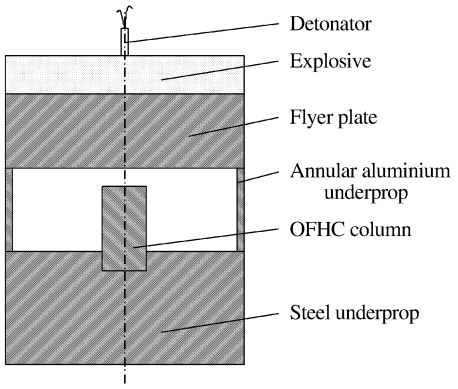


图 1 爆炸加载制备纳米晶铜实验装置

Fig. 1 Experimental set-up for nanocrystalline copper fabrication under explosive loading

对厚度为 20 mm 和 60 mm 两种圆柱形纯铜件分别采用不同的装药厚度沿轴向进行了爆炸加载，实验参数如表 1 所示。根据板型装药的格尼公式，

表 1 爆炸加载制备纳米晶铜实验参数

Table 1 Experimental parameters of nanocrystalline copper fabrication under explosive loading

No.	Explosive thickness /(mm)	Initial thickness of the sample /(mm)	Thickness of the deformed sample /(mm)	Axial macro strain of the sample
1-1	20	20	8.5	0.575
1-2	25	20	7.5	0.625
1-3	30	20	6.5	0.675
1-4	35	20	4.5	0.775
2-1	25	60	49.0	0.183
2-2	35	60	44.0	0.267
2-3	50	60	41.0	0.317
2-4	60	60	36.0	0.400
2-5	60	60	35.0	0.417
2-6	60	60	33.0	0.450
2-7	60	60	36.0	0.400
2-8	60	60	35.7	0.405
2-9	60	60	37.0	0.383
2-10	60	60	34.8	0.420
2-11	60	60	39.0	0.350
2-12	60	60	39.0	0.350

可以计算得到飞板的速度

$$v = \sqrt{2E}\left[\frac{3}{1+5(m_p/m_e)+4(m_p/m_e)^2}\right]^{1/2} \tag{1}$$

式中:m_p/m_e 为飞板质量与炸药质量的比值,已知炸药和飞板的厚度和密度,有

$$\frac{m_p}{m_e} = \frac{\rho_p}{\rho_e}\frac{t_p}{t_e} \tag{2}$$

3 试样晶粒度分析

采用日本理学公司的 D/Max2500VL/PC 型阳极转靶 X 射线衍射仪分别对试样进行了 X 射线衍射分析,试样 1 的 X 射线衍射图谱如图 2 所示。用 X 射线衍射线宽法测量晶粒的平均尺寸,晶粒大小与衍射峰宽之间满足谢乐(Scherrer)公式

$$D_{hkl} = k\lambda/(\beta_{hkl}\cos\theta) \tag{3}$$

式中:D_{hkl} 为垂直于晶面 hkl 方向的平均厚度;k 为衍射峰的半高宽与晶体形状有关的常数,常取 0.89;λ 为 X 射线的波长;β_{hkl} 为该晶面衍射峰的半高宽;θ 为满足布拉格条件的衍射角。β_{hkl} 必须进行双线校正和仪器因子校正,以保证测量的精确性,一般由下式给出

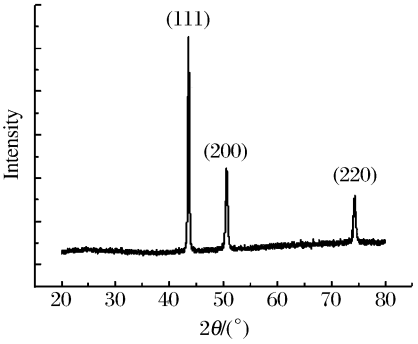


图 2 试样 1 的 X 射线衍射图谱

Fig. 2 X-Ray diffraction pattern of Sample 1

$$\beta_{hkl} = B - b \tag{4}$$

式中:B 为实测样品衍射峰半高宽,b 为仪器致宽度。利用谢乐公式,由测得的衍射峰半高宽的宽度,可以得到试样各个晶面的平均尺寸,即晶粒大小[13]。

4 爆炸加载制备纳米晶铜数值模拟

应变、应变率是影响晶粒细化程度的重要因素,鉴于爆炸加载过程的持续时间极短,目前的测试手段很难获得有效而准确的数据,且试样在变形过程中存在各向应变不均匀、应变率时程变化等因素,故本研究借助于 LS-DYNA3D 有限元程序对该过程进行数值模拟,以此为基础分析应变、应变率因素对晶粒细化程度的影响。

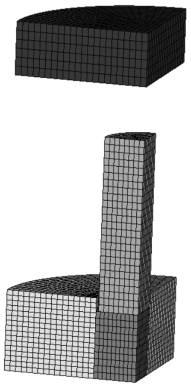


图 3 有限元分析模型

Fig. 3 Finite element analysis model

4.1 有限元计算模型

按实际实验尺寸进行建模,考虑到模型的轴对称性,为节省计算时间,建立 1/4 模型进行计算,如图 3所示。采用 Solid164 三维实体单元对模型进行网格划分,采用沙漏控制以更好地反应大变形和材料失效等非线性问题,在计算中各自由面之间的接触定义为自动接触。根据(1)式和(2)式可计算得到不同装药厚度时飞板的撞击速度,作为数值计算的初始条件。

4.2 材料模型和状态方程

为较好地描述金属材料的加工硬化效应、应变率效应和温度软化效应,计算中采用 Johnson-Cook 热粘塑性本构关系[15]

$$\sigma_e = \left[A + B(\varepsilon_e^p)^n\right](1 + C\cdot\ln\dot{\varepsilon}^*)\left[1-(T^*)^m\right] \tag{5}$$

式中:ε_e^p 为等效塑性应变;σ_e 为 von Mises 流动应力;$\dot{\varepsilon}^* = \dot{\varepsilon}_e^p/\dot{\varepsilon}_0$ 为相对等效塑性应变率,取 $\dot{\varepsilon}_0 = 1$;$T^* = (T-T_r)/(T_m-T_r)$,其中 T_m 和 T_r 分别表示材料的熔点和参考温度。(1)式中,第 1 个乘积因子表示当 $\dot{\varepsilon}^* = 1.0$ 且 $T^* = 0$ 时流动应力与等效塑性应变之间的关系,B、n 表征应变硬化特性,第 2 和第 3 个乘积因子分别表示应变率强化效应和温度软化效应,C 表征应变

率敏感特性，m 表征温度软化特性。

材料状态方程选用 Mie Grüneisen 状态方程，材料处于压缩状态时，其表达形式为[16]

$$p=\rho_0 c_g^2\mu\left[1+\left(1-\frac{\gamma_0}{2}\right)\mu-\frac{a}{2}\mu^2\right]\Big/\left[1-(s_1-1)\mu-s_2\frac{\mu^2}{\mu+1}-s_3\frac{\mu^3}{\mu+1}\right]^2+(\gamma_0+a\mu)E \quad (6)$$

式中：c_g、a、s_1、s_2 和 s_3 是与材料冲击压缩特性有关的常数，c_g 是 u_s-u_p 曲线的截距（u_s 为冲击波速，u_p 为质点速度），s_1、s_2 和 s_3 是 u_s-u_p 曲线斜率的系数，a 是对 Grüneisen 系数的一阶体积修正；γ_0 是 Grüneisen 系数；E 为材料内能；μ 为体积变化率，$\mu=\rho/\rho_0-1$。数值模拟中采用的参数如表 2 所示。

表 2 数值模拟中采用的参数[15,17-19]

Table 2 Parameters used in numerical simulations

Material	A /(MPa)	B /(MPa)	n	C	m	D_1	D_2	D_3	D_4	D_5	c_g	S_1 /(MPa)	γ_0	T_m /(K)	c_V / [J/(kg · K)]
Cu	90	292	0.31	0.025	1.09	5.4	4.89	0	0.014	1.12	3 940	133	2.02	1 356	383
Steel	792	510	0.26	0.014	1.03	−0.8	2.1	−0.5	0.002	0.61	5 172	164	1.16	1 793	477

5 分析与讨论

为验证数值模拟结果的有效性，以装药厚度为 60 mm、原始尺寸为∅30 mm×60 mm 的试样为例进行了对比，图 4(a)为爆炸加载后的试样，图 4(b)为同样加载条件下数值模拟得到的结果，可见数值模拟结果同实验结果吻合良好。

图 5 给出了宏观轴向应变同晶粒度的关系，其中晶粒度为试样轴线中心处的检测结果。由图 5(a)可见，当宏观轴向应变大于0.29时，可使晶粒度细化到100 nm以内，当宏观应变处于0.29～0.40区域



(a) Experiment (b) Numerical simulation

图 4 数值模拟结果同实验比较

Fig. 4 Comparison of experimental and numerical results

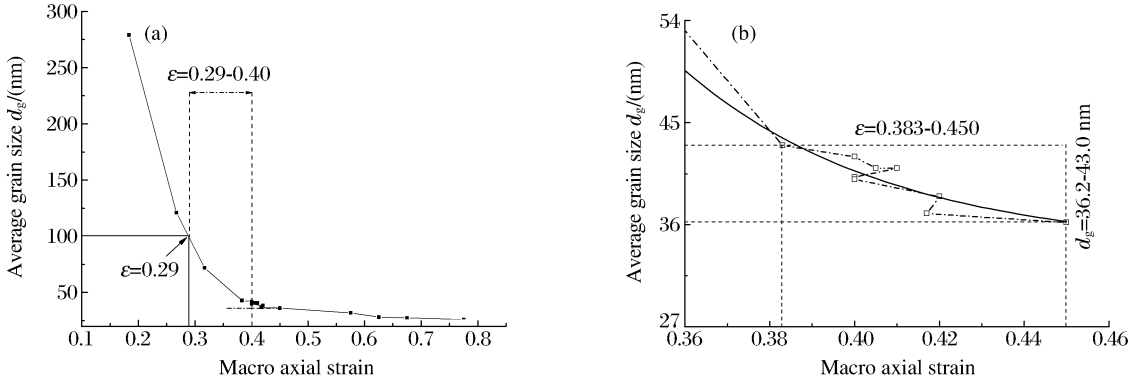


图 5 宏观轴向应变同晶粒度的关系

Fig. 5 Relation between macro-axial strain and grain size

内时,随着应变的增加,晶粒细化程度显著。图 5(b)是图 5(a)局部放大的 2-4 号至 2-12 号试样晶粒度随宏观应变的变化关系,虽然装药量相同,但由于实验条件的限制,仍引起试样应变在较小的范围内有所变化,相应的晶粒度亦有稍许不同,尽管如此,总体来看,应变和晶粒度较为稳定,说明实验的可重复性较好。为定量描述宏观轴向应变同晶粒度的关系,在 0.383～0.450 的应变范围内采用 $d_g = a + b \cdot \exp[-(\varepsilon - c)/d]$ 对其进行了拟合,相关参数值如下:$a=33.8$,$b=39.63$,$c=0.315$,$d=0.0488$。

如图 4 所示,在爆炸冲击载荷作用下,由于铜柱在轴向的变形不均匀,因而必将伴随着应变和应变率等参数的不均匀分布。为分析上述因素对试样晶粒度的影响,以装药厚度为 60 mm、原始尺寸为 ∅30 mm×60 mm 的试样为例,沿加载方向在其轴线上等间距取 8 个点进行研究。图 6 和图 7 分别为各点的应变、应变率时程曲线,可见,在加载过程中,试样在高达 10^4 s^{-1}的应变率下发生塑性大变形,沿加载方向,试件中心的应变呈先变小再缓慢变大而后快速变小的"S"形变化趋势,应变率与应变的变化趋势相同,只是在头部应变率变化最大,而晶粒度的变化趋势则与之相反,如图 8 和图 9 所示。

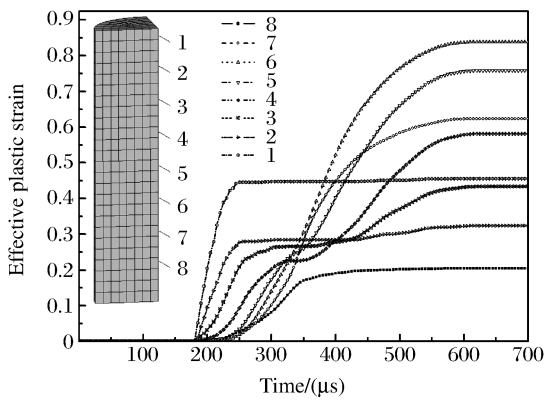


图 6　试样轴线上各点应变时程曲线

Fig. 6　Strain-time curves of selected points on the axes

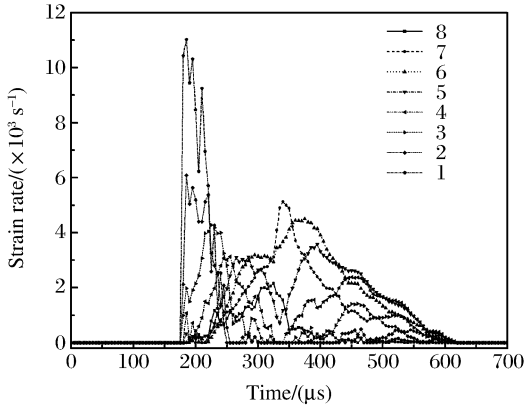


图 7　试样轴线上各点应变率时程曲线

Fig. 7　Strain rate-time curves of selected points on the axes

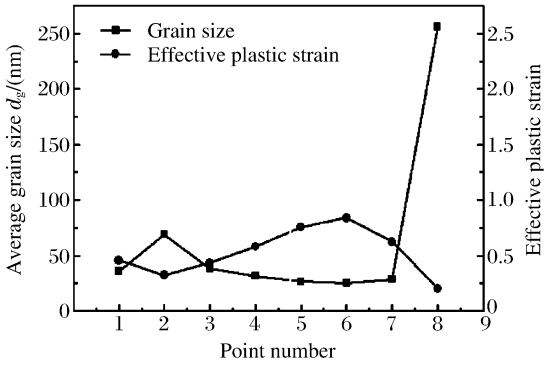


图 8　试样轴线上应变、晶粒度变化趋势图

Fig. 8　Distribution of strain and grain size on the axes

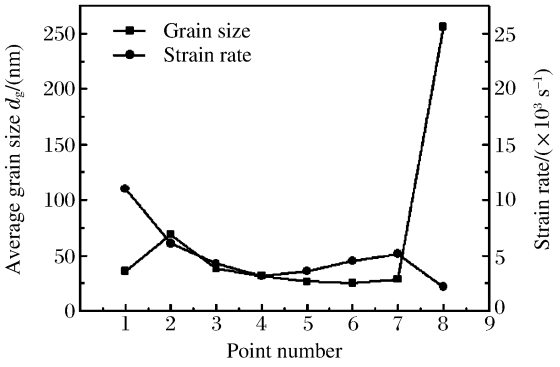


图 9　试样轴线上应变率、晶粒度变化趋势图

Fig. 9　Distribution of strain rate and grain size on the axes

6　结　论

(1) 采用爆炸加载使粗晶铜发生高应变率塑性大变形的方法可成功将晶粒细化到纳米级,当宏观轴向应变大于 0.29 时,可使晶粒度细化到 100 nm 以内,当宏观应变处于 0.29～0.40 区域内时,随着应变的增加,晶粒细化程度显著。

(2) 随着应变和应变率的增大,试件中晶粒尺寸的细化程度逐渐增大,即提高应变和应变率有利于

晶粒细化。

(3) 在加载过程中,试样应变率高达 $10^4\ s^{-1}$ 量级,在加载方向上,晶粒度呈不均匀分布,试件中心的应变呈先变小再缓慢变大而后快速变小的"S"形变化趋势,应变率与应变的变化趋势相同,只是在头部应变率变化最大,而晶粒度的变化趋势则与之相反。

需要说明的是,本研究采用爆炸加载的方法制备纳米晶铜只是初步的探索,对爆炸加载实验装置及其装药参数的控制仍需在今后的研究中进一步改进,对其晶粒细化及变形机制仍有待进一步研究及验证,如何对爆炸加工过程中试样的应变率进行准确测试,从而深入分析应变率对晶粒细化程度的影响有待深入研究。爆炸加载制备纳米晶铜的过程可以认为是绝热过程,如何控制试样不可避免地产生绝热温升而导致晶粒过分长大也是今后研究的一个方向。

References:

[1] Morris D G. Mechanical Behavior of Nanostructured Materials [M]. Geneva: Trans Tech Pub Inc, 1998.

[2] Wang H T, Yang W. Mechanical Behavior of Nanocrystalline Metals [J]. Adv Mech, 2004, 34(3): 314-326. (in Chinese)
王宏涛,杨 卫. 纳米金属的力学行为 [J]. 力学进展,2004,34(3):314-326.

[3] Sanders P G, Eastman J A, Weertman J R, et al. Elastic and Tensile Behavior of Nanocrystalline Copper and Palladium [J]. Acta Mater, 1997, 45(10): 4019-4025.

[4] Lu L, Li S X, Lu K, et al. An Abnormal Strain Rate Effect on Tensile Behavior in Nanocrystalline Copper [J]. Scripta Mater, 2001, 45(10): 1163-1169.

[5] Zhang L D, Mou J M. Nano-Materials and Nano-Structure [M]. Beijing: Science Press, 2001. (in Chinese)
张立德,牟季美. 纳米材料和纳米结构 [M]. 北京:科学出版社,2001.

[6] Benkassem S, Capolungo L, Cherkaoui M. Mechanical Proerties and Multi-Scale Modeling of Nanocrystalline Materials [J]. Acta Mater, 2007, 55(10): 3563-3572.

[7] Lichtenberger A, Bohmann A. Influence of Structure and Metallurgical State of a Liner on the Performance of a Shaped Charge [A]//Proceeding of the 6th International Symposium on Ballistics [C]. Orlando, 1981.

[8] Li A M, Zhang X Y, Zhao X C, et al. Progress in Preparation Technology and Mechanical Properties of Nanocrystalline Bulk Metals [J]. Materials Review, 2007, 21(4): 111-116. (in Chinese)
李安敏,张喜燕,赵新春. 纳米晶金属块体材料制备技术与力学性能研究进展 [J]. 材料导报,2007,21(4):111-116.

[9] Gleiter H. Nanostructured Materials: State of the Art and Perspectives [J]. Nanostructured Materials, 1995, 16: 3-14.

[10] Valiev R Z, Alexandrov I V. Bulk Nanostructured Materials by Severe Plastic Deformation [M]. Lin B N, Translated by Lin B N. Beijing: Science Press, 2006. (in Chinese)
Valiev R Z, Alexandrov I V. 剧烈塑性形变纳米材料 [M]. 林柏年,译. 北京:科学出版社,2006.

[11] Champion Y, Langlois C, Guérin S, et al. Analysis of Ductility of Nanostructured Copper Prepared by Powder Metallurgy [J]. Eng Fract Mech, 2008, 75(12): 3624-3632.

[12] Jankowski A F, Saw C K, Harper J F, et al. Nanocrystalline Growth and Grain-Size Effects in Au-Cu Electrodeposits [J]. Thin Solid Films, 2006, 494(1-2): 268-273.

[13] Chen F, Yang L M, Zhang M H. Producing Nano-Structured Copper Specimens under the High Strain Rate Load and Severe Plastic Deformation [J]. Journal of Ningbo University (Natural Science & Engineering Edition), 2006, 19(4): 481-485. (in Chinese)
陈 锋,杨黎明,张明华. 用高应变率大应变载荷制备纳米晶铜试件 [J]. 宁波大学学报(理工版),2006,9(4):481-485.

[14] Deng X L, Zhu W J, He H L, et al. Plasticity Mechanism Associated with Nano-Void Growth under Impact Loading along 〈111〉 Direction in Copper [J]. Chinese Journal of High Pressure Physics, 2007, 21(1): 59-65. (in Chinese)
邓小良,祝文军,贺红亮,等. 沿〈111〉晶向冲击加载下铜中纳米孔洞增长的塑性机制研究 [J]. 高压物理学报,2007,21(1):59-65.

[15] Johnson G R, Cook W H. Fracture Characteristics of Three Metals Subjected to Various Strain Rates, Temperatures and Pressures [J]. Eng Frac Mech, 1985, 21(1): 31-48.

[16] Editorial Group of Explosion and Its Effect by the Eighth Department of Beijing Institute of Technology. Explosion and Its Effect [M]. Beijing: National Defense Industry Press, 1979: 274-280. (in Chinese)
北京工业学院八系《爆炸及其作用》编写组. 爆炸及其作用 [M]. 北京:国防工业出版社, 1979: 274-280.

[17] Johnson G R, Cook W H. A Constitutive Model and Data for Metals Subjected to Large Strain, High Strain Rates and High Temperatures [A]//Proceedings of the Seventh International Symposium on Ballistic [C]. The Netherlands: The Hague, 1983: 541-547.

[18] Zhang B, Shim V P W. Determination of Inelastic Heat Fraction of OFHC Copper through Dynamic Compression [J]. Int J Impact Eng, 2010, 37(1): 50-68.

[19] Cooper S R, Benson D J, Nesterenko V F. A Numerical Exploration of the Role of Void Geometry on Void Collapse and Hot Spot Formation in Ductile Materials [J]. Int J Plasticity, 2000, 16: 525-540.

Study on the Grain-Size Distribution Rule and Influence Factors of Nanocrystalline Copper Fabricated under Explosive Loading

WANG Jin-Xiang[1], ZHOU Nan[1], WANG Xiao-Xu[1], HANG Yi-Fu[2]

(1. *Nanjing University of Science and Technology, Nanjing* 210094, *China*;
2. *Nanjing Baotai Special Materials Co. LTD., Nanjing* 211100, *China*)

Abstract: Nanocrystalline copper was fabricated by severe plastic deformation of coarse-grained copper at high strain rate under explosive loading. The average grain size of the samples was tested by X-ray diffraction analysis, and the deformation process was simulated recur to LS-DYNA3D finite element program. The influence of strain on the grain refining were analyzed quantitatively. The results show that it is feasible to fabricate nanocrystalline copper by explosively dynamic plastic deformation of coarse-grained copper and the grain size of the NC copper can be controlled less than 100 nm, the higher strain is beneficial to the grain refining, and the distribution of the grain size is not uniform along the loading direction.

Key words: explosive loading; nanocrystalline copper; grain size; strain; strain rate