

dc_982_15

Lapcentrált köbös fémek és ötvözetek képlékeny alakváltozási folyamatainak leírása és elemzése

MTA doktori értekezés tézisei

Nguyen Quang Chinh



Eötvös Loránd Tudományegyetem

Anyagfizikai Tanszék

Budapest, 2015

I. A kutatások előzményei

Gyorsan fejlődő világunkban több húzó ágazat, mint pl. építőipar, gépjárműipar vagy akár feldolgozó és elektronikai iparágak egyre újabb igényeket támasztanak a felhasználandó anyagokkal szemben. Egyrészt a felhasználandó fémek szilárdsági és alakíthatósági paramétereinek javítását célozzák meg a kutatók és a gyártók, másrészt a gazdasági és környezetvédelmi követelményeknek megfelelően az alkalmazható alapanyagok skálájának szélesítését is elvárják. A technikai fejlődésnek köszönhetően mind az anyagfejlesztésben, mind a vizsgálati módszerekben nagy lehetőségek nyílnak például a nano- és szubmikronkristályos anyagok előállításában, vagy a különböző méretű minták képlékeny deformációjának nanoskálán történő nyomon követésében. A fejlett világban óriási kutatómunka folyik annak érdekében, hogy újabb és újabb, a különböző céloknak jobban megfelelő anyagokat állítsanak elő, aminek egyik fontos feltétele, hogy jobban és részletesebben megismerjük a fémek szilárdságnövelő és deformációs mechanizmusaival kapcsolatos folyamatokat.

A fémek képlékeny alakváltozása, valamint a szilárdságnövelés mikromechanizmusai több évtizede tanulmányozott és még ma sem teljesen tisztázott problémakörök, melyek még tovább bővülnek az utóbbi időben bevezetett nagymértékű deformációs eljárásokkal. A nagymértékű deformáció alkalmazása egy sor újabb kérdést vet fel, mint például hogyan írható le a deformáció folyamata széles deformáció-tartományban, mitől függhet a maximális szilárdságot meghatározó telítési diszlokáció-sűrűség, és az ilyen függés általánosítható-e az azonos felépítésű – mint pl. lapcentrált köbös (l.c.k.) szerkezetű – fémcsoportra...stb.

Az ELTE Anyagfizikai (korábban Általános Fizika) Tanszékén évtizedek óta folyik az anyagok mechanikai tulajdonságainak vizsgálata, szoros együttműködésben több hazai és külföldi intézménnyel. A jelen doktori értekezés a tanszéken folyó több éves kutatási programokhoz kapcsolódik. Több olyan új kísérleti eredmény is született, amelyek kifejezetten azzal függnek össze, hogy az utóbbi 10-15 évben sikerült korszerű mérőeszközöket - mint pl. atomi erő mikroszkópot, nano- és mikroindentációs berendezéseket, vagy a legújabb többfunkciós pásztázó elektron mikroszkópot - beszerezni. Ezek a modern eszközök, amelyekkel már nanométeres szinten nyomon követhető több fontos képlékeny alakváltozási folyamat, és amelyekkel új mérési eljárások válnak lehetségessé, nagy lökést adtak és adnak egyes ismert jelenségek alaposabb és mélyebb megértéséhez. Így például, a mikroindentációs eszköz használatával, a világon elsőként

kezdődött meg a Tanszékünkön képlékeny instabilitások dinamikus mikrokeménységméréssel történő tanulmányozása, lehetővé téve több fontos tényező vizsgálatát is.

II. Célkitűzések

Mind az alap-, mind az alkalmazott kutatások szempontjából igen fontos megérteni a képlékeny alakváltozás mikrofolyamatait és a szilárdságnövelő mechanizmusokat. E mellett a fémes ötvözetek ipari felhasználása szempontjából elengedhetetlen a mikroszerkezet és a mechanikai tulajdonságok kapcsolatának kutatása. Így az egyes alakváltozási folyamatok széles deformáció-tartományt átfogó elemzése mellett nagyon fontos tanulmányozni a képlékeny deformációt befolyásoló anyagi jellemzők - az oldott atomok, kiválások, szemcseméret, rétegződési hibaenergia – szerepét is. A doktori értekezésem irodalmi áttekintésében bemutatam azon kutatási területeket, melyek egyrészt jelenleg is az anyagtudomány homlokterében vannak, másrészt amelyeken a Tanszékünkön, valamint a hazai és külföldi partnerekkel való együttműködésekben rendelkezésre álló lehetőségek mélyebb és többoldalú vizsgálatokat tesznek lehetővé.

Az előzményekből kiindulva kutatási célom az volt, hogy a technikai fejlődés által kínált lehetőségeket is kihasználva széles deformáció-tartományban is érvényes módon írjam le a l.c.k. fémek képlékeny folyamatait. Célul tűztem ki továbbá azt is, hogy alaposabban megvizsgáljam az ötvöző atomoknak és kiválásoknak a képlékeny alakváltozási folyamatokra gyakorolt hatását, valamint azt, hogy milyen hatásuk lehet a szemcsehatároknak és a szemcseméretnek a nagymértékű deformációs eljárások alkalmazásával létrehozott ultra-finomszemcsés anyagok tulajdonságaira.

III. Vizsgálati módszerek

A különböző lapcentrált köbös fémek és ötvözetek képlékeny alakváltozási folyamatait elsősorban egytengelyű nyújtással, összenyomással, valamint dinamikus nano- és mikroindentációs (benyomódási) mérésekkel vizsgáltam. A folyamatok leírásához és elemzéséhez matematikai numerikus szimulációkat is végeztem.

A deformáció-mechanizmusok kiderítéséhez, az ötvöző atomok, kiválások és szemcsehatárok hatásának tisztázásához elengedhetetlenül szükségesek a mikroszerkezeti vizsgálatok is. Így kutatásaim során a mechanikai vizsgálatokat transzmissziós

elektronmikroszkópos (TEM), pásztázó elektronmikroszkópos (SEM), röntgendiffrakciós és atomi erőmikroszkópos (AFM) mérésekkel egészítettem ki.

IV. Új tudományos eredmények tézises összefoglalása

1) Nagytisztaságú, polikristályos lapcentrált köbös fémek homogén deformációjára jellemző feszültség-deformáció ($\sigma - \varepsilon$) összefüggéseket vizsgálva új konstitutív egyenletet javasoltam, aminek érvényességét nemcsak kísérleti adatokkal, hanem a plasztikus deformáció alapvető mikro-mechanizmusain alapuló numerikus modell-számításokkal is alátámasztottam. Az új konstitutív egyenlet magában foglalja a hagyományos, gyakran használt Hollomon- és Voce-féle formulák főbb tulajdonságait, de azoknál pontosabb leírást ad széles deformáció-tartományban [S1-S4].

2) Az új konstitutív összefüggés alkalmas a stacionárius tartósfolyás (kúszás) leírására és jellemzésére. Megmutattam, hogy az új konstitutív egyenlet segítségével a deformáció folyamatára jellemző aktiválási energia és sebességérzékenységi tényező is meghatározható. Tiszta alumínium esetében, széles hőmérséklet-tartományban végzett mérések eredményeiből megállapítottam, hogy az új egyenlet alapján is megkülönböztethetők a kúszás szemcsehatár-diffúzióval, illetve rácsdiffúzióval jellemezhető alacsony és magas hőmérsékletű tartományai, melyekben a sebességérzékenységi tényezők is különbözőek. Az új egyenlet alkalmazásával kimutattam, hogy tiszta Al esetén a kúszás két hőmérséklet-tartományának határa $0.5T_m$ -nél található, ahol T_m az abszolút olvadáspont [S2-S4].

3) Tiszta ezüst mechanikai tulajdonságait széles deformáció-tartományban vizsgálva megállapítottam, hogy extrém nagy deformációt követően önlágyulás léphet fel, azaz a deformált mikroszerkezet nem stabil a szobahőmérsékleti tárolás során [S5-S10]. Az ezüstnek ezt a szokatlan – a többi vizsgált lapcentrált köbös fém viselkedésétől eltérő – tulajdonságát az extrém alacsony rétegződési hibaenergiájával indokoltam [S8,S9]. A közvetlenül a deformáció után végzett mikroszerkezeti vizsgálatok szokatlanul nagy diszlokáció-sűrűséget mutattak, aminek oka, hogy az alacsony rétegződési hibaenergia miatt a parciális diszlokációk nagymértékben eltávolodnak egymástól, ezáltal jelentősen gátolva a diszlokációk annihilációhoz elengedhetetlen

kúszó mozgását és keresztcsúszását. A nagy diszlokáció-sűrűség a deformáció alatt jelentős ikresedéshez, az alakítást követően pedig önlágyuláshoz vezet. Ezek az eredmények rámutatnak arra, hogy a nagymértékű deformációs eljárások alkalmazásánál nagyon fontos megfelelő, optimális deformáció mértéket alkalmazni az alacsony rétegződési hibaenergiájú, önlágyulásra hajlamos fémek esetében.

4) Nagytisztaságú polikristályos Al-on, kétkomponensű szilárd oldat Al-Mg modellötvözeteken, valamint nemesíthető Al-Zn-Mg ötvözeteken végzett mélység-érzékeny benyomódási (indentációs) mérések eredményeivel igazoltam, hogy a mérési módszer a plasztikus deformáció folyamatának nyomonkövetésére is alkalmas. Munkatársaimmal együtt a világon elsőként mi tanulmányoztuk a Portevin-Le Chatelier-féle plasztikus instabilitásokat benyomódás-mérésekkel, lehetővé téve több fontos tényező, mint pl. ötvözőkoncentráció vagy deformáció-sebesség függésének vizsgálatát is [S11-S15]. Ezzel ennek a korszerű vizsgálati módszernek egy újabb alkalmazását vezettük be. Ugyancsak a benyomódás-mérések segítségével, elsőként sikerült közvetlen kísérleti bizonyítékot adnom az ultra-finomszemcsés Al és ötvözetek szobahőmérsékleti deformációja során fellépő szemcsehatár-csúszásra [S21].

5) Al-Mg modellötvözeteken végzett benyomódás-mérések alapján kimutattam, hogy az ötvözetekben fellépő Portevin-Le Chatelier-instabilitásokra jellemző paraméterek erősen függenek a deformáció-sebességtől és az ötvöző-koncentrációtól [S11,S12]. Meghatároztam az Al-3Mg ötvözet esetében azt a felső deformáció-sebesség határt, ami fölött már nem lép fel szobahőmérsékleten plasztikus instabilitás. Megállapítottam továbbá, hogy plasztikus instabilitások csak egy C_0 kritikus Mg koncentráció fölött lépnek fel. Ennek a C_0 kritikus koncentrációnak az értékét kísérletileg meghatároztam és elméleti úton is értelmeztem [S13].

6) Kimutattam, hogy az ipari felhasználás szempontjából fontos, nemesíthető Al-Zn-Mg-(Cu) ötvözetekben fellépő plasztikus instabilitásokat az oldott ötvöző atomokon kívül a Guinier-Preston (GP) zónák képződése is nagymértékben befolyásolja [S14-S17]. Így a plasztikus instabilitásokra jellemző paraméterek elemzése alapján - kvantitatív módon - is nyomon követhető az ötvözetekben lezajló kiválási folyamatok korai szakasza. Ennek alapján megállapítható, hogy a Cu adalék lelassítja a GP-zónák képződését a szétesés korai szakaszában.

A kapott eredmények szerint a nemesíthető Al-ötvözetek deformációs szemcsefinomításánál az edzést követően minél hamarabb meg kell kezdeni a nagymértékű deformációs eljárást, hogy el lehessen kerülni a GP-zónák jelenlétében bekövetkező erős deformáció-lokalizációt, és ennek következményeként katasztrofális repedések kialakulását [S18,S19]. Megállapítottam továbbá azt is, hogy a túltelített szilárd oldat szétesése során fellépő Portevin-Le Chatelier-féle plasztikus instabilitás úgy is leírható, mint egy önszerveződő kritikus jelenség, aminek a mechanizmusa több más bonyolult rendszer esetében is megfigyelhető a természetben [S20].

7) Az ultra-finomszemcsés tiszta Al és Al-30Zn ötvözet plasztikus deformációjára jellemző sebességérzékenységi tényező és aktiválási energia elemzésével megállapítottam, hogy ezekben a finomszemcsés anyagokban a szobahőmérsékleti deformáció során is jelentős szerepe van a szemcsehatár-csúszásnak [S21-S28], amiről kísérleti bizonyítékokat is sikerült bemutatnom az indentációs mérések [S21-S25], illetve mikrooszlopokon végzett összenyomási mérések [S26,S28] segítségével. Kimutattam, hogy az ultra-finomszemcsés Al-30Zn ötvözet esetében a szemcsefinomítás során kialakult, Zn-ben gazdag réteggel nedvesített Al/Al szemcsehatároknak köszönhetően a szemcsehatár-csúszás mechanizmusa szokatlan nagy sebességérzékenységgel megy végbe, ami az anyag nagy alakíthatóságához vezet [S28].

8) Irodalmi és saját kísérleti adatok alapján javasoltam egy módosított Hall-Petch összefüggést, amellyel egységesen, jól leírható az ultra-finomszemcsés lapcentrált köbös fémek és szilárd oldat ötvözetek folyáshatárának szemcseméret-függése. Megmutattam, hogy a Hall-Petch-formula módosítását nem csak a kísérleti adatok, hanem elméleti megfontolások is indokolják. A módosított formulában szereplő, a szemcseméret-függést leíró tag hatványkitevőjének értéke a szemcséken belül aktiválható csúszási rendszerek átlagos számával kapcsolatos. A szemcseméret csökkenésével a többszörös csúszás helyett egyszeres csúszás lesz jellemző a szemcséken belüli plasztikus deformációra [S23].

V. A kutatási eredmények gyakorlati hasznosítása

A fémes anyagok képlékeny alakváltozásának leírására alkalmas hagyományos Hollomon és Voce-féle formulákat az anyagtudomány területén dolgozó kutatók mellett a mérnökök is gyakran alkalmazzák. Az értekezésemben ismertetett új konstitutív egyenlet magában foglalja mindkét formula használatát, és így széles deformáció-tartományban, nagyobb pontossággal alkalmazható a mérnöki gyakorlatban. Ezzel együtt a nagymértékű deformációs – szemcsefinomító - eljárások gyakorlati alkalmazásában is hasznosítható az új konstitutív egyenlet.

Az ezüst különleges viselkedésével kapcsolatos új eredmények nemcsak az alapkutatás, hanem a gyakorlati felhasználás szempontjából is fontosak, mert a nagymértékű deformációs eljárások megfelelő alkalmazására hívják fel a figyelmet. Az alacsony rétegződési hibaenergiájú fémek mikroszerkezetének szobahőmérsékleti stabilitása csökkenhet extrém nagymértékben deformált állapotban, és ez befolyásolhatja az adott anyag szerkezeti anyagként való felhasználását. Ezért - a kapott eredmények alapján levonható következtetésként – fontos megfelelő, optimális deformáció mértéket alkalmazni az alacsony rétegződési hibaenergiájú, önlágyulásra hajlamos fémek esetében.

Az értekezésben tárgyalt plasztikus instabilitással kapcsolatban érdemes azt kiemelni, hogy azért fontos a kritikus deformációt - kísérletileg és elméletileg is – tanulmányozni, mert a kritikus deformációnál egy minőségi változás áll be a képlékeny alakváltozás mechanizmusában, amikor egy sima stabil deformáció alakul át oszcillálóvá. Ipari szempontból, a termékek minősége - pl. a váratlan felületdurvulás - miatt igyekeznek elkerülni ezt a deformáció-lokalizációval járó jelenséget és megmaradni a stabil deformáció-tartományában.

Az ultra-finomszemcsés anyagok tulajdonságaival kapcsolatos eredmények is jelentősek a gyakorlati felhasználás szempontjából. Kimutattam, hogy a nagy deformáció-lokalizáció miatt, ami katasztrofális töréshez vezethet, nem célszerű durva szemcsés anyagból készült mikronméretű alkatrészt (pl. drótot) használni a mikrotechnológiai berendezések készítésében. Továbbá, az ultra-finomszemcsés mikrooszlopoknak a szemcsehatár-csúszással járó stabil deformációja egyrészt a szemcsehatár-csúszási mechanizmus előnyeit, másrészt pedig az ultra-finomszemcsés anyagoknak a mikro-berendezésekben való potenciális felhasználási lehetőségét is hangsúlyozza.

VI. A tézispontokhoz kapcsolódó tudományos közlemények

- S1. N. Q. Chinh, Gy. Horváth, Z. Horita and T. G. Langdon: A new constitutive relationship for the homogeneous deformation of metals over a wide range of strain, *Acta Mater.* **52** (2004) 3555-3562.
- S2. N. Q. Chinh, J. Illy, Z. Horita and T. G. Langdon: Using stress-strain relationships to define the low and high temperature plastic deformation regions in aluminum, *Mater. Sci. Eng A* **411** (2005) 234-238.
- S3. N. Q. Chinh, T. Csanádi, J. Gubicza, T.G. Langdon: Plastic behavior of fcc metals over a wide range of strain, *Acta Mater.* **58** (2010) 5015–5021.
- S4. T. Csanádi, N. Q. Chinh, J. Gubicza, Gy. Vörös, T. G. Langdon: Characterization of stress–strain relationships in Al over a wide range of testing temperatures, *Inter. J. Plasticity* **54** (2014) 178-192.
- S5. J. Gubicza, N. Q. Chinh, J. L. Lábár, Z. Hegedűs, P. Szommer, G. Tichy, T. G. Langdon: Delayed microstructural recovery in silver processed by equal-channel angular pressing, *J. Mater. Sci.* **43** (2008) 5672-5676.
- S6. J. Gubicza, N. Q. Chinh, J. L. Lábár, G. Tichy, Z. Hegedűs, C. Xu, T. G. Langdon: Stability of microstructure in silver processed by severe plastic deformation, *Int. J. Mater. Res.* **100** (2009) 884-887.
- S7. J. Gubicza, N. Q. Chinh, J. L. Lábár, Z. Hegedűs, T. G. Langdon: Twinning and dislocation activity in silver processed by severe plastic deformation, *J. Mater. Sci.* **44** (2009) 1656–1660.
- S8. J. Gubicza, N. Q. Chinh, J. L. Lábár, Z. Hegedűs, T. G. Langdon: Unique features of ultrafine-grained microstructures in materials having low stacking fault energy, *Mater. Sci. Forum* **659** (2010) 171-176.
- S9. J. Gubicza, N. Q. Chinh, J. L. Lábár, Z. Hegedűs and T. G. Langdon, Principles of self-annealing in silver processed by equal-channel angular pressing: the significance of a very low stacking fault energy, *Mater. Sci. Eng. A.* **527** (2010) 752-760.
- S10. J. Gubicza, N. Q. Chinh, T. G. Langdon: Monitoring of self-annealing in ultrafine-grained silver by nanoindentation, *Nanosci. Nanotechnol. Lett.* **2** (2010) 294-297.
- S11. Gy. Bérces, N. Q. Chinh, A. Juhász and J. Lendvai: Kinetic analysis of plastic instabilities occurring in microhardness tests, *Acta Metall.* **46** (1998) 2029-2037.
- S12. Gy. Bérces, N. Q. Chinh, A. Juhász and J. Lendvai: Occurrence of plastic instabilities in dynamic micro-hardness testing, *J. Mat. Research* **13** (1998) 1411-1413.

- S13. N. Q. Chinh, F. Csikor, Zs. Kovács and J. Lendvai: Critical concentration of Mg addition for plastic instabilities in Al-Mg alloys, J. Mat. Research **15** (2000) 1037-1040.
- S14. N. Q. Chinh, Gy. Horváth, Zs. Kovács and J. Lendvai: Characterisation of plastic instability depth-load steps occurring in depth sensing indentation tests, Mater. Sci. and Eng. A **324** (2002) 219-224.
- S15. N. Q. Chinh, J. Gubicza, Zs. Kovács and J. Lendvai: Depth Sensing Indentation Tests in Studying Plastic Instabilities, J. Mater. Res. **19** (2004) 31-45. (*Összefoglaló cikk*)
- S16. N. Q. Chinh, J. Lendvai, D. H. Ping, and K. Hono, The effect of Cu on mechanical and precipitation properties of Al₂Zn₂Mg alloys. J. All. Compd. **378** (2004) 52-60.
- S17. N. Q. Chinh, Gy. Horváth, Zs. Kovács, A. Juhász, Gy. Bérces and J. Lendvai: Review on Kinematic and dynamic characterization of plastic instabilities occurring in nano- and microindentation tests, Mater. Sci Eng. A **409** (2005) 100-107. (*Összefoglaló cikk*)
- S18. N. Q. Chinh, J. Gubicza, T. Czeppe, J. Lendvai, C. Xu, Ruslan Z. Valiev and T. G. Langdon: Developing a strategy for the processing of age-hardenable alloys by ECAP at room temperature, Mater. Sci. Eng. A **516** (2009) 248-252.
- S19. N. Q. Chinh, J. Gubicza, T. Czeppe, J. Lendvai and T. G. Langdon: Processing Age-hardenable Alloys by Equal-Channel Angular Pressing at Room Temperature: Strategies and Advantages, Materials Science Forum Vols. **633-634** (2010) pp 527-534.
- S20. N. Q. Chinh, J. Gubicza, J. Lendvai, T. G. Langdon: Possible self-organized criticality in the Portevin - Le Chatelier effect during decomposition of solid solution alloys, MRS Communications **2** (2012) 1-4.
- S21. N. Q. Chinh, P. Szommer, Z. Horita and T. G. Langdon, Experimental evidence for grain boundary sliding in ultrafine-grained aluminum processed by severe plastic deformation, Advanced Mater. **18** (2006) 34-39.
- S22. N. Q. Chinh, P. Szommer, T. Csanádi and T. G. Langdon: Flow processes at low temperatures in ultrafine-grained aluminum, Mater. Sci. Eng. A **434** (2006) 326-334.
- S23. N. Q. Chinh, J. Gubicza and T. G. Langdon: Characteristics of Face-Centered Cubic Metals Processed by Equal-Channel Angular Pressing, J. Mater. Sci **42** (2007) 1594-1605. (*Összefoglaló cikk*)
- S24. R. Z. Valiev, M. Y. Murashkin, A. Kilmametov, B. B. Straumal, N. Q. Chinh, T. G. Langdon: Unusual super-ductility at room temperature in an ultrafine-grained aluminum alloy, J Mater. Sci. **45** (2010) 4718-4724.
- S25. N. Q. Chinh, T. Csanádi, J. Gubicza, R. Z. Valiev, B. B. Straumal, T. G. Langdon: The effect of grain-boundary sliding and strain rate sensitivity on the ductility of ultrafine-grained materials, Mater. Sci. Forum **667-669** (2011) 677-682.

- S26. N. Q. Chinh, T. Győri, R. Z. Valiev, P. Szommer, G. Varga, K. Havancsák, T. G. Langdon: Observations of unique plastic behavior in micro-pillars of an ultrafine-grained alloy, *MRS Communications* **2** (2012) 75-78.
- S27. N. Q. Chinh, T. Csanádi, T. Győri, R. Z. Valiev, B. B. Straumal, M. Kawasaki, T. G. Langdon: Strain rate sensitivity studies in an ultrafine-grained Al-30wt.% Zn alloy using micro- and nanoindentation, *Mater. Sci. Eng. A* **543** (2012) 117– 120.
- S28. N. Q. Chinh, R. Z. Valiev, X. Sauvage, G. Varga, K. Havancsák, M. Kawasaki, B. B. Straumal, T. G. Langdon: Grain boundary phenomena in an ultrafine-grained Al-Zn alloy with improved mechanical behavior for micro-devices, *Adv. Eng. Mater.* **16** (2014) 1000-1009.

VII. Tudományos adatok

Nguyen Quang Chinh munkássága

	Közlemények száma	Független idézettség	Ekvivalens idézettség
Teljes munkásság	108	925	867
Kandidátusi fokozat (1994) után	91	873	820
Tézisekben szereplő közlemények	28	399	383

A függő és független hivatkozásból számolt Hirsch-indexe	21
A független hivatkozásból számolt Hirsch-indexe	18