

## بررسی رفتار تغییر شکل توأم لایه در کامپوزیت چندلایه مس - نقره تولید شده به روش نورد اتصالی تجمعی

لاله قلندری<sup>۱\*</sup>، محمد محسن مشکسار<sup>۲</sup>

### چکیده

چندلایه‌های فلزی، با ضخامت نانومتری لایه‌ها، به دلیل ویژگی‌های مکانیکی، الکتریکی و مغناطیسی در سال‌های اخیر توجه گستردگانی را به خود جلب کرده‌اند. در این پژوهش، کامپوزیت چندلایه مس-نقره با ساختار نانو با استفاده از فرآیند نورد اتصالی تجمعی تولید شد. در ادامه، رفتار تغییر شکل همزمان لایه‌های مس و نقره و ناپایداری پلاستیک آنها با استفاده از میکروسکوپ الکترونی بررسی گردید. در این بررسی مشاهده شد که پیوستگی لایه‌ها تا مرحله‌ی آخر حفظ شده و فاز سخت مس، گلویی و فاز نرم نقره، موج‌دار شد. در نهایت عوامل تأثیرگذار بر چگونگی تغییر شکل توأم لایه‌ها مورد بررسی قرار گرفت.

**واژه‌های کلیدی:** تغییر شکل توأم، ناپایداری پلاستیک، گلویی شدن، نورد اتصالی تجمعی، میکروسکوپ الکترونی روبشی.

۱- استادیار گروه مواد، پردیس مهندسی، دانشگاه آزاد اسلامی واحد شیراز.

۲- استاد بخش مواد، دانشکده مهندسی، دانشگاه شیراز.

\*- نویسنده‌ی مسئول مقاله: lgh@iaushiraz.net

نشان داد که هر اندازه تنش سیلان دو فاز به یکدیگر نزدیکتر باشد، پیوستگی لایه‌ها بیشتر خواهد بود و هر اندازه این نسبت بیشتر شود، ناپایداری پلاستیک سریع‌تر در لایه‌ها به وجود می‌آید<sup>[۷]</sup>. با استفاده از آنالیز المان محدود برای حفظ پیوستگی لایه‌ها، در مواد کاملاً کشسان بیشینه‌ی نسبت تنش سیلان دو فاز را عدد دو و در مواد کارسخت شونده عدد پنج را محاسبه کردند.

### نسبت ضخامت دو جزء

لی و همکاران<sup>[۱]</sup> مشاهده کردند که با کاهش ضخامت فاز نرم، گلویی شدن به تعویق افتاده و سبب حفظ پیوستگی لایه‌ها می‌شود.

هوانگ و همکاران<sup>[۸]</sup> در آنالیز ناپایداری ساندویچ‌های سه‌لایه‌ای در تغییر شکل توأم، به این نتیجه رسیدند که فاز سخت همواره تحت کشش بوده و گلویی می‌شود و فاز نرم تحت فشار می‌باشد. چن و همکاران<sup>[۶]</sup> گلویی شدن فازهای موجود در چندلایه‌ای را بررسی کرده و بسته به محل قرار گرفتن فاز سخت، دو حالت گلویی شدن نامتقارن و متقارن فاز سخت را برای تغییر شکل فازها بیان کردند.

در این پژوهش، بهمنظور دست‌یابی همزمان به استحکام و هدایت الکتریکی بالا و اقتصادی بودن محصول تصمیم گرفته شد که کامپوزیت لایه‌ای مس- نقره از روش نورد اتصالی تجمیع ورقهای مس و نقره در مقیاس آزمایشگاهی تولید گردد. سپس چگونگی تغییر شکل همزمان چندلایه‌ای مس- نقره‌ی تولید شده و عوامل مؤثر بر آن با استفاده از مدل چن و هوانگ<sup>[۸]</sup> بررسی شد.

### روش پژوهش

مواد اولیه‌ی مورد استفاده در این پژوهش، ورقهای مس و نقره‌ی خالص تجاری می‌باشد که ترکیب و ابعاد آنها در جدول ۱ و ویژگی‌های آنها در جدول ۲ مشخص شده است.

### تولید نانوکامپوزیت مس- نقره

پس از انجام آزمایش کشش و سختی سنجی بر نمونه‌های مس و نقره‌ی اولیه، سطوح نمونه‌ها پس از

### پیشگفتار

چندلایه‌های فلزی، با ضخامت نانومتری لایه‌ها، به‌دلیل ویژگی‌های مکانیکی، الکتریکی و مغناطیسی در سال‌های اخیر توجه گسترده‌ای را به خود جلب کرده‌اند. روش تولید این مواد معمولاً با استفاده از فرآیندهای لایه نشانی مانند تبخیر و فلزپوشی<sup>۱</sup> به گونه‌ی لایه‌های نازک بوده است<sup>[۱]</sup>. در تولید به گونه‌ی حجمی با مزیت امکان تولید صنعتی، از فرآیندهای تغییر شکل مانند پرس- نورد متناوب<sup>[۲]</sup>، تاکردن- نورد متناوب<sup>[۳]</sup> و روش نورد اتصالی تجمعی<sup>[۴]</sup> استفاده می‌شود.

چندلایه‌های فلزی تولید شده به روش تغییر شکل به دو گروه اصلی تقسیم می‌شوند:

(الف) چندلایه‌ی فلزی بدون حفظ پیوستگی لایه‌ها: لایه‌های فاز سخت‌تر که نخست پیوسته بوده‌اند، حین فرایند شکل‌دهی گلویی شده و می‌شکنند و سبب تولید ساختاری شامل صفحه‌های لایه‌ای منقطع فاز سخت در زمینه فاز نرم‌تر می‌گردد.

(ب) چندلایه‌ی فلزی با حفظ پیوستگی لایه‌ها: در این گروه، هر دو فاز تا آخر تغییر شکل، پیوسته باقی‌مانده و ساختار لایه‌ای از هر دو نوع فلز ایجاد می‌کنند.

عوامل مؤثر بر حفظ پیوستگی لایه‌ها به شرح زیر می‌باشد: نسبت سختی اجزا: بدیوکس و همکاران مشاهده نمودند که در چندلایه‌ها، با کاهش سختی فاز سخت‌تر، شرایط گلویی شدن چندتایی<sup>۲</sup> آسان‌تر شده و سبب تأخیر در شکست فاز سخت‌تر می‌گردد. هربرت<sup>۳</sup> و همکاران<sup>[۵]</sup> پیشنهاد دادند که نسبت سختی اجزا تشکیل دهنده، معیار خوبی برای پیش‌بینی کیفی رفتار لایه‌ها حین تغییر شکل می‌باشد.

### تنش سیلان

چن<sup>۴</sup> و همکاران<sup>[۶]</sup> با استفاده از یک آنالیز ساده، ناپایداری سطوح مشترک را در یک ماده‌ی مرکب دو لایه‌ای بررسی کرده و نسبت تنش سیلان دو ماده را فراسنج تعیین کننده در نظر گرفتند. نتایج بررسی آنها

1- sputtering

2- Multiple necking

3- Hebert

4- Chen

۲- با فرض همگن بودن کرنش در دو فاز مس و نقره. کرنش کل در مرحله‌ی صفر با استفاده از رابطه‌ی (۱) محاسبه گردیده و سپس با استفاده از روابط (۲) و (۳) ضخامت لایه‌های مس و نقره در نمونه‌های بهدست آمده از مرحله‌ی صفر محاسبه شد.

$$\bar{\varepsilon} = \left\{ \frac{2}{\sqrt{3}} \ln \frac{t_f}{t_0} \right\} \quad (1)$$

در ادامه، ضخامت در هر مرحله ARB با استفاده از روابط زیر محاسبه شد:

$$t_{nAg} = \frac{t_{0Ag}}{2^n} \quad (2)$$

$$t_{nCu} = \frac{t_{0Cu}}{2^n} \quad (3)$$

: ضخامت در هر مرحله و  $t_0$ : ضخامت لایه‌ها پس از انجام مرحله‌ی صفر می‌باشد. داده‌های مربوط به محاسبه‌ی ضخامت در جدول ۳ مشخص شده است.

### نتایج و بحث

ساختار لایه‌ای مقطع RD-ND نمونه‌های تولید شده در شکل ۲ تا ۵ نشان داده شده است. با توجه به این تصاویر، مشاهده می‌گردد که پیوستگی لایه‌ها تا مرحله‌ی نهم حفظ شده که این با چندلایه‌هایی مانند آلومینیم-نیکل [۹] متفاوت است. دلیل حفظ پیوستگی لایه‌ها، نسبت بالای ضخامت فاز سخت به فاز نرم و نزدیکی عدد سختی مس و نقره می‌باشد (جدول ۲).

جدول ۳ ضخامت لایه‌های مس و نقره و جدول ۴ تعداد آنها را در هر مرحله از فرآیند نشان می‌دهد. چنانچه در این جداول و تصاویر SEM مشاهده می‌شود، با افزایش مراحل ARB کاهش ضخامت لایه‌ها و تعداد آنها به صورت توانی افزایش می‌یابد.

در این پژوهش، مس فاز سخت و نقره فاز نرم می‌باشد. بنابراین مدل هوانگ و همکاران [۸] به لایه‌ی نقره نیروی فشاری و به لایه‌ی مس نیروی کششی وارد می‌شود. از سوی دیگر، فاز نرم نقره در میان دو فاز سخت مس قرار دارد. براساس مدل چن و همکاران [۶] انتظار می‌رود که در چندلایه‌ی مس-نقره، فاز مس گلویی شده و فاز نقره موج‌دار شود.

شکل ۲ مراحل نخست، دوم و سوم و فرآیند ARB مربوط به گروه‌های Ag100 و Ag200 را نشان می‌دهد.

چربی‌زدایی با استن و با استفاده از برس سیمی، برس کاری شده (یک سمت از ورق مسی و دو سمت ورق نقره) و سپس سه لایه به گونه‌ی بسته مس-نقره-مس روی هم قرار داده شد. بهمنظور جلوگیری از حرکت ورق‌ها، چهار سوی این ساندویچ با متنه ۵ میلی‌متر سوراخ شده و با سیم مسی بسته شدند. سپس بهمنظور ایجاد جوش سرد به سرعت تحت کاهش ضخامت ۵۷ درصد نورد گردیدند (شکل الف-۱). در این پژوهش، این مرحله پاس صفر نامگذاری شده و محصول این مرحله دو ساندویچ به شرح زیر می‌باشد:

۱- Ag 100: شامل دو لایه مس به ضخامت ۱ میلی‌متر و لایه‌ی نقره به ضخامت ۱۰۰ میکرون.

۲- Ag 200: شامل دو لایه مس به ضخامت ۱ میلی‌متر و لایه‌ی نقره به ضخامت ۲۰۰ میکرون.

نمونه‌های بهدست آمده از مرحله‌ی پیش را از وسط بریده و پس از چربی‌زدایی و برس کاری، روی هم قرار داده و با سیم بسته و نورد شدند (کاهش ضخامت ARB) (شکل این عمل تا ۹ پاس تکرار گردید (عملیات ARB) (شکل ب-۱). عمل نورد در دمای اتاق، بدون استفاده از روان‌کار، به‌وسیله‌ی دستگاه نورد آزمایشگاهی با ظرفیت ۲۰ تن و غلطک‌هایی با قطر ۱۷۰ میلی‌متر و طول ۱۱۰ میلی‌متر انجام شد.

### آنالیز ساختار لایه‌ای و برسی تغییر شکل توأم

از میکروسکوپ الکترونی روبشی Vega©Tescan برای بررسی ساختار لایه‌ای استفاده شد. بهمنظور آماده‌سازی سطح نمونه‌ها، قطعات از مقطع (RD-ND) بریده و پس از سمباده‌زنی و پولیش و بهمنظور افزایش کیفیت سطح در محلول کلور فریک الکلی (۱۰۰ میلی‌لیتر  $C_2H_5OH$ , ۵ میلی‌لیتر  $HCl$ , ۲ گرم  $FeCl_3$ ) اج شده و سپس دوباره پولیش ریز شدند. پس از انجام مراحل بالا روند تغییر ساختار لایه‌ای و چگونگی تغییر شکل توأم لایه‌های مس و نقره و ضخامت لایه‌ها در مراحل گوناگون فرآیند بررسی شدند.

### محاسبه‌ی ضخامت لایه‌ها

ضخامت لایه‌ها به دو روش محاسبه گردید:

۱- با استفاده از اندازه‌گیری لایه‌ها در تصاویر SEM.

از آن جایی که لایه‌های نقره بطور دائم تحت تنش فشاری است، در مناطقی که تنش بیش از اندازه افزایش یابد، ممکن است برآمدگی‌هایی در فاز نقره بوجود آید. به‌گونه‌ای در نقاط کنار این برآمدگی‌ها ممکن است ترک‌هایی به وجود آید که دلیل پیدایش آنها تمرکز تنش بیش از حد و جدایش موضعی لایه‌ها می‌باشد. شکل ۶، نمونه‌ای از این حالت را نشان می‌دهد.

به‌منظور بررسی توزیع کرنش بین لایه‌های مس-نقره در هریک از مراحل ARB، کرنش مؤثر لایه‌ها با استفاده از رابطه‌ی (۱) محاسبه شد. شکل ۷، توزیع کرنش را بین لایه‌های مس و نقره در دو گروه Ag200 و Ag100 نشان می‌دهد.

همان‌گونه که مشاهده می‌شود، با افزایش درصد فاز نقره سهم کرنش لایه‌های نقره در مراحل اولیه‌ی ARB به‌گونه‌ی جزیی نسبت به لایه‌های مسی افزایش می‌یابد و این به‌طور عمده مربوط به نرمتر بودن رفتار ذاتی نقره نسبت به مس می‌باشد.

### نتیجه گیری

در بررسی تغییر شکل تؤام لایه‌ها، فاز سخت مس گلویی و فاز نرم نقره موج‌دار شد. موج‌دار شدن نقره زودتر از گلویی شدن مس آغاز گردید. در سطح مشترک لایه‌ها نیز وجود دو ناحیه با استحکام پیوند متفاوت در کنار یکدیگر سبب می‌شود که ناحیه‌ی با پیوند قوی تحت تنش کششی قرار گرفته، گلویی شود و دیگری تحت تنش فشاری قرار گیرد و خمره‌ای شود. گفتنی است که پیوستگی لایه‌ها در ساختار لایه‌ای تا مرحله‌ی نهم فرآیند ARB در هر دو گروه از نانو کامپوزیت‌های تولید شده حفظ شد. اما در گروه Ag200 نسبت به Ag100 ناپایداری پلاستیک بیشتری در لایه‌ها مشاهده گردید.

همان‌گونه که مشاهده می‌شود، در مراحل اول تا سوم هر دو گروه از کامپوزیت‌های تولید شده، اثربخشی از گلویی شدن در فاز مس مشاهده ننمی‌شود. اما موج‌هایی در فاز نقره دیده می‌شود و این طبیعی است به این دلیل که نقره هم نازک‌تر است و هم با توجه به جدول ۲ ضرایب کارسختی پایین‌تری نسبت به مس دارد. در مرحله‌ی چهارم فرآیند(شکل ۳)، در نقاطی گلویی شدن گسترده‌ی مس مشاهده می‌شود.

در ادامه‌ی مراحل، این تغییرات به‌گونه‌ی محسوس‌تری وجود دارد. شکل ۴، مراحل پنجم تا هشت‌تم فرآیند مربوط به گروه Ag200 را با بزرگ‌نمایی بیشتری نسبت به شکل ۳ نشان می‌دهد. در این شکل، گلویی شدن فاز سخت مس و موج‌دار شدن فاز نرم نقره به روشنی مشاهده می‌شود. ناحیه‌ی مشخص شده در شکل ۴ مربوط به منطقه‌ی اتصال نمونه‌های مرحله‌ی هفتم می‌باشد. در اثر عواملی مانند برس‌کاری نایکنواخت یا وجود آلودگی، استحکام پیوند در این ناحیه در مقیاس میکروسکوپی یکسان نمی‌باشد. قرار گرفتن دو ناحیه با استحکام پیوند متفاوت در کنار یکدیگر سبب می‌شود که ناحیه‌ی با پیوند قوی تحت تنش کششی قرار گرفته، گلویی شود و دیگری تحت تنش فشاری قرار گرفته و خمره‌ای شود.

چنانچه دیده می‌شود، در گروه Ag200 که ضخامت فاز نرم در آن بیشتر است ناپایداری پلاستیک در هر یک از مراحل ۴ تا ۶ محسوس‌تر است. لذا افزایش ضخامت فاز نرم، سبب تسریع گلویی شدن گردیده است. این موضوع با نظریه‌ی ارایه شده به‌وسیله‌ی لی و همکاران [۱] همانگی دارد. در ادامه‌ی فرآیند و با افزایش تعداد لایه‌ها، بی‌نظمی لایه‌ها افزایش یافته و در مناطقی از فاز نقره برآمدگی‌هایی مشاهده می‌شود. این موضوع در ساختار لایه‌ای مرحله‌ی نهم دیده می‌شود(شکل ۵). بی‌نظمی لایه‌ها ناشی از ویژگی‌های فرآیند ARB است. زیرا در هنگام نورد، اصطکاک زیادی بین لایه‌های در حال تماس و هم‌چنین بین غلطک‌های نورد و قطعه‌کار وجود دارد. اصطکاک زیاد سبب ایجاد کرنش برشی شدید در لایه‌ها شده که به همراه خود گسیختگی لایه‌ها و در نتیجه بی‌نظمی آنها را در پی دارد.

**References:**

1. J. M. Lee, B. R. Lee, S.B. Kang, "Control of layer continuity in metallic multilayers produced by deformation synthesis method", Materials Science and Engineering A, Vol. 406, pp. 95–101, 2005.
2. Shingu P.H., Ishihara K.N., Otsuki A., Daigo I., 2001. Nano-scaled multi-layered bulk.
3. Sagel A. Siebegdbr, H., H. J. Fecht, J. H. Perepezko, 1998. Synthesis of an amorphous Zr-Al-Ni-Cu alloy with large supercooled liquid region by cold-rolling of elemental foils, Acta Mater. 46: 4233-4241.
4. Ghalandari L., Moshksar M. M., "High-strength and High-conductive Cu/Ag multilayer produced by ARB". J. of all. and compd., 506 :172–178, 2010.
5. R.J. Hebert, J.H. Perepezko, "Deformation-induced synthesis and structural transformations of metallic multilayers", Scripta Materialia, Vol50, pp. 807–812, 2004.
6. I. W. Chen, E.J. Winn, M. Menon, "Application of deformation instability to microstructural control in multilayer ceramic composites", Materials Science and Engineering A , Vol. 317, pp. 226–235, 2001.
7. Yazar O., Ediz T. and Ozturk T, 2005. Control of macrostructure in deformation processing of metal/metal laminates. Acta Material, 53: 375-381.
8. Hwang Y.M., Hsu H.H. and Lee H.J., 1996. analysis of plastic instability during sandwich sheet rolling. Int. J. Math. Tools Manufact., 36: 47-62.
9. A. Mozaffari, H. Danesh Manesh, K. Janghorban, "Evaluation of mechanical properties and structure of multi-layered Al/Ni composites produced by accumulative roll bonding (ARB) process", Journal of Alloys and Compounds, Vol. 489, pp. 103-109, 2010.

## پیوست‌ها

جدول ۱- مشخصات ورق‌های اولیه‌ی مورد استفاده

ابعاد ورق‌ها	اندازه دانه (میکرومتر)	ترکیب شیمیایی (درصد وزنی)	جنس ورق
$150 \times 30 \times 1 \text{ mm}^3$	۱۷	$98/51\text{Cu}$ و $0/767\text{Zn}$ $0/139\text{Fe}$ و $0/472\text{Pb}$ $0/0541\text{Co}$ و $0/016\text{Sn}$ $0/013\text{Cd}$ و $0/0064\text{Mn}$ و $0/0046\text{Cr}$	مس خالص تجاری
$150 \times 30 \times 0/1 \text{ mm}^3$ $150 \times 30 \times 0/2 \text{ mm}^3$	۴/۶۳	$99/9\text{Ag}$	نقره خالص تجاری

جدول ۲- ویژگی‌های فلزات مس و نقره‌ی به کار رفته در پژوهش

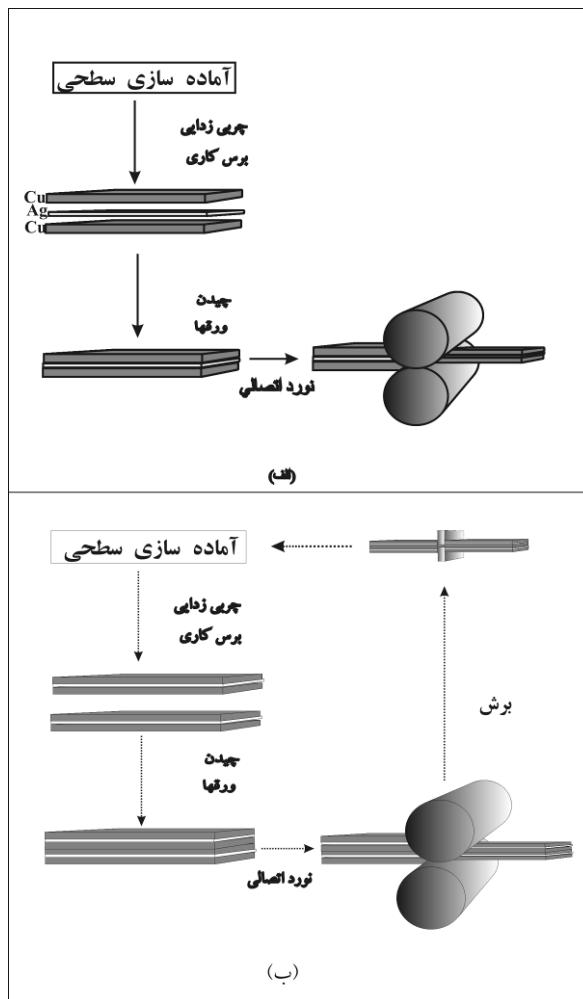
فلز	افزایش طول (%)	سختی (HV)	استحکام کششی (MPa)
مس	۵۰/۴۲	۹۶/۹	۲۵۱/۹
نقره	۸۳/۶	۶۰	۲۱۳

جدول ۳- تغییرات ضخامت لایه‌های مس و نقره بدست آمده از محاسبه با استفاده از SEM

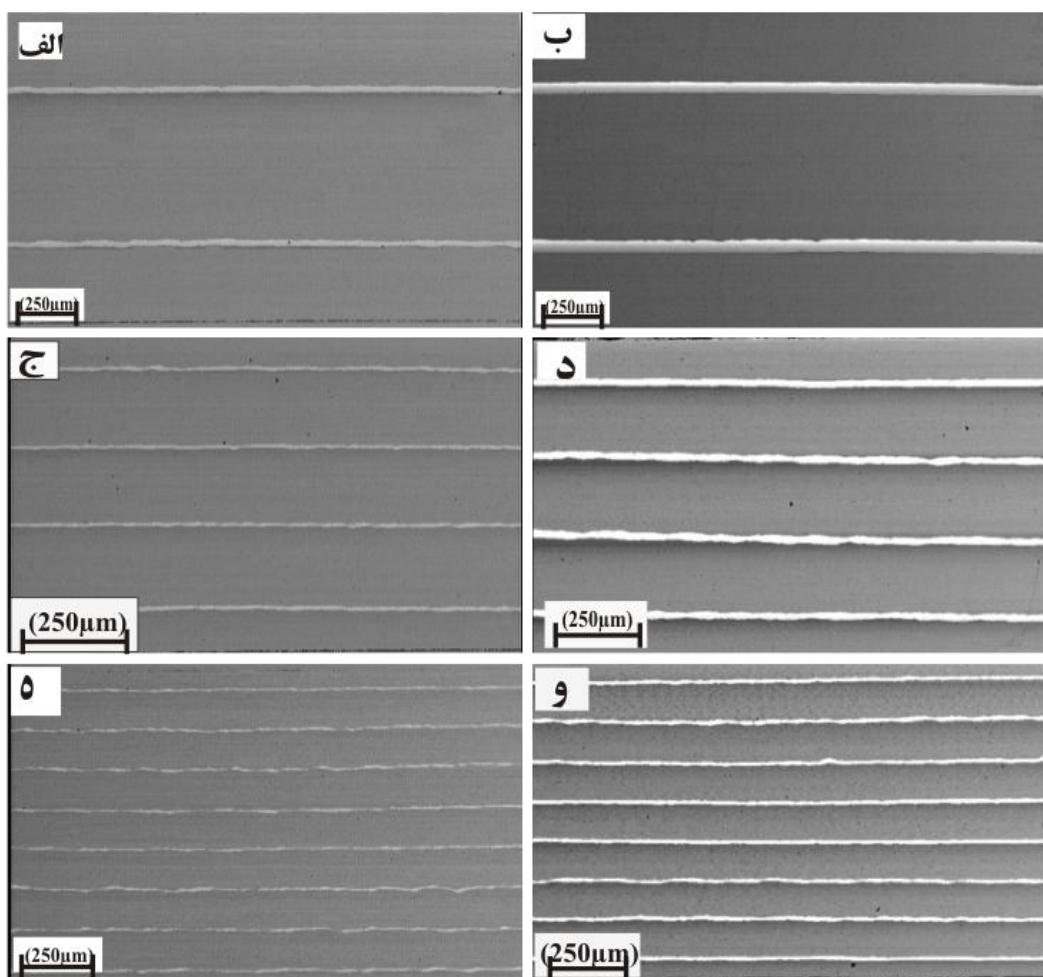
مراحل ARB	ضخامت نهایی محاسبه شده (میکرومتر)				ضخامت نهایی اندازه‌گیری شده (میکرومتر)			
	مس (Ag100)	نقره (Ag100)	مس (Ag200)	نقره (Ag200)	مس (Ag100)	نقره (Ag100)	مس (Ag200)	نقره (Ag200)
۱	۲۱۷/۳۵	۲۱/۷۳	۲۳۰/۶۹۷	۴۶/۱۵	۲۵۳	۱۸/۳	۲۸۴	۴۷/۱۲
۲	۱۰۸/۶۸	۱۰/۹	۱۱۵/۳۵	۲۳/۰۷	۱۳۱	۹/۰۱	۱۱۳	۱۹/۹
۳	۵۴/۳۳	۵/۴	۵۷/۶۸	۱۱/۰۴	۶۹/۲۲	۴/۴۱	۵۷/۵	۱۰/۹
۴	۲۷/۱۶	۲/۷۱	۲۸/۸۴	۵/۷۷	۲۸/۷	۳/۶۲	۳۰/۴	۴/۸۸
۵	۱۳/۵۸	۱/۳۶	۱۴/۴۲	۲/۸۸	۲۱/۶	۲/۳۶	۱۶/۸	۳/۳۴
۶	۶/۸	۰/۶۸	۷/۲	۱/۴۴	۸/۰۷	۰/۸۴۱	۵/۳۷	۲/۵
۷	۳/۴	۰/۳۴	۳/۶	۰/۷۲	۳/۹۵	۰/۵۳۴	۳/۵	۱/۲۳
۸	۱/۷	۰/۱۷	۱/۸	۰/۳۶	۱/۹۶	۰/۳۰۸	۲/۱۲	۰/۵۳
۹	۰/۸۵	۰/۰۸	۰/۹	۰/۱۸	۰/۶۵	۰/۱۷	۰/۷	۰/۲۴۹

جدول ۴- تغییر تعداد لایه‌ها حین مراحل گوناگون ARB

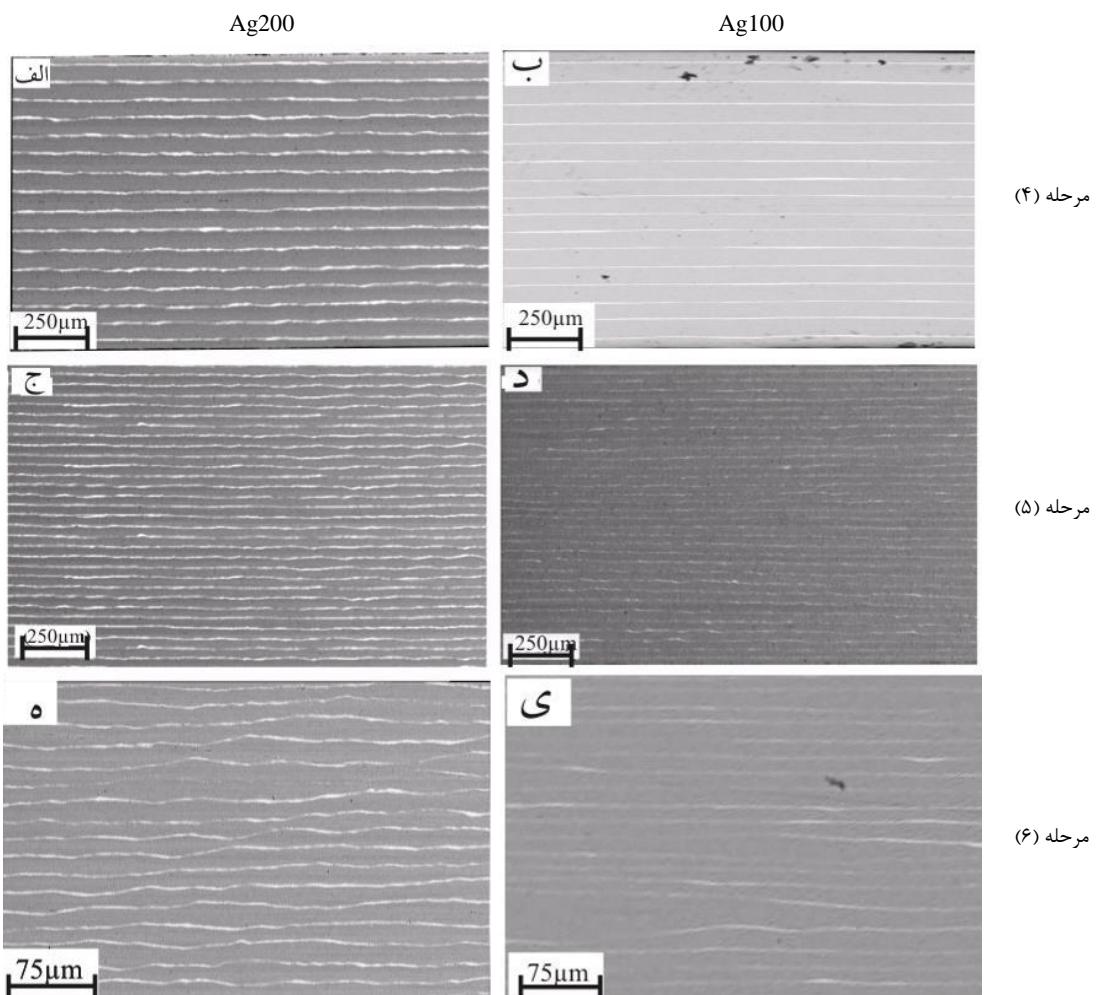
۹	۸	۷	۶	۵	۴	۳	۲	۱	۰	(n)	ARB	مراحل
۱۰۲۴	۵۱۲	۲۵۶	۱۲۸	۶۴	۳۲	۱۶	۸	۴	۲	$(2 \times 2^n)$	تعداد لایه‌های مس	
۵۱۲	۲۵۶	۱۲۸	۶۴	۳۲	۱۶	۸	۴	۲	۱	$(2^n)$	تعداد لایه‌های نقره	
۱۵۳۶	۷۶۸	۳۸۴	۱۹۲	۹۶	۴۸	۲۴	۱۲	۶	۳	$(3 \times 2^n)$	تعداد کل لایه‌ها	



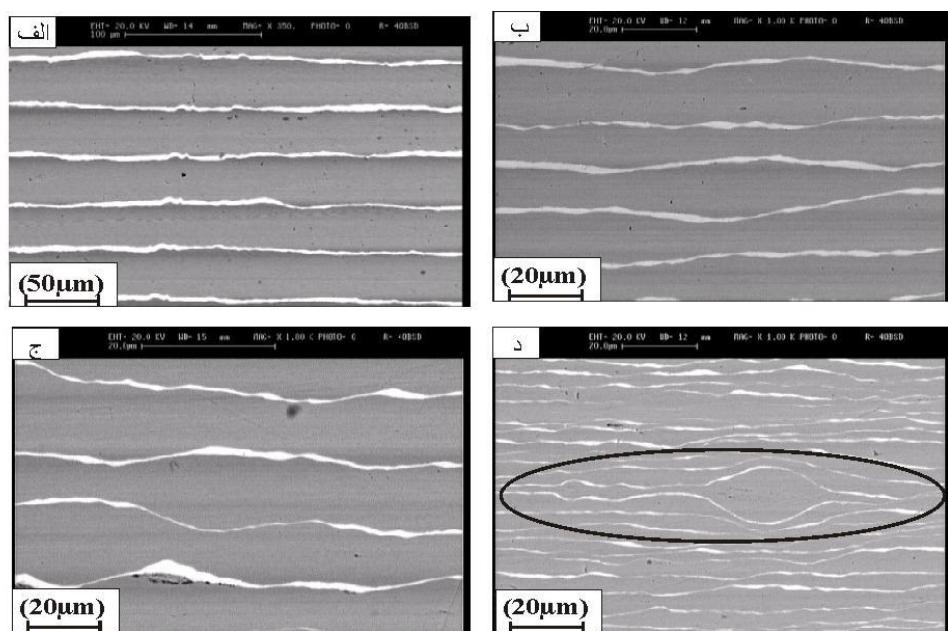
شکل ۱- مراحل تهیی نانو کامپوزیت مس- نقره (الف) تهیی ساندویچ (ب) فرآیند ARB



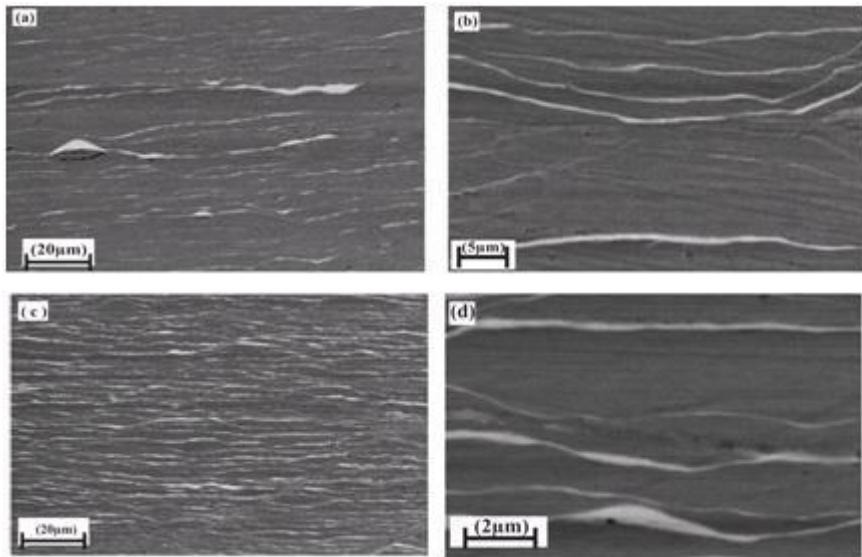
شکل ۲- مراحل نخست تا سوم فرآیند ARB مربوط به هر دو گروه نمونه‌های تولید شده



شکل ۳- مراحل چهارم تا ششم فرآیند ARB مربوط به هر دو گروه نمونه‌های تولید شده



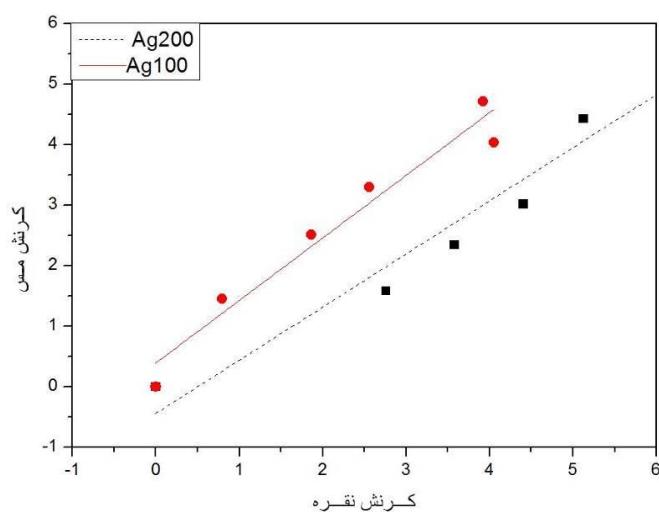
شکل ۴- تصاویر SEM مراحل (الف) پنجم، ب) ششم، ج) هفتم، د) هشتم گروه Ag200



شکل ۵- تصاویر میکروسکوپ SEM در مرحله‌ی نهم: a,b گروه Ag100 و c,d گروه Ag200.



شکل ۶- تصویر SEM از مرحله‌ی هشتم فرآیند ARB از یکی از برآمدگی‌های موجود در فاز نقره.



شکل ۷- منحنی توزیع بین لایه‌های مس و نقره.