

Fe-6.5Si 合金热轧板显微组织的 TEM 观察 *

王 聪^{1,2)} 林栋梁¹⁾ 单爱党¹⁾ 陈家光²⁾ 曹涵清²⁾ 宋洪伟^{1,2)}

1) 上海交通大学高温合金和高温测试教育部重点实验室, 上海 200030

2) 宝钢研究院分析测试研究中心, 上海 201900

摘 要 采用透射电镜 (TEM) 研究了高温轧制、中温轧制以及轧制后退火态 Fe-6.5Si 合金的有序化和微观组织, 探讨了该合金有序相和微观组织对常温脆性的影响: 结果表明, 轧制及退火工艺的不同虽然可以明显改变 Fe-6.5Si 合金的微观组织及其有序相的尺寸和形态, 但是各处理态下均未能完全抑制有序相的形成, 同时中温轧制时, 该合金中存在严重的应力集中。

关键词 Fe-6.5Si 合金, 有序相, TEM

中图法分类号 TG113

文献标识码 A

文章编号 0412-1961(2002)05-0517-04

TEM OBSERVATION OF THE MICROSTRUCTURE OF HOT-ROLLED Fe-6.5Si ALLOY

WANG Cong^{1,2)}, LIN Dongliang¹⁾, SHAN Aidang¹⁾, CHEN Jiaguang²⁾, CHAO Hangqing²⁾,
SONG Hongwei^{1,2)}

1) Key Laboratory of the Ministry Education for High Temperature Materials and Testing, Shanghai Jiaotong University, Shanghai 200030

2) Testing Centre, Baosteel Institute, Shanghai 201900

Correspondent: LIN Dongliang, professor, Tel: (021)62932544, Fax: (021)26649329,

E-mail: dlin@mail.situ.edu.cn

Manuscript received 2001-08-20, in revised form 2001-11-20

ABSTRACT TEM was applied to analyze the ordering and microstructure of Fe-6.5Si alloys treated by high temperature rolling, mid-temperature rolling, and annealing after rolling respectively. The effect of ordered phases and microstructure on the brittleness of the alloy at room temperature was discussed. The results showed that although the microstructure, as well as the size and morphology of the ordered phases in Fe-6.5Si alloys varied with different kinds of treatment, the ordered phases persisted in each alloy, and high stress concentration existed in the alloy after mid-temperature rolling.
KEY WORDS Fe-6.5Si alloy, ordered phase, TEM

Fe-Si 合金因其优越的软磁性能而得到广泛应用。Fe-Si 合金的磁性能随着 Si 含量的增加而进一步改善, 当 Si 含量 (质量分数) 达到 6.5% 时, Fe-Si 合金的软磁性能最佳, 其磁致伸缩接近于 0^[1]; 但是常用的 Fe-Si 合金中的 Si 含量低于 4% (质量分数, 下同), 因为随着 Si 含量的增加 Fe-Si 合金将出现一系列的有序化, 从而导致复杂的显微组织, 并损害其力学性能^[1,2], 难以进行必要的形变加工, 因此高 Si 含量的 Fe-Si 合金的有序化问题引起了研究人员的关注^[1-4]。

Fe-6.5Si 合金包括两种有序转变^[1], 即从无序固溶体向 B2 型有序相的转变和从 B2 型有序相向 D0₃ 型有序相的转变。B2 型有序相为 CsCl 型的有序结构, D0₃

型有序相具有 fcc 的对称性。文献 [3] 将 Fe-6.5Si 合金快凝薄带的脆性归因于这种结构的有序化, 并研究了 Fe-Si 合金快凝薄带的塑性与其有序结构相的演变的关系。认为 Si 含量高于 4% 的 Fe-Si 合金快凝薄带的塑性的改善是因为抑制了 B2 相的充分形成, 从而使韧脆转变向较高 Si 含量的 Fe-Si 合金偏移; 同时 D0₃ 型有序相的形成也将进一步损害 Fe-Si 合金的塑性。研究还表明 Fe-6.5Si 合金中的 B2 型有序相不能通过快速冷却加以完全抑制, 不过其 D0₃ 型有序相的形成则可在快速冷却过程中得到完全抑制^[1-3]。但是对于以常规冶炼、轧制和热处理加工的 Fe-6.5Si 合金, 其有序相演变的研究则未见报导。

本文用透射电镜研究了轧制态及热处理态 Fe-6.5Si 合金的显微组织, 以揭示轧制和热处理对 Fe-6.5Si 合金组织, 尤其是有序相的形成的影响, 以便进一步研究 Fe-6.5Si 合金常温脆性的本质, 为改善 Fe-6.5Si 合金的加工性能提供思路。

* 宝钢研究院与上海交通大学合作项目

收到初稿日期: 2001-08-20, 收到修改稿日期: 2001-11-20

作者简介: 王 聪, 男, 1967 年生, 工程师, 博士生

1 材料制备及实验方法

Fe-6.5Si 合金采用氩气气氛下的电弧炉或氮气气氛下的真空感应炉熔炼; 电弧炉熔炼采用纯 Fe 和半导体纯 Si(纯度 >99.99%), 每炉铸锭约 60 g, 冶炼过程中, 合金重熔三次以改善其成分的均匀性; 真空感应炉熔炼采用纯 Fe 和 Si. Fe 成分(质量分数, %, 下同)为: C 0.0065, Si 0.016, Mn 0.13, P 0.006, S 0.0038; Si 的成分为: Si 99.56, Al 0.14, Ca 0.017, Fe 0.28. 每炉铸锭约 4.5 kg, 铸锭浇铸成板状以便于轧制. 表 1 列出了样品的加工工艺. 铸态样品经过了 1000 °C 保温 3 h 均匀化处理. 高温热轧时采用不锈钢包轧(pack-rolling).

透射电镜样品的制备先采用机械研磨方法减薄至约 60 μm 厚, 再用约 -18 °C 的 5% 高氯酸乙醇溶液进行双喷电解而成. 透射电镜观察在 JEM-200CX 上完成, 电压为 200 kV.

2 实验结果

2.1 有序态组织

用选区衍射方法分析了轧制态、热处理态样品的有序化情况, 其 [011] 晶带轴的电子衍射谱及其标定结果如图 1 所示. 不同状态的样品中均可观察到 $D0_3$ 有序相的超点阵斑点, 但是 700 °C 轧制态样品中, 有序相的衍射斑点很弱, 在很多区域无法观察到超点阵斑点; 各处理态下 $1\bar{1}1_{D0_3}$ 超点阵斑点的强度又比 200_{D0_3} 更弱.

本文观察了不同样品在 $\vec{g} = [200]_{D0_3}^*$ 超点阵衍射双束条件下中心暗场像. 该衍射斑点与 B2 相的 100_{B2} 超点阵斑点重合. X 射线衍射数据和前人的实验结果^[1]均表明, 该双束条件下的中心暗场像可观察到 B2 相反相畴, 如图 2 所示. 由图可见, 不同处理条件下, B2 相的尺寸、形态明显不同. 轧制退火态样品中的 B2 相反畴连

表 1 Fe-6.5Si 合金的轧制及热处理工艺
Table 1 Rolling and heat treatment process of Fe-6.5Si alloy

Smelting method	High temperature rolling	Mid-temperature rolling	Heat-treatment after rolling
Arc furnace	Start rolling at 1100 °C to about 3 mm thickness	Start rolling at 700 °C to 1 mm thickness	750 °C, 140 min, air cooling
Vacuum electromagnetic induction furnace	Start rolling at 1000 °C to about 2 mm thickness	/	800 °C, 300 min, furnace cooling

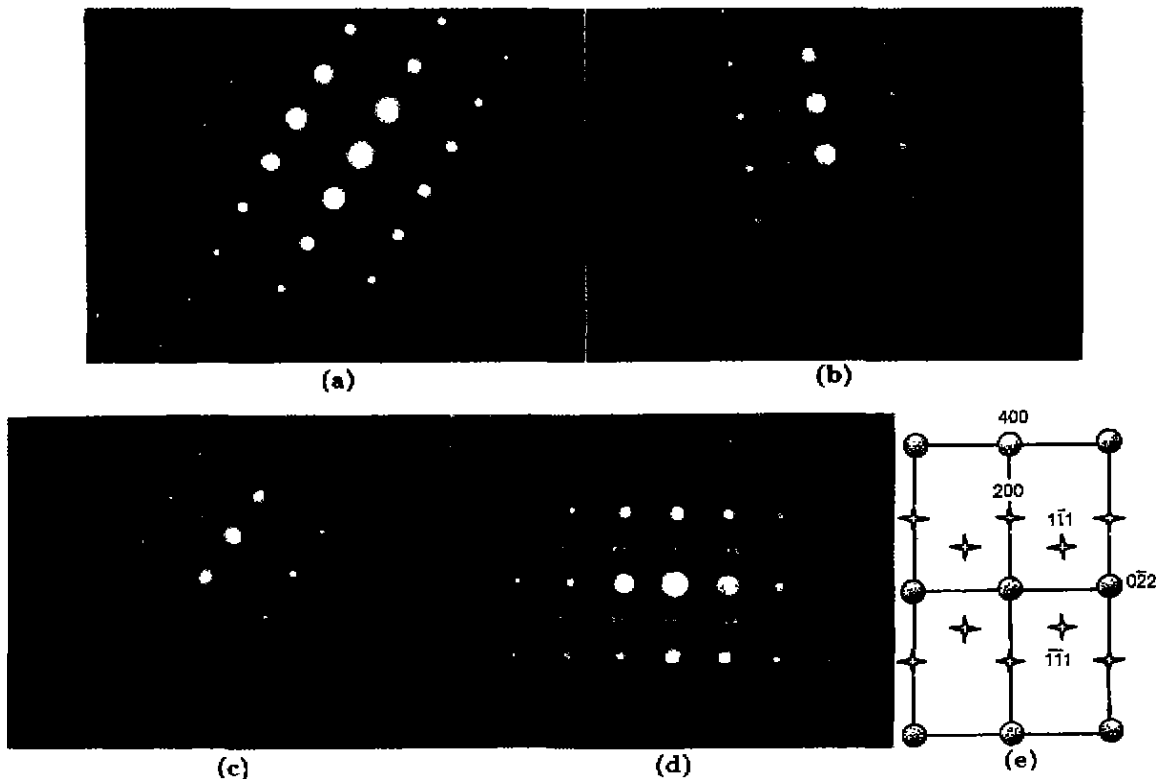


图 1 各处理态样品的 [011] 电子衍射谱及其标定结果

Fig.1 [011] zone diffraction patterns of Fe-6.5Si samples and the indexing result, showing occurrence of ordering for each treated sample (a) 700 °C rolled sample (b) 1000 °C rolled sample (c) 700 °C rolled+annealed sample (d) 1000 °C rolled+annealed sample (e) indexing of [011] diffraction pattern for $D0_3$ phase, where the stars are the superlattice spots

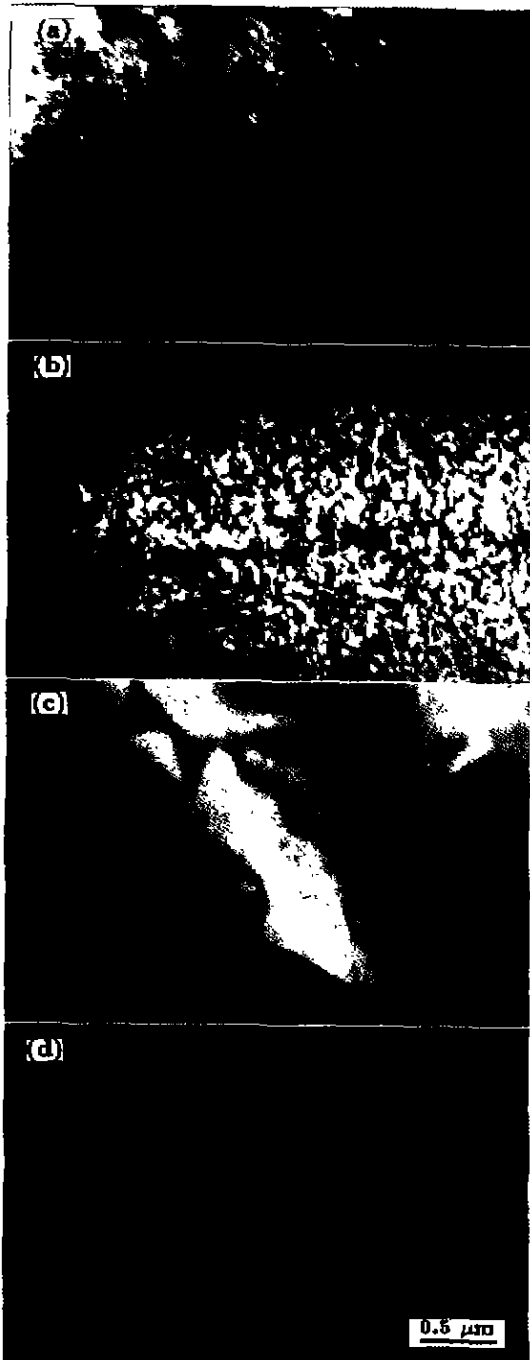


图 2 各处理态样品在 $\vec{g} = [100]_{B_2}^*$ 双束衍射条件下的反相畴 TEM 像

Fig.2 TEM images of anti-phase domain of B2 phase under $\vec{g} = [100]_{B_2}^*$ two-beam condition in different samples treated

(a) 700 °C rolled sample (b) 1000 °C rolled sample (c) 700 °C rolled+annealed sample (d) 1000 °C rolled+annealed sample

续且尺寸较大 (μm 数量级). 1000 °C 轧制态样品中的 B2 反相畴约为 0.1 μm 数量级 (图 2b); 而在 700 °C 轧制态样品中的 B2 相反相畴则更为细小, 只有 10 nm 数量级

且呈分散的点状分布 (图 2a). 由于 $D0_3$ 相的超点阵斑点太弱, 无法在 $1\bar{1}1_{D0_3}$ 衍射的双束条件下得到衬度良好的 $D0_3$ 反相畴形貌. 因此本文未列出其实验结果.

2.2 位错组态的变化

700 °C 开始轧制的样品的终轧温度较低 (约 500 °C), 存在严重的位错缠结以及应力集中现象 (图 3a). 1000 °C 开始轧制的样品中, 因终止轧制的温度较高, 无应力集中和位错缠结的现象. 但是位错密度仍然较高. 700 °C 轧制态样品经 750 °C 退火 140 min 后, 消除了位错缠结现象, 且出现了因再结晶形成的小角度晶界 (图 3b).

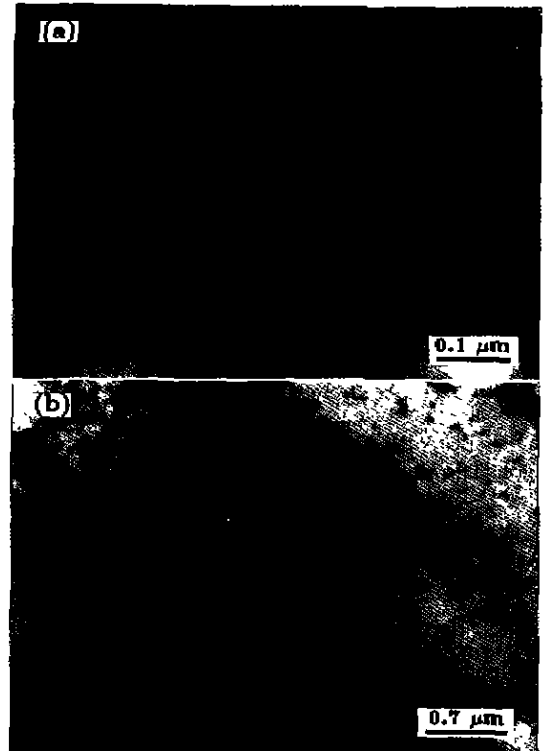


图 3 各处理态的位错组态

Fig.3 Dislocations in different samples

(a) 700 °C rolled sample (b) 700 °C rolled+annealed sample, showing recrystallization induced small angle grain boundaries

3 讨论

相图表明 (见图 4), Fe-6.5Si 合金的 $A_2(\alpha) \rightarrow B_2(\alpha_2)$ 相变是在约 800 °C 逐步进行的, 当低于 650 °C 时为 $B_2 + D0_3(\alpha_2 + \alpha_1)$ 相, 随着温度的降低而成为 $D0_3(\alpha_1)$ 单相结构. 前人的研究结果表明^[1-3], Fe-6.5Si 合金快凝薄带中不存在 $D0_3$ 相. 但是 B2 相的形成则不能通过快速凝固来抑制.

本文的研究结果表明, 轧制条件对 B2 相的反相畴有很大影响. 在高温无序区轧制的 Fe-6.5Si 合金, 在轧制后的空冷过程中形成连续的、尺寸为 0.1 μm 数量级的 B2 相反相畴 (图 1b, 图 2b), 明显大于从 A2 无序态淬冷的

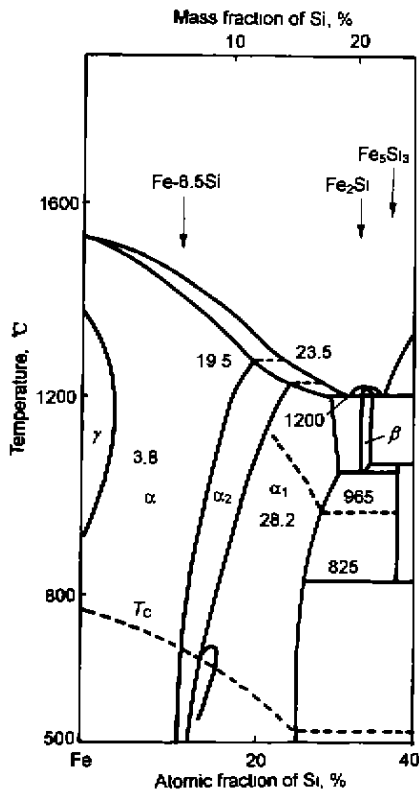


图4 Fe-Si 二元合金相图^[1]

Fig.4 The experimental phase diagram of Fe-Si system^[1]

快凝薄带样品中的 B2 反相畴尺寸 (约 45 nm^[1])。该高温轧制态样品再经 700 °C 以下的温度轧制后, 其 B2 有序相受到破坏, 样品中只观察到了 10 nm 数量级的、离散分布的 B2 反相畴 (图 1a、图 2a)。Raviprasad 等^[1]对 Fe-6.5Si 合金快凝薄带样品在 650 °C 保温 24 h 的研究结果表明, 反相畴尺寸未变化; 因此, 作者认为, 700 °C 开轧样品中的 B2 反相畴是中温轧制过程中未能完全破坏而残留的。

本文对 700 °C 轧制态样品进行了 750 °C 退火, 相图表明该温度下 Fe-6.5Si 合金为 B2 型有序相。透射电镜样品的观察 (图 1c、图 2c) 表明, 在该温度下退火 140 min 后, B2 型有序相明显长大, 达到 μm 数量级, 这与快凝薄带的研究结果是一致的^[1-4]。1000 °C 轧制态样品经过 800 °C 300 min 的退火、炉冷的处理后, 试样中观察到的 B2 相反相畴尺寸 (图 1d、图 2d) 与 700 °C 轧制再经 750 °C 退火的样品中的 B2 相反相畴尺寸相当, 可见 Fe-6.5Si 合金中极易发生 B2 型有序化。人们曾用快速凝固的方法制备了塑性极佳的 Fe-6.5Si 合金薄带, 但是其后的旨在提高软磁性能的热处理导致了塑性的严重受损, Watanabe 等人^[6]将其归因于热处理后高能

量晶界的数量的增加, 进而导致高能量晶界的链接, 从而降低了材料的塑性。Viala 等人^[3]则从有序相形成的角度探讨了 Fe-6.5Si 合金薄带塑性的本质, 结果表明塑性的下降与热处理过程中 B2 有序相的长大及 DO₃ 有序相的形成有关; 并且观察了 Fe-6.5Si 合金薄带的断口形貌, 表明快冷薄带断口呈沿晶状, 而热处理后的 Fe-6.5Si 合金薄带断口则呈解理断口, 这是由于热处理后形成有序结构, 并导致了超点阵位错的形成^[5]和相应的晶内应力集中, 从而导致塑性的下降。可见, Fe-6.5Si 合金中高能晶界固然影响其塑性, 但在常温下, 起决定作用的还是有序结构的形成与否。本文透射电镜的结果表明, 在中温轧制过程中, B2 有序相和 DO₃ 有序相受到了明显的抑制, 但是由于该试样在较低温度终轧从而导致位错缠结和应力集中, 高温轧制和退火可以避免位错缠结和应力集中, 但是却无可避免地加剧了有序相的形成。

4 结论

轧制条件对 Fe-6.5Si 合金的 B2 相反相畴有很大影响。高温无序区轧制样品在其后的空冷过程中形成连续的、0.1 μm 数量级的 B2 相反相畴。700 °C 以下的温度轧制将破坏其 B2 有序相, 成为 10 nm 数量级的、离散分布的 B2 相反相畴。

高温轧制退火态样品和中温轧制退火态样品中, B2 型有序相均明显长大, 达到微米数量级, 可见 Fe-6.5Si 合金中极易发生 B2 型有序化。

各处理态样品均存在 DO₃ 有序相, 只是其 [011] 晶带的衍射谱中, 1 $\bar{1}$ 1_{DO3} 超点阵斑点明显弱于 200_{DO3} 和 100_{B2} 的超点阵斑点。在 700 °C 轧制态样品中, 1 $\bar{1}$ 1_{DO3} 超点阵斑点很难分辨, 可见, Fe-6.5Si 合金的 DO₃ 相因其有序程度较高而较易受到抑制。750 °C 退火处理虽然可消除中温轧制产生的应力集中和位错缠结, 却导致了明显的有序化。可见, 常规轧制和热处理方法存在有序相的形成和位错缠结之间的矛盾, 如何解决这一问题将是解决 Fe-6.5Si 合金常温脆性的一条途径。

参考文献

- [1] Raviprasad K, Chattopadhyay K. *Acta Metall Mater*, 1993; 41: 609
- [2] Raviprasad K, Chattopadhyay K. *Mater Sci Eng*, 1988; 98: 281
- [3] Viala B, Degauque J, Fagot M, Baricco M, Ferrara E, Fiorillo F. *Mater Sci Eng*, 1996; A212: 62
- [4] Monstadt H, Hornbogen E, Rohde J. *J Magn Magn Mater*, 1992; 112: 245
- [5] Raviprasad K, Aoki K, Chattopadhyay K. *Mater Sci Eng*, 1993; A172: 125
- [6] Watanabe T. *Mater Sci Forum*, 1993; 126-128: 295