

# 铝粉烧结材料等通道转角挤压组织性能演变\*

李萍 薛克敏 周明智

(合肥工业大学材料科学与工程学院 合肥 230009)

**摘要** 对不同路径和不同道次下铝粉烧结材料的等通道转角挤压工艺进行了试验研究,用光学显微镜、扫描电子显微镜和透射电镜分析了粉末烧结材料在不同工艺条件下的晶粒细化规律和致密行为,并测量了挤压后试样的密度和硬度等性能。结果表明,等通道转角挤压工艺对粉末烧结材料具有很强的致密效果和细化效果,可显著提高其力学性能。在单道次变形中,大剪切塑性变形和高静水压力状态是粉末烧结材料获得良好的致密效果的关键;在多道次变形中,变形量的累积和不同的剪切特征不断地改变内部的孔隙形状,使内部基体材料进一步致密。而晶粒的细化效果则取决于变形中的静水压力、变形量和剪切特征等关键因素。

**关键词** 材料合成与加工工艺,粉末烧结材料,等通道转角挤压,组织性能,致密和细化晶粒

**分类号** TG376

**文章编号** 1005-3093(2009)06-0577-05

## Microstructure and properties evolution and mechanism analysis of sintered aluminum powder during equal channel angular expression

LI Ping\*\* XUE Kemin ZHOU Mingzhi

(School of Materials Science and Engineering, Hefei University of Technology, Hefei 230009)

\* Supported by National Nature Science Foundation of China No.50875072.

Manuscript received January 19, 2009; in revised form August 21, 2009.

\*\*To whom correspondence should be addressed, Tel:(0551)2901368, E-mail:cisi1314@sohu.com

**ABSTRACT** Experiments of ECAE were conducted for pure aluminum powder sintered material under different routes and passes. The grain refinement regulation and densification behavior of powder material during ECAE were deeply investigated under different conditions with optical telescope, scan electronic telescope and transmission electronic telescope. The density and hardness of the extruded samples were measured. The experiment results show that ECAE has powerful densification and refinement effects and the mechanical properties of powder materials are improved. In single ECAE, large shear plastic deformation and high hydrostatic stress state are the key factors to obtain high density material. In multiple passes ECAE, the inner pore shape is changed and the powder material is compacted further by the accumulated deformation and different shear deformation characters. The grain refinement effect depends on some key factors such as hydrostatic stress, strain and shear deformation character etc.

**KEY WORDS** synthesizing and processing technics, sintered powder material, equal channel angular extrusion, microstructure and properties, densification and grain refinement

当晶粒尺寸细化至亚微米级别时,金属材料将表现出异乎寻常的物理和力学性能。因此,寻求有效细化晶粒的方法成为当前一个重要的热点研究领域<sup>[1,2]</sup>。大塑性变形法(Severe Plastic Deformation, SPD)是一种制备块体超细晶材料的新型塑性加工方法,而等通道转角挤压法(Equal Channel Angular

Extrusion, ECAE)是大塑性变形法的典型代表。该工艺将圆形或方形截面的试样压入横截面形状完全相同、并以一定角度相交的模具通道中。在通过通道交角处时,材料获得一定大小和均匀的近似纯剪切塑性变形;在材料可加工性能允许的条件下,可对其重复变形以累积出很大的塑性变形,从而使晶粒显著细化<sup>[3]</sup>。

当粉末材料的密度达到一定程度时,其相关的力学性能会有质的突变。对于传统的粉末冶金工艺及塑性变形工艺,很难达到这一临界值<sup>[4,5]</sup>。ECAE可使粉末材料的基体组织发生均匀的大剪切塑性变形,

\* 国家自然科学基金 50875072 资助项目。

2009 年 1 月 19 日收到初稿;2009 年 8 月 21 日收到修改稿。

本文联系人:李萍,教授

利用变形过程中产生的高静水压力使材料内部孔隙有效地收缩,具有优良的细化效果和致密效果.因此ECAE工艺对采用粉末材料合成和制备性能优越的超细晶材料具有重要的应用前景<sup>[6,7]</sup>.但是粉末材料的塑性加工能力较弱,其塑性变形、致密和晶粒细化机理尤为复杂,目前尚缺乏对于粉末材料ECAE工艺过程中变形机理、致密行为和晶粒细化规律的研究<sup>[8]</sup>.为此,本文对铝粉烧结材料在不同的工艺条件下进行ECAE试验,结合组织性能的测试分析,以研究不同工艺条件下试样组织性能的演化情况.

## 1 实验方法

实验用纯铝粉末的主要成分(质量分数,%)为:Fe(<0.6),Cu(<0.05),Si(<0.3),其余为Al.用激光粒度测试仪测定粉末的粒度,测算出其初始颗粒的平均尺寸为46.85 μm.将纯铝粉末与适量的硬脂酸锌粘结剂混合,压制并冷等静压处理,然后在400℃真空条件下烧结4h.将烧结后的毛坯线切割成尺寸为10 mm×10 mm×50 mm的方形试样.

使用等通道转角挤压法在不同的工艺条件下对铝粉烧结材料进行ECAE试验.为获得理想的细化效果、延长模具使用寿命和提高挤压效率<sup>[9]</sup>,使用内交角为90°的分块式二层预应力组合凹模结构,并以半径为0.5 mm的圆弧进行过渡;凹模外角圆弧

半径为5 mm(外接弧角为 $\Psi \approx 37^\circ$ ),通道的直径为10 mm;凸模采用台阶式过渡.试验在专用小型多向模锻试验设备上,将MoS<sub>2</sub>作为润滑剂.以约1 mm/s的凸模速度,采用不同路径对铝粉烧结材料进行2道次挤压.为提高材料的可加工性,挤压温度分别为150℃、200℃.

对挤压后的试样分别用4XB-TV型金相显微镜、Quanta 600型扫描电子显微镜和H800型透射电子显微镜进行显微组织分析,使用图像分析软件测量晶粒尺寸,并进行相关的力学性能测试(采用排水法对挤压前和挤压后试样的密度进行测量).用MH-3型显微维氏硬度计测量试样的显微硬度.每个测量位置测量3次,取其平均值.

## 2 结果与讨论

### 2.1 显微组织性能分析

2.1.1 单道次变形对组织性能的影响 试样的初始显微组织和在150℃挤压一道次后流动面上不同变形区的显微组织如图1所示.可以看出,挤压前试样内部存在大量的球状的微孔隙,基体组织呈近似等轴状,基体组织和孔隙的大小及分布都不均匀.在挤压的开始阶段,试样没有进入转角处前,由于塑性变形量较小,基体晶粒和孔隙的形态改变较小,大小和

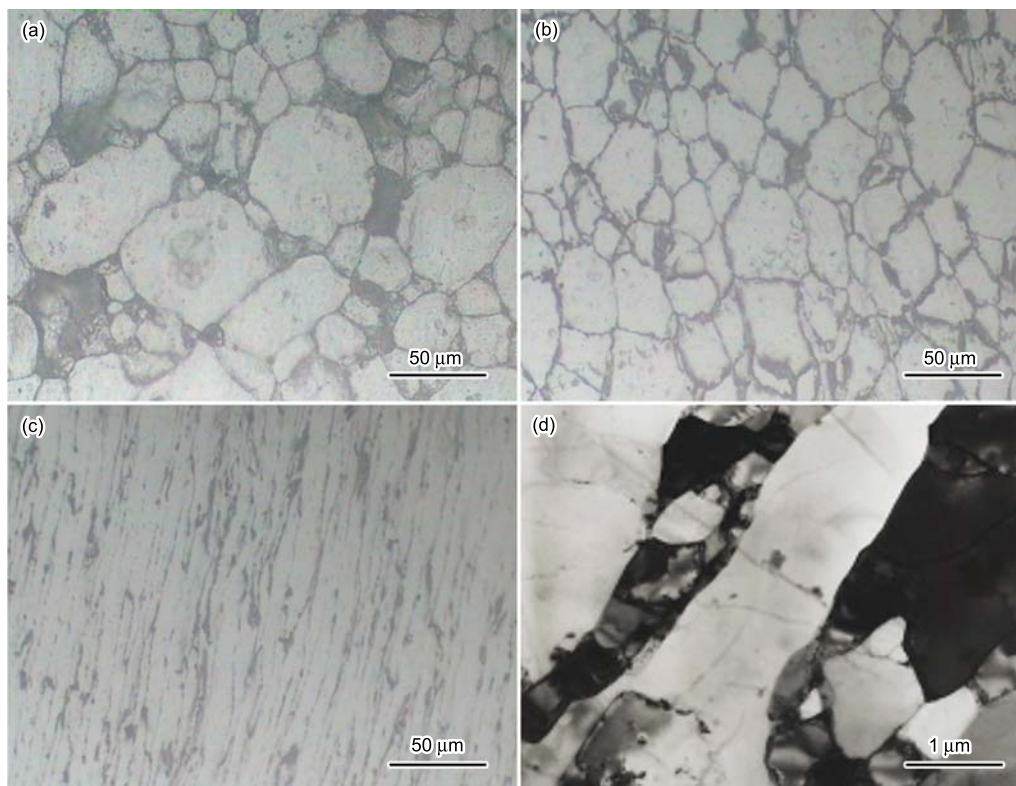


图1 等通道转角挤压前后试样的显微组织

Fig.1 Microstructures of different deformation zone in sample before and after ECAE (a) Initial state (b) before ECAE (c) after ECAE (d) TEM images of sample

分布仍不均匀. 但是由于受到静水压力的作用, 孔隙的尺寸有一定程度的减少. 材料通过转角区域后, 即经历一道次挤压后, 由于受到强烈的剪切变形作用, 试样的组织形态发生了明显的改变, 具有明显的剪切变形特征: 原先粗大的等轴组织沿剪切方向被拉长为条带状组织, 试样主要变形区的大量孔隙闭合, 残余孔隙也沿剪切方向被拉长, 晶粒和孔隙的大小及分布趋于均匀. 进一步的透射电镜分析表明, 在一道次挤压后, 材料的微观结构中出现变形带, 在条带状晶粒之间出现少量被剪切破碎的小角度晶界的、尺寸小于  $1 \mu\text{m}$  的亚晶, 晶粒大小形状不均匀.

密度测量结果表明, ECAE 工艺对铝粉烧结材料具有强烈的致密效果: 经过一道次挤压后, 试样的相对密度由挤压前的 0.88 提高到 0.97. 显微硬度测试结果表明, 经过一道次挤压后, 试样主要变形区的显微硬度由变形前的  $24.5 \text{ kg/mm}^2$  上升为  $46.6 \text{ kg/mm}^2$ , 比工业纯铝的显微硬度 ( $29.0 \text{ kg/mm}^2$ ) 有了很大提高. 由此可见, ECAE 工艺对铝粉烧结材料的组织性能具有显著的改善效果.

**2.1.2 挤压路径对组织性能的影响** 为获得理想的晶粒细化效果, 对试样进行了多道次挤压. 根据相邻挤压道次间试样相对于模具的轴向旋转方向和角度的区别, ECAE 变形方式主要有四种: 试样每道次挤压的方位不改变为路径 A; 试样每道次挤压后绕轴向顺时针旋转  $90^\circ$  和逆时针旋转  $90^\circ$  交替进行为路径  $B_A$ ; 试样每道次挤压后绕轴向依次顺时针旋转  $90^\circ$  为路径  $B_C$ ; 试样每道次挤压后绕轴向依次旋转  $180^\circ$  为路径 C<sup>[10,11]</sup>.

挤压路径因剪切变形方式的不同而对最终获得的挤压试样的组织性能产生一定的影响. 图 2 所示为  $150^\circ\text{C}$  下分别采用路径 A、B 和 C 对铝粉烧结材料进行第二道次挤压后试样流动面微观结构的 SEM 照片. 可以看出, 对于路径 A, 随着挤压道次的增加, 基体组织沿剪切方向被进一步拉长, 沿短轴方向被明显细化, 而且更加细小均匀; 同时, 内部除了少量微孔隙, 已基本闭合. 路径 B 的显微组织与一道次挤压的类似, 只是致密效果稍弱于路径 A. 而采用路径 C 进行两道次挤压后, 晶粒形状恢复为等轴状, 且内部仍残存少量的孔隙, 细化和致密效果不如路径 A 和 B 明显.

对  $200^\circ\text{C}$  时采用路径 C 进行二道次挤压后试样主要变形区流动面上的显微组织的透射电镜分析 (图 3) 表明, 随着挤压次数的增加, 晶粒中的亚结构发展更为完善, 亚晶沿拉长方向上继续破碎, 晶粒进一步细化, 显微组织的晶界仍主要是由小角度晶界组成. 在局部晶粒内部可看到尺寸较小 (约为  $0.5\text{--}0.9 \mu\text{m}$ )

的较完整的等轴亚晶. 但是, 仍存在一些尺寸相对较大的亚晶 ( $>1.5 \mu\text{m}$ ). 此时, 虽然晶粒大小和形状仍不很均匀, 但是等轴细晶粒所占的比例进一步提高, 基体晶粒内部已产生大量接近亚微米级别的亚晶, 其平均尺寸约为  $1.5 \mu\text{m}$ . 且亚晶尺寸分布的均匀性和等轴性、以及晶粒间的位向差增大. 这表明, ECAE 工艺对粉末烧结材料具有显著的细化效果.

对不同工艺路径下进行第二道次挤压试样的密度和主要变形区的显微硬度进行测量, 所得结果如图 4 所示. 可以看出, 随着挤压道次的增加, 铝粉烧结

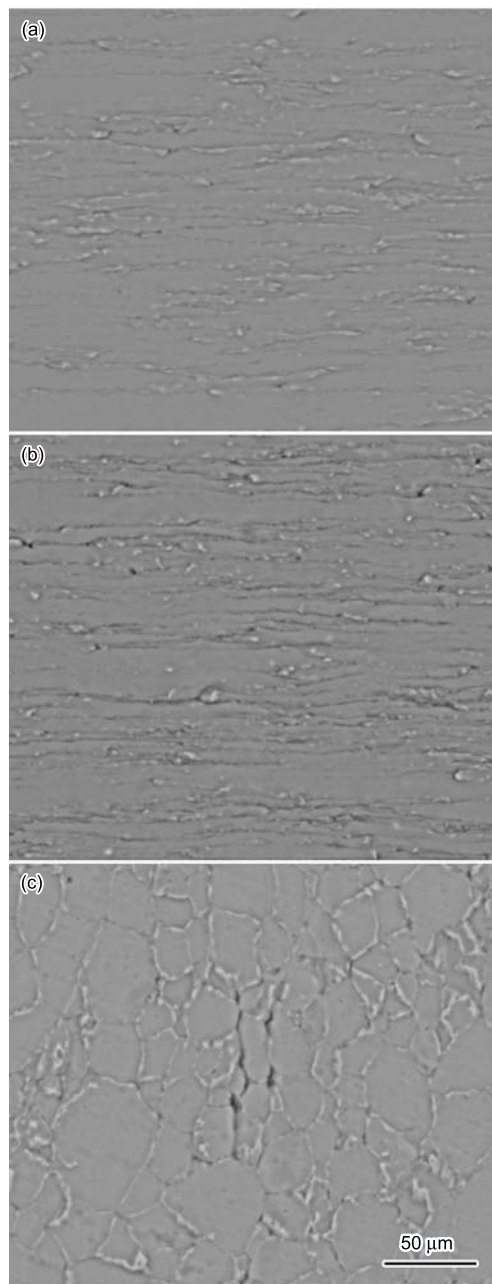


图 2 不同路径下挤压二道次后试样内部组织的 SEM 形貌

Fig.2 SEM images of samples after 2-passes ECAE at different routes (a) Route A (b) Route B (b) Route c

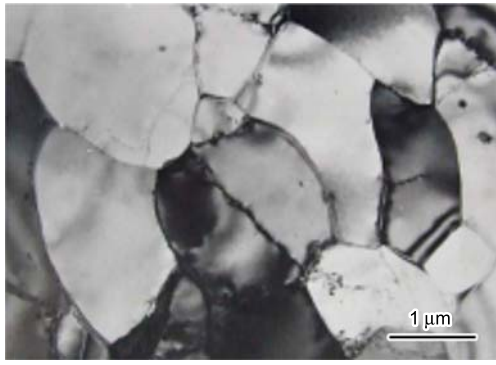


图3 路径 C 第二道次挤压后流动面 TEM 组织

Fig.3 TEM images of sample after 2-passes ECAE by route C

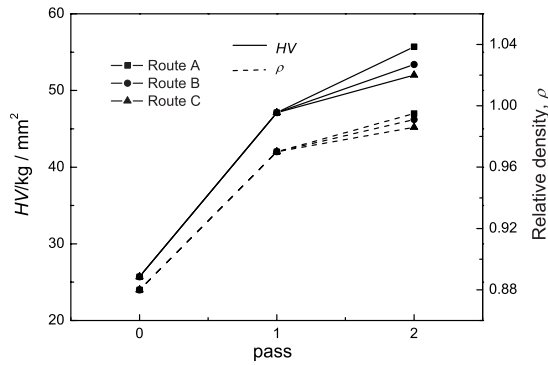


图4 挤压路径对挤压试样性能的影响

Fig.4 Effect of routes on properties of samples

材料的致密效果和显微硬度进一步提高,但增大的幅度不如第一道次显著.采用路径 A 进行二道次挤压后,试样的相对密度和硬度最大;而采用路径 C 所获得的相对密度和硬度最小.由此可见,ECAE 工艺在显著提高材料致密度的同时,还改变了基体颗粒的组织.晶粒细化的程度越大,单位体积内的晶界面积越多,硬度增加越明显.

## 2.2 烧结材料 ECAE 工艺的致密机理

### 2.2.1 单道次变形的致密机理

静水压力引起非致密体的体积变化,但有限的静水压力是不能使孔隙完全闭合的,而只能使其简单地改变尺寸收缩(形状不变).在 ECAE 变形过程中,粉末烧结材料的孔隙不仅因受到静水压力的作用而收缩,而且由于受到剪切变形的作用而沿剪切方向拉长,分散成较小的孔隙,从而有利于孔隙的闭合.

假设初始孔隙截面形状为圆形,在 ECAE 开始挤压到材料通过模具转角这一阶段,由于模具限制了材料的横向流动,球应力分量小,偏应力分量小.因而孔隙的尺寸减小,且孔隙截面形状变为一个椭圆形.由于偏应力分量小,形状改变小,椭圆的长短半轴的差距不大.当孔隙尺寸减小到一定程度以后,虽然静水

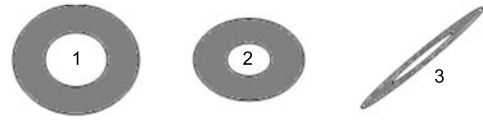


图5 ECAE 挤压过程孔隙变化示意图

Fig.5 Schematic diagram of pore change during ECAE

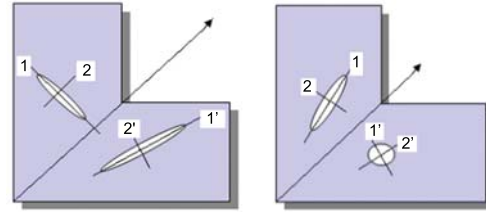


图6 不同工艺路径第二道次挤压孔隙变化示意图

Fig.6 Schematic diagram of pore change during 2-passes ECAE at different routes (a) route A (b) route C

压力进一步增大,但静水压力的致密效果已减弱.当材料被挤入模具通道转角地带时,在受到剧烈的剪切作用的同时,还承受较大的静水压力作用(第一个试样提供一定大小的背压).此时,孔隙的形状沿剪切方向明显拉长,孔隙的长短轴比值较大.同时,孔隙进一步收缩使得孔隙在短轴方向上有可能发生闭合.挤出转角地带以后,材料处于一种刚性平移状态,孔隙的形状及大小不再发生变化.ECAE 挤压过程中孔隙的变化规律如图 5 所示.

因此,在一道次挤压后,在高的静水压力和大的剪切变形的共同作用下,粉末烧结材料内部孔隙不仅大部分发生闭合,而且残留在试样内部的孔隙形状也发生了改变,有利于下一次变形中孔隙的闭合.

### 2.2.2 工艺路径对致密效果的影响

不同的工艺路径由于剪切方向不同,孔隙的演化规律也不相同.在路径 A 中,在前后相邻两道次挤压过程中剪切方向相互垂直,则经过第二道次挤压后孔隙沿剪切方向被进一步拉长(长轴 1 进一步增长,短轴 2 进一步缩短)(图 6a).此时在静水压力的作用下,孔隙在短轴方向上极易闭合.因此,随着挤压次数的增加路径 A 的剪切变形不断加剧,有利于烧结材料的致密.在路径 B 中,经二道次挤压后在两个相互垂直的空间平面上孔隙都受到了剪切变形而被拉长,孔隙的变化与第一道次挤压相类似.因此,B 路径的变形特征对烧结材料的致密也是有利的.而路径 C 在相邻两道次挤压时剪切方向相反,使相邻两道次挤压过程中孔隙的形状恢复为近似圆形(图 6b).因此,尽管经过两道次挤压后孔隙的大小和数量已明显减小,但是路径 C 对消除残存的孔隙是不利的,致密效果相对较弱.

### 2.3 烧结材料 ECAE 工艺晶粒细化的机理

关于致密材料的晶粒细化,变形诱导是其主要机制<sup>[12]</sup>.而粉末烧结材料是由多个颗粒组成的非致密体,单个颗粒的细化机理与致密材料相同.但是由于粉末烧结材料内部存在大量的孔隙,应该从各个颗粒的变形以及各个颗粒之间的协调关系来研究其整体变形.因此,烧结材料显微组织的细化和致密过程是相互伴随的.

面心立方结构的铝具有 12 个滑移系,层错能较高(166.0 mJ/m<sup>2</sup>),位错易于交滑移.在粉末烧结材料的 ECAE 过程中,由于受到强烈的剪切变形和高的静水压力作用,孔隙的形状尺寸不断变化,进而发生收缩闭合;这使得基体颗粒之间充分接触并发生剧烈的剪切变形,从而在基体组织内部产生很大的应变,开动了其内部不同方向的滑移系,在晶粒内部产生高密度的位错.此时,由于金属内积聚的内能较小,回复作用不明显,因此位错密度不断增加,晶粒细化作用明显.随着变形的继续,这些高能位的位错在应力作用下向晶界运动并发生塞积、缠结等反应,形成了胞状结构.并且随着应变量的增大,位错胞的数量增加而尺寸减小,胞间的取向差逐渐增大,形成大量的接近微米尺度的较为均匀的亚结构.在剪应力的作用下,相邻晶粒发生相互作用,小角度亚晶发生转动,亚晶的取向差继续增大,成为大角度晶界的亚晶粒.在进一步的变形中,大角度晶界的数量继续增加,大角度晶界增厚,角度增大,从而形成大角度晶界的超细晶结构.

为了研究工艺路径对晶粒细化的影响,应综合考虑剪切面、晶体结构和变形织构间的相互作用.相邻两道次挤压的剪切面夹角是随着工艺路径和通道夹角变化的.当模具内角为 90° 时,几种工艺路径的剪切面夹角分别为 90°(路径 A)、60°(路径 B)、0°(路径 C).因此,路径 A 和 B 相邻两次剪切面之间的夹角接近纯铝相邻滑移面之间的夹角 70.5°,容易激活滑移面上的位错滑移,细化效果相对较好.

由此可知,在铝粉烧结材料的 ECAE 工艺中,静水压力、剪切变形模式(包括单道次变形模式和多道次变形模式)和累积应变对细化晶粒的作用缺一不可,且三者也是密切相关的.在相同的静水压力和应变累积量下,大剪切变形模式对孔隙闭合、晶粒细化起主要作用,不同的剪切模式细化晶粒的效果是不同的.

## 3 结 论

1. ECAE 工艺对粉末烧结材料具有极强的致密效果和细化效果,可显著提高粉末材料的力学性能.经过一道次挤压后,在试样的主要变形区内晶粒明显

细化,孔隙大部分已经闭合,试样的平均相对密度和表面显微硬度提高;经两道次挤压后试样接近理论压实密度,晶粒被进一步细化,显微硬度进一步提高,但提高的幅度减小.不同挤压路径因剪切变形方式的不同导致试样挤压组织的形态和致密效果不同.

2. 在粉末烧结材料的 ECAE 挤压过程中大剪切塑性变形和高静水压力状态是其良好致密效果的关键;变形量的累积和不同的剪切特征不断地改变内部的孔隙形状,使基体材料进一步致密.

3. 在粉末烧结材料的 ECAE 挤压过程中,晶粒细化效果取决于变形中的静水压力、剪切模式和应变累积等因素的共同作用.

## 参 考 文 献

- 1 R.Z.Valiev, R.K.Islamgaliev, I.V.Alexandrov, Bulk nanostructured materials from severe plastic deformation, *Progress in Materials Science*, **45**(2), 103(2000)
- 2 R.Z.Valiev, T.G.Langdon, Principles of equal-channel angular pressing as a processing tool for grain refinement, *Progress in Materials Science*, **51**(7), 881(2006)
- 3 R.Z.Valiev, N.A.Krasilnikov, N.K.Tsenev, Plastic deformation of alloys with submicron grained structure, *Materials Science and Engineering A*, **137**(15), 35(1991)
- 4 O.N.Senkov, S.V.Senkov, J.M.Scott, D.B.Miracle, Compaction of amorphous aluminum alloy powder by direct extrusion and equal channel angular extrusion, *Materials Science and Engineering A*, **393**(1-2), 12(2005)
- 5 K.Matsuki, T.Aida, T.Takeuchi, J.Kusui, K.Yokoe, Microstructural characteristics and superplastic-like behavior in aluminum powder alloy consolidated by equal-channel angular pressing, *Acta Materialia*, **48**(10), 2625(2000)
- 6 S.Y.Chang, K.S.Lee, S.H.Choi, D.H.Shin, Effect of ECAP on microstructure and mechanical properties of a commercial 6061Al alloy produced by powder metallurgy, *Journal of Alloys and Compounds*, **354**(1-2), 216(2003)
- 7 K.Xia, X.Wu, Back pressure equal channel angular consolidation of pure Al particles, *Scripta Materialia*, **53**(11), 1225(2005)
- 8 M.Haouaoui, I.Karaman, H.J.Maier, K.T.Hartwig, Microstructure evolution and mechanical behavior of bulk copper obtained by consolidation of micro- and nanopowders using equal-channel angular extrusion, *Metallurgical and materials transactions A*, **35**(9), 2936(2004)
- 9 J.P.Mathieu, S.Suwas, A.Eberhardt, L.S.Tóth, P.Moll, A new design for equal channel angular extrusion, *Journal of Materials Processing Technology*, **173**(1), 29(2006)
- 10 M.Furukawa, Z.Horita, M.Nemoto, T.G.Langdon, Processing of metals by equal channel angular pressing, *Journal of Materials Science*, **36**(12), 2835(2001)
- 11 T.G.Langdon, M.Furukawa, M.Nemoto, Z.Horita, Ultrafinegrained microstructure evolving during severe plastic deformation, *JOM*, **52**(4), 30(2000)
- 12 Y.T.Zhu, T.C.Lowe, Observations and issues on mechanisms of grain refinement during ECAP process, *Materials Science and Engineering A*, **291**(1-2), 46(2000)