

累积叠轧技术的研究现状与展望

詹美燕, 李元元, 陈维平

(华南理工大学 机械工程学院, 广州 510640)

摘要: 对采用累积叠轧工艺制备超细晶组织的技术进行详细的综述, 介绍了累积叠轧技术的原理、ARB 材料的组织与力学性能特征, 并对 ARB 变形过程中的剪切变形、晶粒细化机制和强化机制进行分析。采用 ARB 技术可以制备大尺寸的超细晶组织材料, 其室温抗拉强度通常比粗晶材料的高 2~4 倍。ARB 材料的强化源于晶粒细化、位错强化、在大变形轧制时形成的稳定基面织构、表面的氧化膜以及内生原有夹杂物在强烈塑性变形情况下的破碎与弥散分布。分析了 ARB 技术的优越性, 对其在制备超细晶材料领域的应用进行了展望。

关键词: 累积叠轧; 超细晶; 剧塑性变形; 微观组织; 力学性能

中图分类号: TG 142.1

文献标识码: A

Status and expectation of research on accumulative roll-bonding

ZHAN Mei-yan, LI Yuan-yuan, CHEN Wei-ping

(School of Mechanical Engineering, South China University of Technology, Guangzhou 510640, China)

Abstract: The process of accumulative roll-bonding was reviewed. The principle of ARB, the ARB processed microstructure and mechanical properties were described in detail. The shear strain, mechanism of grain refining and strengthening were analyzed. Large size materials with ultrafine grains can be achieved easily by ARB process, whose tensile strength is usually 2~4 times compared with those of coarse grain materials. The strengthening can be attributed to the ultrafine grains, dislocation and texture developed during ARB process, as well as the dispersed oxide films and inclusions on the surfaces by repetition. According to its advantages on the manufacture of high-strength bulk materials at a high level of productivity, ARB is a promising process in preparing materials with UFG microstructure.

Key words: accumulative roll-bonding; ultrafine grains; severe plastic deformation; microstructure; mechanical properties

1 剧塑性变形工艺制备超细晶组织

近年来, 关于纳米晶和超细晶/亚微米晶的加工工艺、组织和性能的研究受到广泛关注。通常认为纳米晶的晶粒尺寸范围为 $d < 100 \text{ nm}$ ^[1], 超细晶(Ultrafine grains, UFG)的晶粒尺寸范围为 $100 \text{ nm} < d < 1 \mu\text{m}$ ^[1-2], 或 $100 \text{ nm} < d < 500 \text{ nm}$ ^[3], 而对于亚微米晶粒(Submicron grains)组织的定义为^[4]: 晶粒在各个方向上的尺寸均

小于 $1 \mu\text{m}$, 大角度晶界(High angle grain boundary, HAGB)的比例大于 70%。晶粒细化是目前所知的既能提高强度, 又能改善韧性的主要方法。亚微米的晶粒组织可以使材料在室温下具有高的强度和韧性^[3, 5], 以及高温下表现出低温超塑性和高应变速率超塑性^[2, 6]。Hall-Petch 公式给出了屈服强度与晶粒尺寸间的定量关系:

$$\sigma_s = \sigma_0 + kd^{-1/2} \quad (1)$$

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(50575076); 广东省自然科学基金重点资助项目(36547); 中国博士后科学基金资助项目(20060400748)

收稿日期: 2006-09-13; 修订日期: 2007-02-26

通讯作者: 李元元, 教授; 电话: 020-87112948; E-mail: mehjli@scut.edu.cn

式中 d 为晶粒的平均直径; σ_0 为其它强化方式作用项; k 为常数。晶粒尺寸对材料流动应力的影响如图 1 所示^[7]。

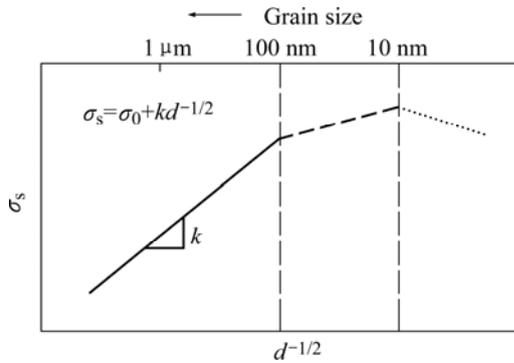


图 1 晶粒尺寸对材料流动应力的影响

Fig.1 Effect of grain size on flow stress of materials

制备纳米晶和超细晶的方法主要有如下两种^[1]:

1) Top-down 工艺, 旨在细化常规组织材料的晶粒; 2) Bottom-up 工艺, 旨在从原子和分子的基础上合成细小的晶粒组织。通常制备 UFG 组织的方法有^[6]: 快速凝固 (Rapid solidification)、气相沉积 (Vapor deposition)、机械合金化 (Mechanical alloying)、低温金属成形 (Cryogenic metal forming) 和剧烈塑性变形 (Severe plastic deformation, SPD) 等, 其中剧烈塑性变形被认为最适于工业化生产^[8]。近 20 年来, 开发了几种 SPD 技术来制备具有 UFG 组织的块材和板材^[5, 9-13], 如等通道挤压 (Equal-channel angular extrusion/pressing, ECAE/P)、高压扭转 (High-pressure torsion, HPT) 和多轴压缩/锻造 (Multi-axial compressions/forging, MAC/F) 等技术用于制备块体材料的 UFG 组织; 累积叠轧 (Accumulative roll-bonding, ARB) 和连续剪切变形 (Conshearing process) 等技术用于制备具有 UFG 组织的板带材。通常金属材料的晶粒细化主要是通过传统的塑性变形加工和随后的退火工艺 (发生再结晶和晶粒长大) 来获得的, 这种常规工艺所制备的材料晶粒尺寸最小约为 $10 \mu\text{m}$ 。在传统的金属塑性变形工艺中, 如轧制工艺, 工业上传统冷轧加工所能达到的总应变量约为 60%~80%, 相当于 von Mises 等效应变 $\varepsilon_{\text{vm}}=1.06\sim 1.86$, 有效应变 $\varepsilon_{\text{vm}}>4$ 的情况只有在轧制箔材时才能获得。相对传统的塑性变形工艺而言, SPD 技术设计目的在变形过程中保持坯料的外形基本不变, 从而可达到的应变不受材料外形的影响。大多数 SPD 过程实质上是一种循环的变形过程, 但通常会有变形路径的变化。

2 累积叠轧技术原理

累积叠轧工艺最早是日本 Saito 等^[6]于 1999 年左右提出来的, 其工艺原理如图 2 所示。累积叠轧是将表面进行脱脂及加工硬化等处理后的尺寸相等的两块金属薄板材料在一定温度下叠轧并使其自动焊接, 然后重复进行相同的工艺反复叠轧焊接, 从而使材料的组织得到细化、夹杂物分布均匀, 大幅度提高材料的力学性能。轧制是制备板材最具优势的塑性变形工艺, 然而随着材料厚度的减小, 材料的总应变量受到限制。在累积叠轧工艺中, 材料可以反复轧制, 累积应变可以达到较大值, 在理论上能获得很大的压下量, 突破了传统轧制压下量的限制, 并可连续制备薄板类的超细晶金属材料, 因此 ARB 工艺被认为是剧烈变形工艺中唯一有希望能工业化生产大块超细晶金属材料的方法。ARB 工艺中材料的几何变化如表 1 所列^[2]。

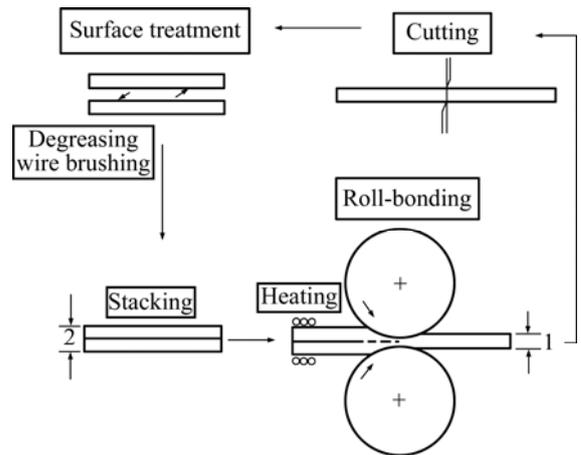


图 2 累积叠轧工艺原理^[6]

Fig.2 Schematic diagram of accumulative roll-bonding (ARB) process

ARB 已被成功应用于纯铝、铝合金和无间隙钢 (Interstitial free, IF) 及少量的变形镁合金^[1, 14-18], 其中 ARB 铝合金包括纯铝 (1100)、Al-Mn (3003)、Al-Mg (5083)、Al-Mg-Si (6061)、Al-Fe-Si (8011)、Al-Cu 合金 (Al-2Cu) 和铝基复合材料。

3 累积叠轧材料的组织与性能

3.1 组织特征

研究发现^[19]: 通过 SPD 技术能制备的最小晶粒尺

表1 ARB工艺过程中材料的几何变化

Table 1 Geometrical change of materials during ARB

Number of cycles	Number of layers	Number of bonded boundaries	Layer interval/ μm	Total reduction/%	Equivalent strain
1	2	1	500	50	0.8
2	4	3	250	75	1.6
3	8	7	125	87.5	2.4
4	16	15	62.5	93.75	3.2
5	32	31	31.2	96.875	4.0
6	64	63	15.6	98.44	4.8
7	128	127	7.8	99.22	5.6
n	2^n	2^n-1	$H_0/2^n$	$(1-1/2^n)\times 100$	$0.8n$

$H_0=1\text{ mm}$

寸为亚微米的尺寸水平。SPD 的等效应变大于 4 以后可以获得 UFG 组织, 晶粒尺寸小于 $1\ \mu\text{m}$ ^[20]。变形温度越低, 晶粒尺寸越小。同时, 低层错能材料以及材料中具有阻碍回复过程发生的元素, 经过 SPD 变形的晶粒也会更小。对剧塑性变形温度与晶粒尺寸的研究表明^[4], 在变形温度小于 $0.4T_m$ 时(T_m 为变形材料的熔点, K), 可以制备亚微米级的组织, 而制备纳米晶的变形温度必须小于 $0.2T_m$, 但大多数合金在小于 $0.2T_m$ 变形时会发生断裂。剧塑性变形温度与晶粒尺寸的关系如图 3 所示^[4]。

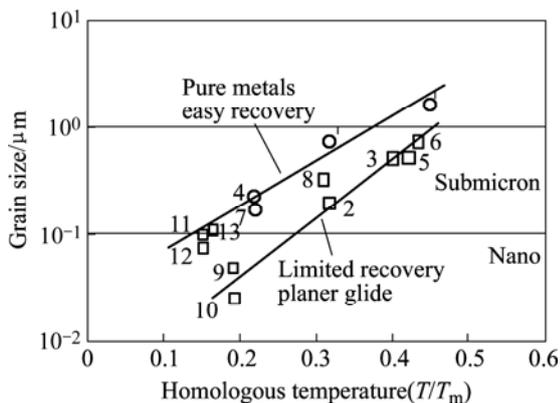


图 3 SPD 制备材料的晶粒尺寸与变形温度^[4]

Fig.3 Grain sizes measured in severely deformed alloys processed by ECAE, ARB and SPTS plotted against homologous temperature: ECAE: (1) Al; (2) Al-3%Mg; (3) IF steel; (4) Cu; ARB: (5) I F steel; HPT: (6) Zn-22Al; (7) Cu; (8) Mg; (9) and (10) AlNi₃; (11) Fe; (12) Ti; (13) Ni

铝合金和钢铁材料的 ARB 超细晶组织通常呈板条状组织, 晶粒在轧制纵向呈明显的延伸状。典型的 ARB 组织如图 4 所示^[21]。ARB 变形能显著细化晶粒

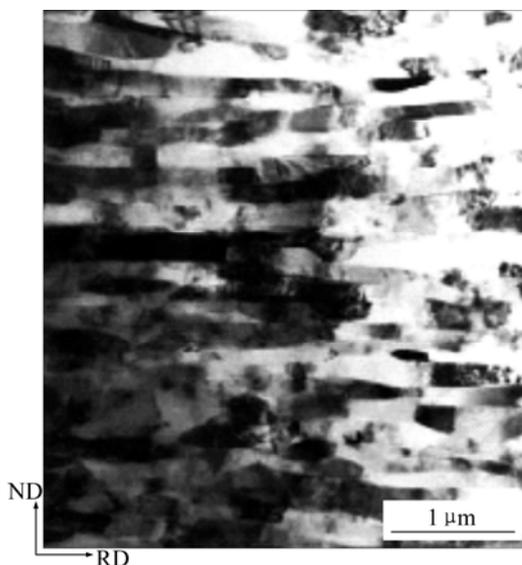


图 4 1100Al 经过 4 道次 ARB 变形后的微观组织

Fig.4 Microstructure of 1100Al sheet ARB process four cycles

组织, 如原始晶粒为 $23\ \mu\text{m}$ 的 IF 钢在 ARB 变形温度为 $500\ ^\circ\text{C}$ 、等效应变 $\epsilon_{vm}=4.0$ 时, 晶粒尺寸为 $210\ \text{nm}\times 700\ \text{nm}$, 长条状的 UFG 中存在位错和亚晶界, 大多数 UFG 组织被大角度晶界所包围^[22]。Al-Fe-Mn-Si (AA8006) 原始晶粒尺寸为 $16\ \mu\text{m}$, 在 ARB 变形温度为 $200\ ^\circ\text{C}$, 等效应变 $\epsilon_{vm}=2.4$ 时, 晶粒尺寸为 $0.4\text{--}0.8\ \mu\text{m}$, 此后细化不明显^[15]。TEM 组织观察表明: 亚晶或晶内的位错密度在整个 ARB 过程中几乎没有变化。1100Al 的原始晶粒尺寸 $37\ \mu\text{m}$, 在 $200\ ^\circ\text{C}$ 下变形, ARB 组织呈现薄片状, 当 $\epsilon=6.4$ 时, 薄片组织的尺寸约为 $240\ \text{nm}\times 820\ \text{nm}$ ^[8]。当 $\epsilon_{vm}=1.6$ 时, 组织为大角度晶界 (大于 15°) 和小角度晶界 (小于 15°) 共同组成; 当 ϵ_{vm} 更大时, 主要是大角度晶界。6061Al 在室温下进行 ARB

变形, 原始晶粒尺寸 $25\ \mu\text{m}$ ^[23], ARB3 就出现了 UFG 组织, 晶内位错密度很低, UFG 的比例随 ARB 道次的增加而增加; 经 6 道次后, UFG 组织的尺寸为 $500\ \text{nm}$ 左右; 经 8 道次后, UFG 组织的尺寸为 $300\ \text{nm}$ 。界面 TEM 观察表明, 界面组织由 UFG 及许多氧化物和析出相组成。氧化物来源于 ARB 处理之前表面形成的氧化物薄层^[24]。

关于镁合金 ARB 工艺及组织的研究较少, 对 AZ31 和 AZ91 合金在 $400\ ^\circ\text{C}$ 进行 ARB 处理, 初始晶粒分别为 38 和 $23\ \mu\text{m}$ 。结果表明^[1]: AZ31 经过 ARB1 后, 晶粒呈等轴晶状, 晶粒尺寸为 $4\ \mu\text{m}$, 此后稳定在 $3\ \mu\text{m}$ 左右; AZ91 经过 1 道次后, 晶粒尺寸小于 $1\ \mu\text{m}$, 此后晶粒尺寸逐渐均匀化。经过 4 个道次 ARB 变形后的 AZ31 和 AZ91 组织如图 5 所示^[1]。

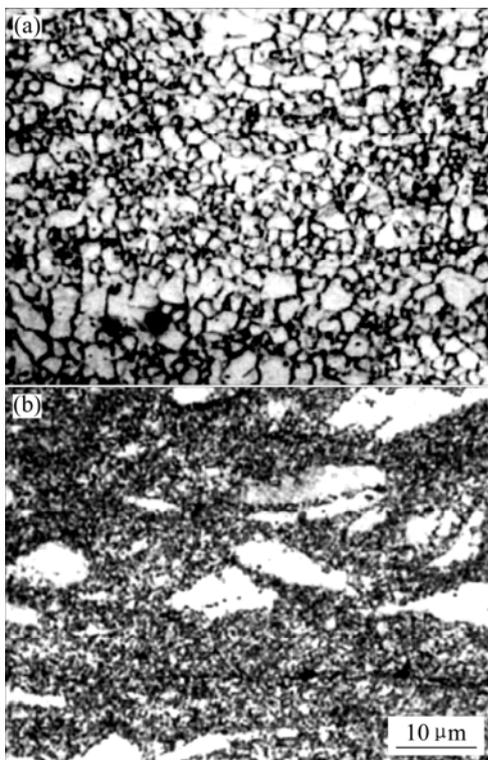


图 5 经过 4 个道次 ARB 变形后 AZ31 和 AZ91 的显微组织
Fig.5 Microstructures of AZ31 (a) and AZ91 (b) alloys processed by accumulative roll bonding after 4 cycles

以上研究表明: 1) 铝合金和钢铁材料的 ARB 组织通常呈板条状组织, 镁合金的 ARB 组织呈等轴晶状, 可能是由于镁合金易发生再结晶; 2) 晶粒细化主要发生在前面几道次, 随后晶粒尺寸变化不大, 但晶粒大小均匀性增加; 3) ARB 材料最终的晶粒大小取决于应变的累积程度, 它受到动态回复的容易程度、加工温度和扩散程度的影响。如 1100Al、5083 Al-Mg 和

IF 钢在 7 道次 ARB 后, 晶粒尺寸分别为 670 , 280 和 $420\ \text{nm}$ ^[24]。通常在再结晶温度下进行大塑性变形并且没有中间退火, 可以制备 UFG 组织; 4) 增加第二相可以阻碍 UFG 组织晶粒长大。

3.2 取向差与织构

ARB 变形过程中应变与组织取向差的关系如图 6 所示^[8]。由图 6 可看出, 随 ε 增加, 取向差在 $\varepsilon_{\text{vm}}=3.2$ 时达到饱和值 36° 。与常规冷轧组织比较, ARB 组织与之具有相似性, 如在大应变时形成薄片状组织, 薄片状组织的层间距随 ε 的增加而下降。两者取向差随应变的变化如图 7 所示^[8]。由图 7 可见, ARB 工艺加速了组织的演变过程, 可归因于 ARB 工艺中, 在板厚方向产生了大的剪切变形。

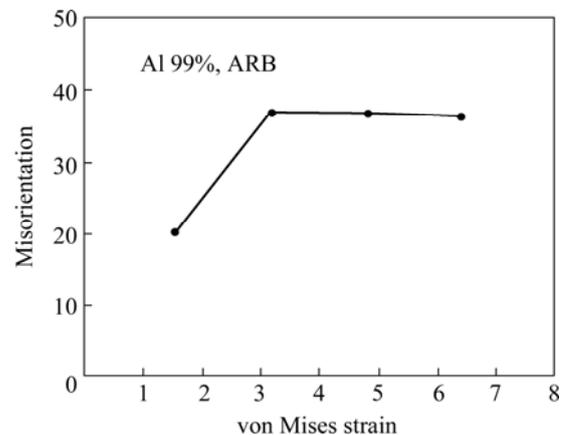


图 6 层状组织的取向差与应变的关系

Fig.6 Relationship between mean misorientation angle across lamellar boundaries and strain

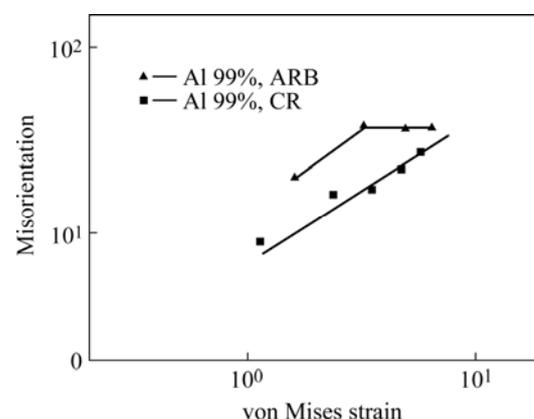


图 7 ARB 和冷轧纯铝的层状组织的取向差与应变关系的比较

Fig.7 Comparison of misorientation across lamellar boundaries formed in ARB processed Al and in conventionally cold-rolled Al and strain

传统冷轧板在大应变时具有典型的轧制结构, 表明板材发生了均匀的轧制变形。而 ARB 板材的极图测试表明^[8], 即使当 ϵ 为 3.2 和 6.4 时, 织构仍然很弱, 可能是由于大的剪切变形会改变滑移方式。对于纯铝 ARB 组织研究表明, 轧制方向的织构明显弱化^[8]。Saito 等^[25]对纯铝累积叠轧组织演变的研究表明, 尽管经过剧烈的塑性变形, 但 ARB 板材的织构较弱。此外, ARB 材料在次表面的织构和厚度中心的织构完全不同, 次表面为典型的剪切织构, 而厚度中心部位与轧制织构相似, 可归因于 ARB 过程中的剪切变形^[22]。ARB 过程中没有任何润滑, 此时由于轧制金属和轧辊之间较大的摩擦力, 在板材的厚向表面产生大的剪切变形。中心部位的织构与传统轧制的织构相似, 而现在的中心部位是上一道次中的表面位置, 说明表面剪切织构在传统的轧制中容易被破坏。

3.3 力学性能

3.3.1 抗拉强度

某些金属经过 ARB 变形后的组织和性能如表 2 所列^[2, 6]。由表 2 可见, 金属经过 ARB 变形后, 组织细小, 有的甚至为纳米级; 较低的温度下的变形组织更细小; ARB 材料的强度比常规材料高 2~4 倍。1100Al

和 6060Al 在 ARB 变形过程中力学性能随等效应变的变化(见图 8)^[23]。由图 8 可见, ARB 材料的强度随应变的增加而增加。在 200 °C 下经过 6 道次 ARB 变形, 1100Al 的抗拉强度由 80 MPa 增加到 300 MPa, 提高 2.75 倍^[25]。通常商业结构金属材料的最小平均晶粒尺寸约为 10 μm ^[20], 小于 1 μm 的 UFG 组织的材料可能会呈现优异的性能, 如高的强度、韧性和抗疲劳性能。实际上, SPD 工艺制备的 UFG 材料通常比粗晶材料

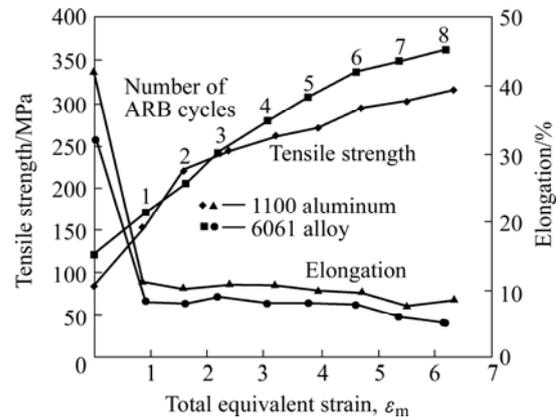


图 8 1100Al 和 6061Al 力学性能与 ARB 应变量的变化曲线
Fig.8 Change curves of mechanical properties of 1100Al and 6061Al alloys with total equivalent strain in ARB process

表 2 各种材料经过 ARB 变形后的组织与拉伸性能

Table 2 Microstructure, grain size and tensile strength of various kinds of metals and alloys ARB processed

Material	ARB process	Microstructure	Grain size/ μm	Tensile strength/ MPa	Original tensile Strength/MPa
4N-Al	7 cycles at RT	Pancake UFG	0.670	125	
1100Al (99%Al)	8 cycles at RT	Pancake UFG	0.210	304	84
5052Al (Al-2.4Mg)	4 cycles at RT	Ultrafine lamellae	0.260	388	
5083Al (Al-4.5Mg-0.57Mn)	7 cycles at 100 °C	Ultrafine lamellae	0.080	551	319
6061Al (Al-1.1Mg-0.63Si)	8 cycles at RT	Ultrafine lamellae	0.100	357	
7075Al (Al-5.6Zn- 2.6Mg-1.7Cu)	5 cycles at 250°C	Pancake UFG	0.300	376	
OFHC-Cu	6 cycles at RT	Ultrafine lamellae	0.260	520	
Cu-0.27Co-0.09P	8 cycles at 200 °C	Ultrafine lamellae	0.150	470	
Ni	5 cycles at RT	Ultrafine lamellae	0.140	885	
IF steel	7 cycles at 500 °C	Pancake UFG	0.210	870	
0.041P-IF steel	5 cycles at 400 °C	Pancake UFG	0.180	751	274
SS400 steel (Fe-0.13C-0.37Mn)	5 cycles at RT	Ultrafine lamellae	0.110	1030	
Fe-36Ni	7 cycles at 500 °C	Ultrafine lamellae	0.087	780	

的强度高 2~4 倍。

3.3.2 伸长率

ARB 材料的伸长率在第一道次后急剧下降, 此后基本保持不变。如 1100Al 在 ARB 1 后, 伸长率由 50% 下降到 8%^[25]。经过大塑性变形后, 材料的组织和结构会发生明显的变化, 晶粒内部出现各种形变亚结构, 位错密度会大幅度增加, 因而会出现加工硬化现象, 这是材料强度增加塑性降低的主要原因。此外, 试样表面的氧化物在轧制过程中进入了试样内部, 这也对材料的强度起到了增强作用, 但同时它也是材料伸长率下降的原因, 氧化物的聚居区就成了断裂的裂纹源, 因而伸长率下降。但随着实验的进行, 氧化物分布逐渐均匀, 因而伸长率略有升高。此外, Tsuji 等^[26]认为, 当 ARB 变形后的晶粒小于 1 μm 时, 屈服后没有出现明显的硬化现象, 即抗拉强度和屈服强度相近, 而硬化是发生均匀变形的必要条件, 因此使拉伸变形时断裂伸长率下降。换言之, 晶粒小于 1 μm 后的材料出现了塑性不稳定性。

经过 ARB 变形的材料在性能上的局限性, 即延性比变形前下降, 会在高道次 ARB 过程中容易出现边裂和中心断裂^[6]。可以通过以下措施改善 ARB 材料的伸长率: 1) 通过加强材料本身的加工硬化能力, 如在基体中引入细小的弥散分布的第二相, 来改善具有 UFG 组织材料的拉伸延性; 2) 通过退火来获得最佳的综合力学性能^[27]。低应变材料在退火中, 可以发生不连续再结晶, 期间离散形核的晶粒会发生长大。SPD 材料具有 70% 以上的 HAGB, 在退火过程中发生连续的再结晶, HAGB 的含量不变。退火过程中晶界局部发生重排, 以平衡表面张力, 新晶粒不会发生长大^[4]。但是在 1100 纯 Al 的 ARB 试样退火时, 尽管延性有大的增加, 由于退火时很容易发生再结晶与晶粒长大, 因此材料的强度也下降较多^[23]。如果材料中含有细小的析出相或增强相颗粒, 可以预料退火过程不仅可以使延性增加, 且由于第二相的钉扎作用, 强度下降不会很大, 从而获得优良的综合性能。

3.4 强化机制

ARB 工艺制备的 UFG 材料通常比粗晶材料的强度高 2~4 倍。其强化机制可归纳为以下几种: 1) ARB 材料在较低的应变时强度迅速上升, 可归因于亚晶界的形成, 而不是晶粒细化, 因为在较低温度下, 组织的演变主要是位错密度的增加和多方向滑移带的形成^[28], 材料中形成了传统的亚晶结构, 取向差较小; 2) 最终 ARB 材料的强化源于晶粒细化^[25]、位错强化^[20]以及在大变形轧制时形成的稳定的基面织构^[29]。

文献^[30]认为 ARB 材料强度增加是晶粒细化和织构的共同影响。当基面织构平行于拉伸轴时, 激活基面滑移的临界剪切应力(Critical resolved shear stress, CRSS)会动态地增加, 使拉伸强度大大增加。详细的强化机制尚在讨论中; 3) 经过多道次 ARB, 金属表面的氧化膜以及内生原有夹杂物在强烈塑性变形的情况下破碎, 在基体内均匀分布。这些微小粒子的存在起到了钉扎晶界阻碍晶粒移动长大的作用, 从而使材料强化; 4) 表面层在金属刷打磨时形成的硬化层, 以及由于大应变使金属间化合物相固溶而引起的硬化作用, 也是 ARB 材料强化的机制之一^[30-31]。

4 ARB 过程中的剪切变形和晶粒细化机理

4.1 剪切变形

轧制板材的变形受轧辊和金属间摩擦条件的影响很大。众所周知, 在较大的摩擦条件下, 如热轧时, 或在轧辊辊面没有润滑的情况下, 轧制过程中在板材的次表面会发生较大的剪切变形^[2]。由于表面区域大的剪切变形, 金属在厚度方向上的变形是很不均匀的^[32-33]。

ARB 工艺通常轧辊不进行润滑, 由于大的轧机和轧辊表面之间的摩擦, 在材料的次表面可能产生大的剪切应变。Tsuji 等^[2]在板材的厚度方向钉入一枚钉子, ARB 变形后钉子的变形如图 9 所示^[2]。由图 9 可见, 经过 1 道次的 ARB 变形, 钉子发生大的剪切变形。

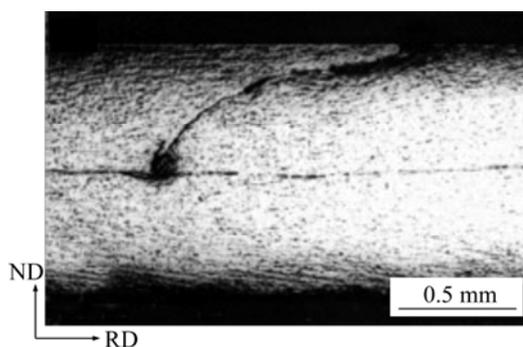


图 9 埋入 1100Al 板材厚度方向的钉子经 1 道次 ARB 变后的弯曲形貌

Fig.9 Optical microstructure of flection of embedded pin in 1100Al sheet ARB processed by one cycle at ambient temperature without lubrication

根据图 9 计算出的板材沿厚度方向不同道次剪切应变的分布如图 10 所示^[18]。由图 10 可见, 多道次后,

剪应变分布很复杂, 因为每次叠轧后, 板材的表面又进入中心, 因此与传统轧制比较, 发生剪切变形不仅在板材的表面区域。ARB 过程实际上是平面应变和剪切应变的共同作用, 而剪切变形并不改变板材的厚度, 因此在剪切变形和平面变形叠加的区域, 等效应变中必须加上剪切应变, 从而使等效应变大大增加, 远大于 $0.8n$ (道次变形量为 50% 时)。文献[34]比较了经过相同变形量的冷轧和 ARB 变形的 1100Al 的组织 and 力学性能。研究表明, 当变形量 $\varepsilon=4.8$ 时, 1100Al 冷轧层状组织的尺寸为 $0.33\ \mu\text{m}\times 1\ \mu\text{m}$, ARB 后层状组织的尺寸为 $0.2\ \mu\text{m}\times 0.57\ \mu\text{m}$, 表明 ARB 的实际总应变量更高。据计算, 道次等效应变为 0.8 时, 每 ARB 道次引入的剪切应变是 1.2 左右^[23]。文献[8]认为, 在同样的应变下, 99%Al 通过 ARB 变形形成 UFG 组织的速度比常规轧制变形要快得多, 可能的原因之一是由于在 ARB 工艺中会发生大的剪切变形。Utsunomiya 等^[23]的研究表明, 在有润滑的条件下, Al 板即使经过 7 道次的 ARB, 仍然很难形成 UFG 组织。

大的剪切变形会使板厚方向的组织和织构分布不

均匀。沿板厚方向晶粒大小与剪切应变分布的关系如图 11 所示^[23]。在剪切应变的峰值位置对应出现更细小的 UFG 组织, 表明在 ARB 过程中, 剪切应变在 UFG 形成过程中扮演了重要的作用。在 ARB 过程中, 厚度方向不仅存在剪切应变, 且不同位置剪切应变存在较大的应变梯度。在剪切应变的峰值位置对应出现更细小的 UFG 组织, 可以认为是由于在该位置出现了较大的应变梯度。研究^[35]发现, 几种金属在 $\varepsilon_{\text{vm}}=4.8$ 的组织在厚度方向是均匀的, 表明 ARB 工艺制备的组织, 在 ε_{vm} 较大时是可以达到均匀的。因为当 ε_{vm} 较小时, 剪切应变沿厚度方向分布很不均匀; 当 ε_{vm} 很大时, 其分布逐渐均匀。

4.2 晶粒细化机理

在大应变诱发晶粒细化的变形中, 形成新的大角度晶界(High angle grain boundary, HAGB)的机制有两种^[4]: 1) 原有晶界随着应变的增加成比例扩展^[36]; 2) 通过晶粒细分而形成新的 HAGB^[37]。第二种机制在传统应变($\varepsilon_{\text{vm}}<3$)中进行了广泛的研究^[36-38]。晶粒被大角

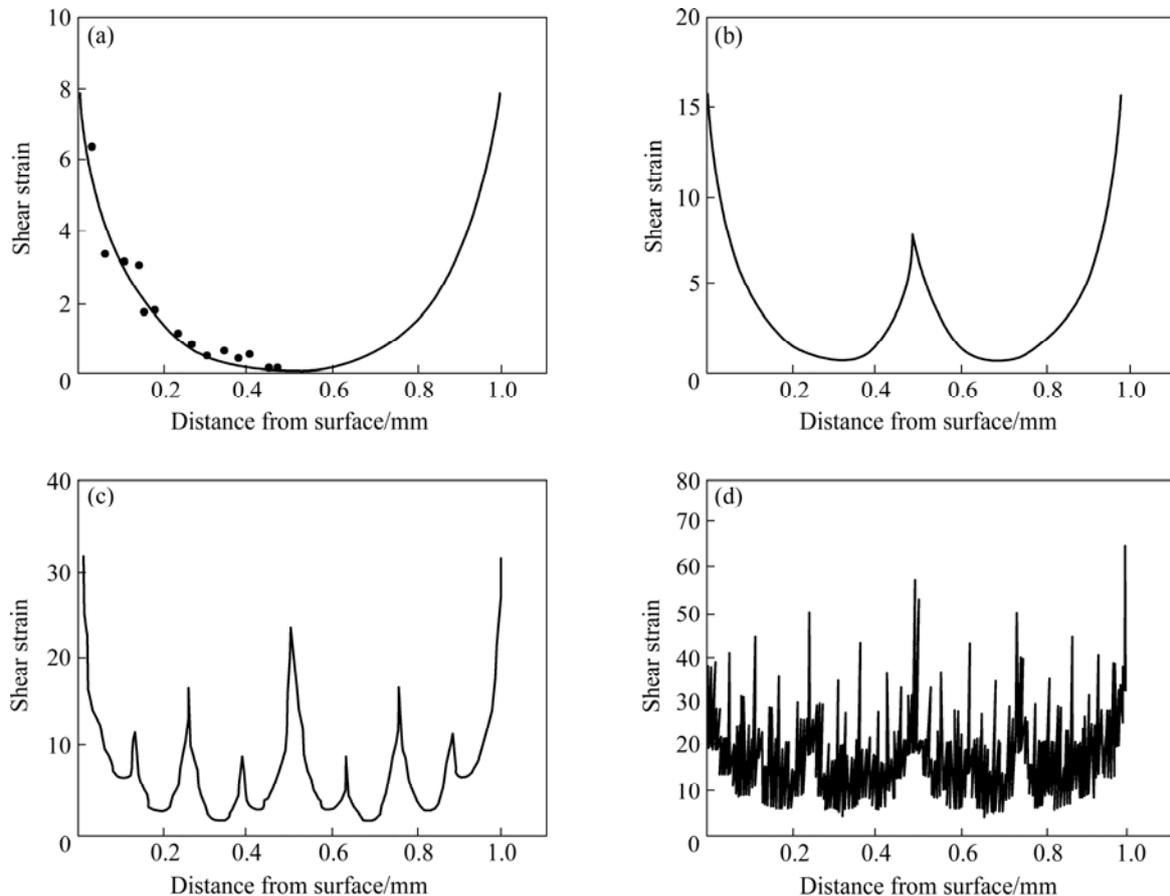


图 10 ARB 变形过程中沿板材厚度方向的剪切应变分布

Fig.10 Distribution of shear strain through thickness of 1100Al ARB processed by different cycles at RT: (a) 1 cycle; (b) 2 cycle; (c) 4 cycle; (d) 8 cycle

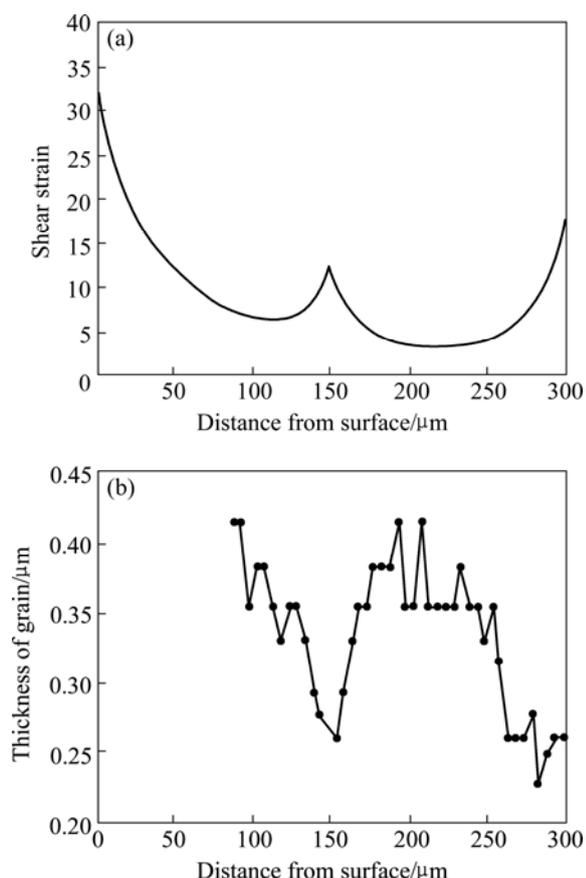


图 11 ARB 变形过程中剪切应变和晶粒尺寸分布的关系
Fig.11 Relationship between shear strain distribution and grain size distribution in 1100Al sheet ARB processed by four cycles

度晶界细分是一个主要的机制。在亚微米尺寸领域,变形诱发大角度晶界形成,使晶粒被细分。此后通过回复形成具有平衡晶界的 UFG。因此在厚度方向,剪切变形越大,则晶粒会越细,由于大的等效应变会导致大的位错积累,即晶粒被分得更细。

ARB 可以制备 UFG 组织(Sub-micron),并使材料大大强化。通常认为,ARB 工艺中的晶粒组织演变过程可以归纳为^[28]:当 ϵ 较小时($\epsilon < 1.6$),可以观察到位错胞的形成,然后,由于多方向滑移的启动,位错胞不断得到细化,位错胞内的位错密度相对较低;随着 ϵ 增加($\epsilon > 1.6$),位错胞转变为超细的亚晶;在更大的 ϵ 时,组织的演变主要是亚晶界转变为大角度晶界,而不是晶粒细化。电子选区衍射 SAD 花样随 ϵ 增加逐渐呈环状,表明大角度晶界的比例不断增加。文献[15]认为 ARB 晶粒细化的机理是小角度晶界转变为大角度晶界。

与其他大应变工艺相比,ARB 晶粒细化机制可以

归纳为以下几种^[6,39-40]:1) 在板表面及次表面存在剧烈的剪切变形。ARB 过程中通常为了获得良好的界面结合而不使用润滑,因此每次 ARB 过程中均会在表面区域产生大的剪切变形。这个剪切应变大大增加了 ARB 过程的等效应变,且在下一道次中有一半的表面又进入厚度中心,从而使高道次 ARB 之后具有较大剪切变形的表面区域沿厚度分布很复杂,经过多道次后,在整个厚度区域均发生大的应变。这可能是 ARB 中 UFG 组织的形成机制之一;2) 另一种机制是引入新的表面,多道次后,ARB 材料中引入大量新的表面。这些表面呈现良好的纤维组织。表面的氧化膜和夹杂物通过反复的 ARB 过程,均匀弥散分布。这些物质可强化材料,成为晶粒长大的障碍物;3) 应变路径对组织细化也有影响^[39]。在 ECAP 制备 Al-Mg 合金 UFG 组织的研究中,Iwahashi 等^[40]报道了应变路径对 UFG 组织形成的巨大影响,即在 ECAP 道次间旋转 90° ,可以更快获得 UFG 组织,即使最终总的剪切变形量相等。在 ARB 中,具有大的剪切变形的表面区域在下一道次中进入中心部位,发生传统的平面轧制变形,这种应变模式也可以看作应变路径的改变,可能在 UFG 组织的形成中起了重要作用;4) 在 ARB 变形过程中还有其它一些过程也比较重要,如在剪切带发生集中的滑移会形成 HAGB^[41];在某些合金中有时孪生变形也会形成新的大角度晶界^[42]。而组织的影响可能是理解 ARB 过程中 UFG 组织形成机制的关键因素之一。

ARB 变形后的 UFG 不是亚晶,而是晶粒,相互之间具有较大的取向差,从边界取向差的意义上来说,它们具有再结晶晶粒的特征。从另一个方面,UFG 组织具有被拉长的形貌,且内部具有位错亚结构,这是变形组织的特征。这些特征可以为在剧塑性变形过程中 UFG 组织的形成机制提供更多的信息,尽管这些机制还没有完全清楚。

5 ARB 技术在镁合金中的研究

大多数关于 ARB 技术的研究集中在钢铁和铝合金方面,采用 ARB 技术制备镁合金材料的报道很少。镁及其合金作为 21 世纪最具潜力的绿色环保结构材料,具有许多优越性,但也有局限性,除了易氧化腐蚀外,镁合金的强度和延性与其他结构材料相比较低(如铝和钢铁),从而限制了镁合金的成形性能^[43-45]。

本文作者采用累积叠轧工艺对 AZ31 镁合金板材

进行了实验研究, 结果表明: ARB 变形对 AZ31 镁合金板材力学性能的影响与其铝合金和钢铁材料的影响不同, AZ31 镁合金板材经过 400 °C ARB 变形后的力学性能如图 12 所示。镁合金轧制板材纵向伸长率小于横向, 是由于 HCP 晶体结构的不对称性和轧制过程中形成的板织构引起的, 文献[46]也得相同的研究结果。由图 12 可看出, 经过 3 道次的累积叠轧, AZ31 镁合金板材的强度略有下降, 但延性得到很大的改善, 且轧制纵向和横向的各向异性减小。这应该与镁合金在 ARB 变形过程中的组织演变和动态再结晶有关, 详细的变形机理正在深入研究中。

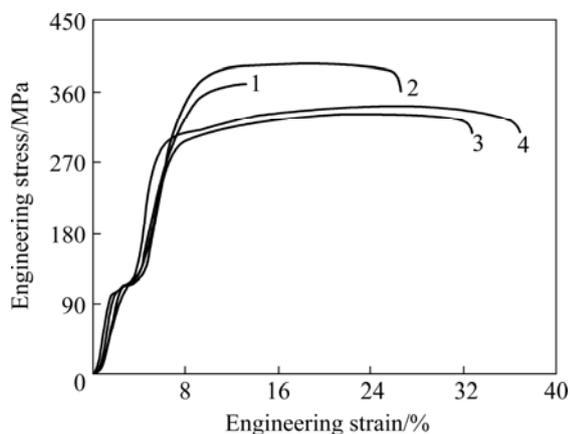


图 12 ARB 变形对 AZ31 板材室温力学性能的影响

Fig.12 Effect of ARB process on mechanical properties of AZ31 magnesium alloy: 1—As-rolled, longitudinal; 2—As-rolled, transversal; 3—ARBed, longitudinal; 4—ARBed, transversal

此外, ARB 变形过程中 AZ31 的晶粒没有象铝合金一样随着应变的增加发生持续的细化(最终细化到 0.5~1.0 μm 左右)。这可归因于 ARB 变形温度的影响: 铝合金延性好, ARB 温度低于 200 °C (小于其再结晶温度), 甚至可以在室温下进行 ARB 变形。而 AZ31 镁合金由于 HCP 的晶体结构的脆性, 200 °C 下进行 ARB 发生了表面裂纹, 通常 ARB 变形的温度为 400 °C^[1], 道次间的加热使细化的晶粒发生明显长大。研究结果表明: 300 °C 下 AZ31 板材经过 3 道次的 ARB 变形, 平均晶粒尺寸约为 1.6~2.0 μm 左右(见图 13)。此后晶粒没有进一步细化, 但组织均匀性有所增加。

6 ARB 技术的应用前景与展望

利用很高的应变, 使晶粒细化到亚微米水平, 从

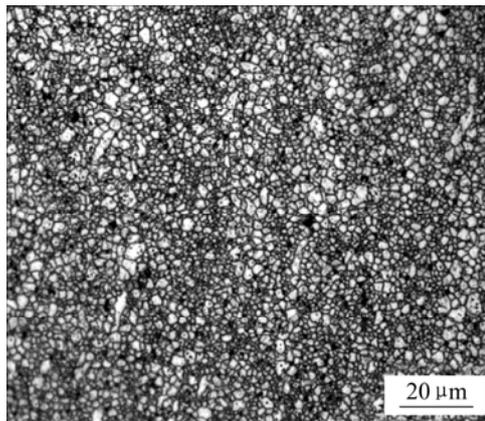


图 13 经过 ARB 变形的 AZ31 镁合金板材的显微组织

Fig.13 Microstructure of ARBed AZ31 magnesium alloy sheet

而改善材料的性能, 这种指导思想是很具有吸引力的, 因为通过这种工艺可以使一些简单的不可热处理强化的合金获得很高的强度, 甚至可以和高合金化材料相媲美, 且由于材料的合金化程度低, 材料可回收性增强, 更加符合绿色环保的要求。但大多数 SPD 工艺有两个主要的局限性^[47-50]: 1) 对成型设备要求高, 要求设备具有较大的载荷能力, 模具价格昂贵; 2) 生产率低, 制备的材料体积小。因此这些工艺不适于工业化生产, 尤其不适于制备大尺寸结构材料, 如板材。而恰恰是大尺寸的结构材料对强度和韧性的要求较高。

与其他 SPD 工艺相比, ARB 技术具有自身突出的优越性, 主要表现在: 1) 成本较低, 工艺简单。仅通过 ARB 变形, 而不需要添加合金元素, 获得 UFG 和高的强度, 具有和高合金化合金相媲美的强度, 这种工艺对于降低生产成本和材料密度以及提高金属材料回收利用性能具有很大的优越性。此外, 该工艺不需要特殊的设备, 由于在金属包覆生产中, 轧制焊合已被广泛应用; 2) 生产率高, 可以生产大尺寸的材料, 容易实现工业化生产。尽管在实验中仅采用宽度为 20 mm 的薄板, 但工业上应用于宽度大的薄板应该不存在困难; 3) 尽管轧制是连续制备大尺寸板材的最优选的工艺, 但是厚度方向的总应变受到限制, 由于随轧制压下量增加, 材料的厚度减小。在 ARB 工艺中, 轧制的材料被切断、层叠, 使其厚度与轧制前相同然后进行轧制, 这样的过程反复进行, 由于反复叠轧在原理上可以进行无数次。因此, 材料在厚度方向可以获得的应变是不受限制的。

ARB 技术具有诱人的应用前景, 但大多数研究集中在变形后材料的组织, 对于在变形中出现的晶粒细

化机理以及工艺参数和材料参数对最终材料组织的影响,以上方面的研究仍然非常不系统,值得进一步深入研究。

近年来,在镁合金晶粒细化方面进行了一些研究,主要是ECAE和快速凝固粉末的挤压,可以制备晶粒尺寸小于1 μm 的材料,然而两者均有局限性,ECAE只能制备小尺寸材料,而粉末冶金-挤压工艺的成本很高^[51]。很多努力致力于制备更高强度和延性的镁合金材料,而开发成本经济、适合于工业推广应用的工艺尤其重要。ARB技术的特点及作者的研究初步表明,ARB工艺是一种很有潜力的制备具有细晶组织的大尺寸镁合金板材、改善镁合金强度和延性的工艺技术,镁合金铸锭组织和ARB变形工艺优化、变形机制及经过ARB变形的细晶镁合金的热稳定性尚待进一步研究。

REFERENCES

- [1] Pérez-Prado M T, del Valle J A, Ruano O A. Grain refinement of Mg-Al-Zn alloys via accumulative roll bonding[J]. Scripta Materialia, 2004, 51(11): 1093-1097.
- [2] Tsuji N, Saito Y, Lee S H, Minamino Y. ARB (Accumulative roll-bonding) and other new techniques to produce bulk ultrafine grained materials[J]. Advanced Engineering Materials, 2003, 5(5): 338-344.
- [3] del Valle J A, Pérez-Prado M T, Ruano O A. Accumulative roll bonding of a Mg-based AZ61 alloy[J]. Mater Sci Eng A, 2005, A410/411: 353-357.
- [4] Prangnell P B, Bowen J R, Apps P J. Ultra-fine grain structures in aluminium alloys by severe deformation processing[J]. Mater Sci Eng A, 2004, A375/377: 178-185.
- [5] Cherukuri B, Nedkova T S, Srinivasan R. A comparison of the properties of SPD-processed AA-6061 by equal-channel angular pressing, multi-axial compressions/forgings and accumulative roll bonding[J]. Mater Sci Eng A, 2005, A410/411: 394-397.
- [6] Saito Y, Utsunomiya H, Tsuji N, Sakai T. Novel ultra-high straining process for bulk materials development of the accumulative roll-bonding(ARB) process[J]. Acta Materialia, 1999, 47(2): 579-583.
- [7] Kumar K S, Van Swygenhoven H, Suresh S. Mechanical behavior of nanocrystalline metals and alloys[J]. Acta Materialia, 2003, 51(19): 5743-5774.
- [8] Huang X, Tsuji N, Hansen N. Microstructural evolution during accumulative roll-bonding of commercial purity aluminum[J]. Mater Sci Eng A, 2003, A340: 265-271.
- [9] Iwahashi Y, Wang J, Horita Z, Nemoto M. Principle of equal-channel angular pressing for the processing of ultra-fine grained materials[J]. Scripta Materialia, 1996, 35(2): 143-146.
- [10] Saito Y, Utsunomiya H, Suzuki H, Sakai T. Improvement in the r -value of aluminium strip by a continuous shear deformation process [J]. Scripta Materialia, 2000, 42(12): 1139-1144.
- [11] Lee J C, Seok H K, Han J H, Chung Y H. Controlling the textures of the metal strips via the continuous confined strip shearing(C2S2) process [J]. Materials Research Bulletin, 2001, 36(5/6): 997-1004.
- [12] Valiev R Z, Langdon T G. Principles of equal-channel angular pressing as a processing tool for grain refinement[J]. Progress in Materials Science, 2006, 51(7): 881-981.
- [13] Furukawa M, Horita Z, Nemoto M, Langdon T G. The use of severe plastic deformation for microstructural control[J]. Mater Sci Eng A, 2002, A324: 82-89.
- [14] Höppel H W, May J, Göken M. Enhanced strength and ductility in ultrafine-grained aluminium produced by accumulative roll bonding[J]. Adv Eng Mater, 2004, 6(4): 219-222.
- [15] Karlík M, Homolaa P, Slámová M. Accumulative roll-bonding: first experience with a twin-roll cast AA8006 alloy[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2004, 378(1/2): 322-325.
- [16] Xing Z P, Kang S B, Kim H W. Softening behavior of 8011 alloy produced by accumulative roll bonding process[J]. Scripta Materialia, 2001, 45(5): 597-604.
- [17] Tsuji N, Toyoda T, Minamino Y. Microstructural change of ultrafine-grained aluminum during highspeed plastic deformation[J]. Mater Sci Eng A, 2003, A350: 108-116.
- [18] Kim H W, Kang S B, Tsuji N. Elongation increase in ultra-fine grained Al-Fe-Si alloy sheets[J]. Acta Materialia, 2005, 53(6): 1737-1749.
- [19] Bowen J R, Prangnell P B, Humphreys F J. Microstructural evolution during formation of ultrafine grain structures by severe deformation[J]. Mater Sci Technol, 2000, 16(11/12): 1246-1250.
- [20] Tsujia N, Iwata T, Sato M. Aging behavior of ultrafine grained Al-2%Cu alloy severely deformed by accumulative roll bonding[J]. Science and Technology of Advanced Materials, 2004, 5(1/2): 173-180.
- [21] Lee S H, Saito Y, Tsuji N, Utsunomiya H, Sakai T. Role of shear strain in ultragrain refinement by accumulative roll-bonding (ARB) process[J]. Scripta Materialia, 2002, 46(4): 281-285.
- [22] Tsuji N, Ueji R, Minamino Y. Nanoscale crystallographic analysis of ultrafine grained IF steel fabricated by ARB process[J]. Scripta Materialia, 2002, 47(2): 69-76.
- [23] Lee S H, Saito Y, Sakai T, Utsunomiya H. Microstructures and mechanical properties of 6061 aluminum alloy processed by accumulative roll-bonding[J]. Mater Sci Eng A, 2002, A325: 228-235.
- [24] Tsuji N, Saito Y, Utsunomiya H. Ultra-fine grained bulk steel produced by accumulative roll-bonding (ARB) process[J]. Scripta Materialia, 1999, 40(7): 795-800.
- [25] Saito Y, Tsuji N, Utsunomiya H, Sakai T, Hong R G. Ultra-fine grained bulk aluminium produced by accumulative roll-bonding (ARB) process[J]. Scripta Materialia, 1998, 39(9): 1221-1227.

- [26] Tsuji N, Ito Y, Saito Y, Minamino Y. Strength and ductility of ultra-fine grained aluminum and iron produced by ARB and annealing[J]. *Scripta Materialia*, 2002, 47(12): 893–899.
- [27] Hayes J S, Kyte R, Prangnell P B. Effect of grain size on the tensile behaviour of a submicron grained Al-3%Mg alloy produced by severe deformation[J]. *Mater Sci Technol*, 2000, 16(11/12): 1259–1263.
- [28] Park K T, Kwon H J, Kim W J. Microstructural characteristics and thermal stability of ultrafine grained 6061 Al alloy fabricated by accumulative roll bonding process[J]. *Mater Sci Eng A*, 2001, A316: 145–152.
- [29] Pérez-Prado M T, del Valle J A, Ruano O A. Achieving high strength in commercial Mg cast alloys through large strain rolling[J]. *Materials Letters*, 2005, 59(29): 3299–3303.
- [30] Kim H W, Kang S B, Xing Z P, Tsuji N, Minamino Y. Texture properties of AA8011 aluminum alloy sheet manufactured by accumulative roll bonding process (ARB) [J]. *Mater Sci Forum*, 2002, 408/412: 727–732.
- [31] Sato M, Tsuji N, Minamino Y, Koizumi Y. Fabrication of surface nanocrystalline aluminum alloys[J]. *Mater Sci Forum*, 2003, 426/432: 2753–2758.
- [32] Truszkowski W, Krol J, Major B. Inhomogeneity of rolling texture in fcc metals[J]. *Metall Trans A*, 1980, 11(5): 749–758.
- [33] Sakai T, Saito Y, Matsuo M, Kawasaki K. Inhomogeneous texture formation in high speed hot rolling of ferritic stainless steel[J]. *ISIJ International*, 1991, 31(1): 86–94.
- [34] Hansen N, Huang X, Uejri R, Tsuji N. Structure and strength after large strain deformation[J]. *Mater Sci Eng A*, 2004, A387/389: 191–194.
- [35] Li B L, Tsuji N, Kamikawa N. Microstructure homogeneity in various metallic materials heavily deformed by accumulative roll-bonding[J]. *Mater Sci Eng A*, 2006, A423: 331–342.
- [36] Sevillano J G, van Houtte P, Aernoudt E. Large strain work hardening and textures[J]. *Prog Mater Sci*, 1980, 25(2/4): 69–134.
- [37] Hughes D A, Hansen N. High angle boundaries formed by grain subdivision mechanisms[J]. *Acta Materialia*, 1997, 45(9): 3871–3886.
- [38] Bay B, Hansen N, Hughes D A, Kuhlmann-Wilsdorf D. Evolution of f.c.c. deformation structures in polyslip[J]. *Acta Metall Mater*, 1992, 40(2): 205–219.
- [39] Iwahashi Y, Furukawa M, Horita Z, Nemoto M, Langdon T G. Microstructural characteristics of ultrafine grained aluminum processed using equal channel angular pressing[J]. *Metall Mater Trans A*, 1998, 29: 2245–2252.
- [40] Iwahashi Y, Horita Z, Nemoto M, Langdon T G. The process of grain refinement in equal-channel angular pressing[J]. *Acta Materialia*, 1998, 46: 3317–3331.
- [41] Malin A S, Hatherly M. Microstructure of cold-rolled copper [J]. *Metal Sci*, 1979, 13: 463–472.
- [42] Valiev R Z, Ivanisenko Y V, Rauch E F, Baudelet B. Structure and deformation behaviour of Armco iron subjected to severe plastic deformation[J]. *Acta Materialia*, 1996, 44(12): 4705–4712.
- [43] Mukai T, Yamanoi M, Watanabe H, Higashi K. Ductility enhancement in AZ31 magnesium alloy by controlling its grain structure [J]. *Scripta Materials*, 2001, 45(1): 89–94.
- [44] Drozd Z, Trojanová Z, Kúdela S. Deformation behaviour of Mg-Li-Al alloys [J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2004, 378(1/2): 192–195.
- [45] Agnew S R, Horton J A, Lillo T M, Brown D W. Enhanced ductility in strongly textured magnesium produced by equal channel angular processing [J]. *Scripta Materialia*, 2004, 50(3): 377–381.
- [46] 汪凌云, 范永革, 黄光杰, 黄光胜, 潘复生, 刘正宏. AZ31B 镁合金板材的组织[J]. *材料研究学*, 2004, 18(5): 466–470.
WANG Ling-yun, FAN Yong-ge, HUANG Guang-jie, HUANG Guang-sheng, PAN Fu-sheng, LIU Zheng-hong. Texture of AZ31B magnesium alloy sheets [J]. *Chinese Journal of Materials Research*, 2004, 18(5): 466–470.
- [47] Valiev R Z, Islamgaliev R K, Alexandrov I V. Bulk nanostructured materials from severe plastic deformation [J]. *Progress in Materials Science*, 2000, 45(2): 103–189.
- [48] 周晓龙, 陈敬超, 孙加林, 张昆华, 杜焰. AgSnO₂ 触头材料的反应合成制备与大塑性变形加工[J]. *中国有色金属学报*, 2006, 16(5): 829–834.
ZHOU Xiao-long, CHEN Jing-chao, SUN Jia-lin, ZHANG Kun-hua, DU Yan. Reactive synthesis and severe plastic deformation of AgSnO₂ contact materials [J]. *The Chinese Journal of Nonferrous Metals*, 2006, 16(5): 829–834.
- [49] Segal V M. Materials processing by simple shear [J]. *Mater Sci Eng A*, 1995, A197: 157–164.
- [50] Kim H S. Finite element analysis of high pressure torsion processing [J]. *Journal of Materials Processing Technology*, 2001, 113(1/3): 617–621.
- [51] Pérez-Prado M T, Del Valle J A, Contreras J M, Ruano O A. Microstructural evolution during large strain hot rolling of an AM60 Mg alloy [J]. *Scripta Materialia*, 2004, 50(5): 661–665.

(编辑 李艳红)