

文章编号: 1004-0609(2006)12-2054-06

连续 ECAP 技术制备超细晶铝^①

陈彦博¹, 赵晶磊¹, 李英龙¹, 宋 丹², 温景林¹

(1. 东北大学 材料与冶金学院, 沈阳 110006; 2. 东北大学 测试中心, 沈阳 110006)

摘 要: 探讨一种连续等通道角挤压 (ECAP) 新技术, 实现了纯铝的无限长度连续大变形, 制备出具有超细晶结构的金属材料。组织和性能检测表明: 在连续 ECAP 变形一道次后, 在晶粒内部形成了直径为 650~900 nm 且内部基本无位错的亚晶, 但部分大晶粒内部仍存在高密度的位错网, 材料硬度提高了 87%; 经过 4 道次连续 ECAP 变形后, 亚晶并未进一步细化, 但亚晶界趋于平直、清晰, 且亚晶内部基本未见位错组织, 材料硬度提高也不显著; 与传统 ECAP 相比, 连续 ECAP 工艺由于具有较高的变形区温度, 促进了晶内位错的反应即动态回复过程, 较早形成了平直清晰的亚晶结构, 同时伴随每道次变形过程的动态回复也降低了最后晶格中累积的能量, 使变形两道次后的组织和性能变化不显著。

关键词: 铝; 超细晶; 晶界; 亚晶; 连续等通道角挤压

中图分类号: TG 146.2

文献标识码: A

Preparation of ultrafine grained aluminium by continuous equal channel angular pressing

CHEN Yan-bo¹, ZHAO Jing-lei¹, LI Ying-long¹,
SONG Dan², WEN Jing-lin¹

(1. School of Materials and Metallurgy, Northeastern University, Shenyang 110006, China;
2. Test center, Northeastern University, Shenyang 110006, China)

Abstract: A new continuous equal channel angular pressing (ECAP) technique was developed and successfully produced unlimited length of pure aluminum with ultrafine grain. After one ECAP deformation pass, profuse subgrains with the size of 650~900 nm are formed, few dislocations can be found inside the subgrains, but high density dislocation networks still are observed in some grains, the hardness of material increases 87%. After four ECAP deformation passes, the sizes of subgrains change little, but the subgrain boundary becomes straight and thinner, the increment of hardness is insignificant. Compared with the traditional ECAP technology, much higher temperature in deformed zone during the continuous ECAP deformation accelerate the process of dynamic recovery, so many clear subgrains form even after one ECAP deformation pass, the microstructures and hardness change little with the increase of ECAP deformation passes.

Key words: aluminium; ultrafine grain; grain boundary; subgrain; continuous equal channel angular pressing

纳米及亚微米级超细晶金属材料具有一系列常规材料所不具备的优越物理和机械性能, 近年来得到了材料科学界的广泛关注^[1-3]。大塑性变形手段可以有效地制备内部无孔隙、无夹杂的块体超细晶

材料, 具有很好的工业应用前景, 目前相关研究开展较为广泛, 主要有叠轧、压力扭转、等通道角挤压及多次锻造等^[4-6]。其中等通道角挤压 (ECAP) 技术最具有工业应用前景, 它最早出现于 20 世纪 80

① 基金项目: 辽宁省自然科学基金资助项目 (20042014)

收稿日期: 2006-06-28; 修订日期: 2006-10-08

通讯作者: 陈彦博; 电话: 024-83686459; E-mail: chenyb@smm.neu.edu.cn

年代,可以在一道次变形中对金属施加很大的剪切变形,且变形前后材料截面形状不发生变化,因此可以反复进行多次变形以获得超细晶组织^[5, 7]。由于 ECAP 技术可以制备大块体无孔隙的超细晶金属材料,近年发展很快,已经成功应用于铝及铝合金、镁合金、铜、钨合金、钛及钛合金等多种有色金属及合金中^[8~13]。

然而,传统的 ECAP 技术存在一些限制,为了保证变形过程中压杆不弯曲,被加工材料的长度受到限制,这种材料长度的限制使 ECAP 工艺无法连续进行,效率低,且由于要截除变形不均的头尾部分,进一步提高了生产成本,阻碍了 ECAP 技术的工业应用。很多研究机构和学者就连续大变形生产超细晶金属材料的工艺和技术做了一些有益的探索,如应用于薄板和线材的重复弯曲矫直工艺(RCS),但存在细化晶粒效率较低的缺点^[6]。连续强制带材剪切法(C2S2)也得到了广泛关注,应用于超细晶薄带材和板材的制备^[14~15]。应用于大体积棒材的连续大变形工艺报道很少。俄罗斯的 Raab 等^[15]报道了一种 ECAP-Conform 工艺,该工艺结合传统 ECAP 工艺和连续挤压技术,以摩擦力为驱动力,摆脱了坯料长度的限制,能够连续制备具有超细晶结构的金属棒材,具有很好的工业应用前景。

本文作者采用纯铝为实验材料,利用自行设计和制造的设备进行了连续 ECAP 挤压变形实验,并初步探讨了连续 ECAP 制备超细晶铝的工艺条件与变形机理。

1 实验

实验采用的工艺原理如图 1 所示。由图 1 可见,圆柱形的驱动轮表面开有方槽,模具的表面为弧形,与驱动轮配合,形成空腔,挤压坯料被置于空腔中,驱动轮旋转时,方槽的内表面与坯料表面间的摩擦力驱动坯料运动,通过 ECAP 模具,实现连续的 ECAP 挤压。实验设备的驱动轮直径为 300 mm,驱动轮表面方槽尺寸为 10 mm × 10 mm,ECAP 模具的 ϕ 角采用常规的 90°。

实验材料为工业纯铝 1050。坯料横截面尺寸为 10 mm × 10 mm,长度为 2~3 m,挤压前进行 345 °C,4 h 的退火,以获得完全再结晶组织。连续 ECAP 变形在常温下进行,变形方式采用常用的 Bc 挤压路径,即每道次间试样绕纵轴顺时针旋转 90°。测试了挤压 1~4 道次试样 4 个表面及横截面的显

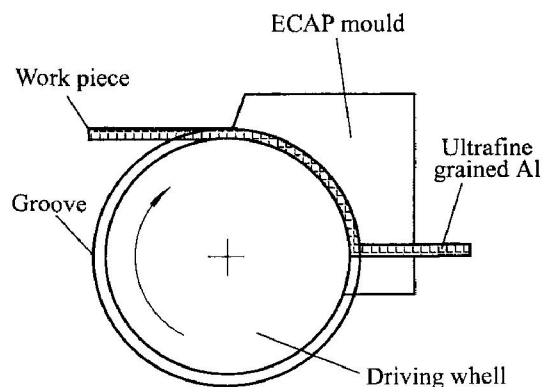


图 1 连续 ECAP 实验设备示意图

Fig 1 Schematic diagram of continuous ECAP facility

微硬度,维氏硬度在 450SVD 型维氏硬度仪上进行,载荷 49 N,保荷时间为 15 s,每个状态取 5 个平均值。在 Tecnai G220 型透射电子显微镜(TEM)上观察位错组态和亚晶形貌,操作电压为 200 kV。进行 TEM 观察的试样经机械减薄至 50 μm 后,进行双喷减薄,电解液为 30% 硝酸甲醇溶液,温度为 -30 °C。

2 结果与讨论

图 2 所示为连续 ECAP 变形一道次后的 TEM 像,TEM 试样截面垂直于挤压轴线。由图 2 中可以看出,晶粒内部已普遍形成了清晰的位错胞状结构,大量缠结的位错堆积在一起形成位错墙,且其内部基本观察不到位错,位错胞的形状很不规则,仍然可以看出拉长的变形组织的迹象(图 2(a)和(b)),在胞状结构内可清楚地观察到位错向晶界运动(图 2(b));在局部晶粒内部可看到较完整的等轴亚晶(图 2(c)),这些位错胞和亚晶尺寸为 0.65~0.9 μm 。仍可以观察到组织中存在一些尺寸相对较大的亚晶(>1.5 μm),在其内部存在高密度的位错网络结构(图 2(d))。由图 2(a)中的 SAD 像可看出,晶粒间错排度不大,以亚晶和小角度晶界为主。

通过以上观察可以看出,在连续 ECAP 变形后,剧烈的剪切变形在组织内部产生很大的应变,促使生成大量高密度缠结的位错。随着变形的继续,这些高能位错在应力作用下运动并发生反应,逐渐在晶粒内部形成了胞状结构,部分晶粒内部位错反应较为完全,形成了亚晶。

图 3 所示为连续 ECAP 变形一道次后试样纵向的 TEM 像。图 3(a)所示为近表面处的组织,可

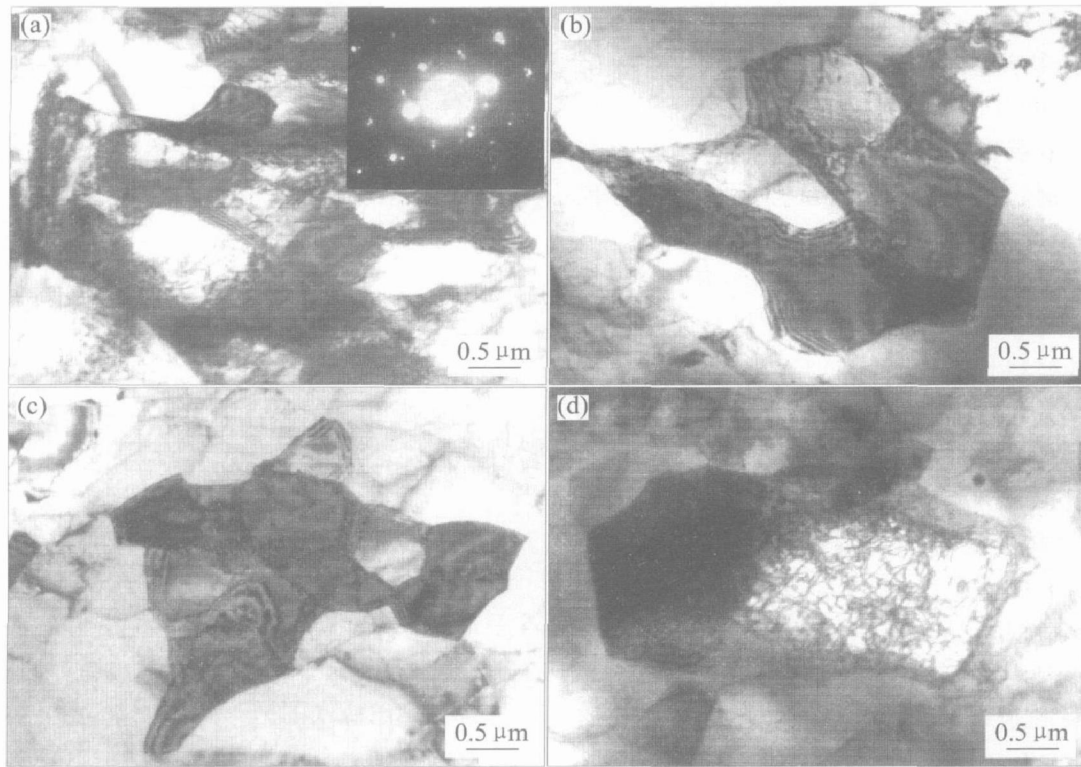


图 2 连续 ECAP 变形一道次后横向近表面的 TEM 像

Fig. 2 TEM images of transverse microstructures after one pass of continuous ECAP deformation

(a) —Cell structure inside grain and SAD pattern; (b) —Movement of dislocation;
(c) —Subgrain structure; (d) —High density dislocations inside big grain

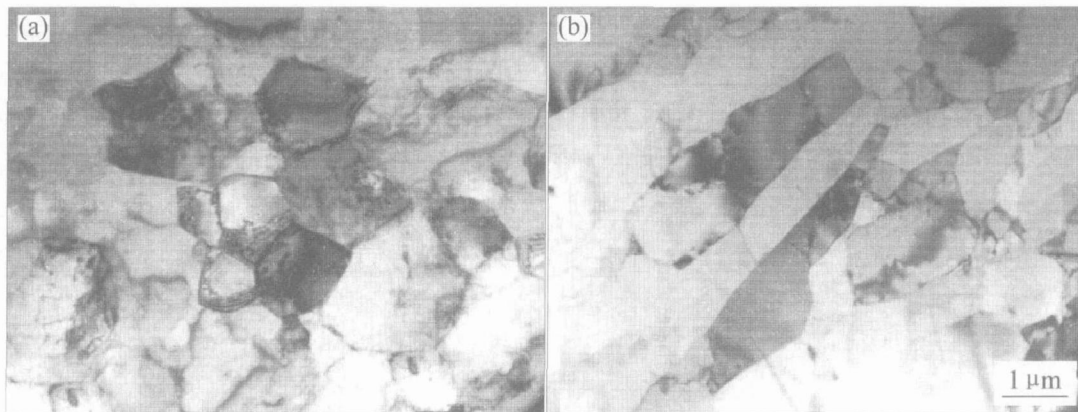


图 3 连续 ECAP 变形一道次后纵向近表面的 TEM 像

Fig. 3 TEM images of longitudinal microstructures after one pass of continuous ECAP deformation

(a) —Near the surface; (b) —In central parts

看出晶粒内部普遍存在较完整的细小的亚晶，在亚晶界处堆积了大量的位错，但在晶粒内部没有观察到位错网格存在。这是由于连续旋转剪切工艺中，驱动轮轮槽内表面与金属表面存在剧烈的摩擦作用，使试样表面的金属经受了比内部金属更大的应变，较大的能量使表面处的位错反应比内部更加完

全，基本消除了晶粒内部的位错网。图 3(b) 所示为心部组织。由图 3(b) 中可看出，试样心部的组织中仍以亚晶为主，但与横向和表面组织不同的是，晶粒存在比较明显的取向性和拉长现象，晶粒取向大致与挤压轴线成 45° 角。这也说明由于挤压工艺的影响，材料的表面和内部存在组织不均匀现象。

表 1 所列为实验材料经过一道次连续 ECAP 变形后的维氏硬度, 其中 *A*、*B*、*C* 和 *D* 为平行于挤压轴线的位置, *E* 为垂直于挤压轴线的横截面测试区。经连续 ECAP 处理后, 表面硬度与横截面硬度基本相同, 从 TEM 组织观察也可看出, 虽然表面组织和横截面组织局部存在一些差异, 但基本上以尺寸小于 1 μm 的亚晶为主。

表 1 连续 ECAP 变形一道次后试样表面与横截面硬度

Table 1 Hardness of surface and transverse after one pass of continuous ECAP deformation

Position	Hardness, HV
<i>A</i>	45
<i>B</i>	44
<i>C</i>	43
<i>D</i>	46
<i>E</i>	43

图 4 所示为连续 ECAP 变形二道次后试样横截面的 TEM 像。由图 4 可看出, 与第一道次相比, 晶粒中的亚结构发展更为完善, 基本以等轴的亚晶为主, 亚晶尺寸在 0.8 μm 左右, 并没有进一步细化, 且在晶粒内部完全观察不到位错网格结构和拉长的晶粒等变形组织的痕迹。这说明随着剪切应变量的增加, 晶粒内部的位错继续反应, 经过两道次挤压后, 已经在晶粒内部形成了大量的完整亚晶。

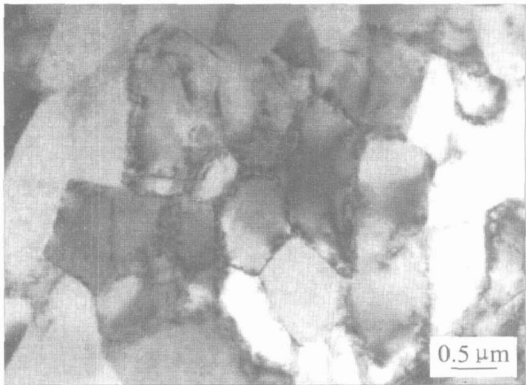


图 4 二道次变形横截面 TEM 像

Fig. 4 TEM image of two pass continuous ECAP materials

图 5 所示为连续 ECAP 变形二道次后试样表面和中心部位的 TEM 像。由图 5 可看出, 平行面表面部位的组织以等轴晶为主(图 5(a)), 但平行面中心部位仍可观察到具有一定取向性的拉长晶粒, 其与挤压轴线成 45°(图 5(b))。在拉长的晶粒内部, 仍然是普遍存在的亚晶结构, 与挤压一道次不

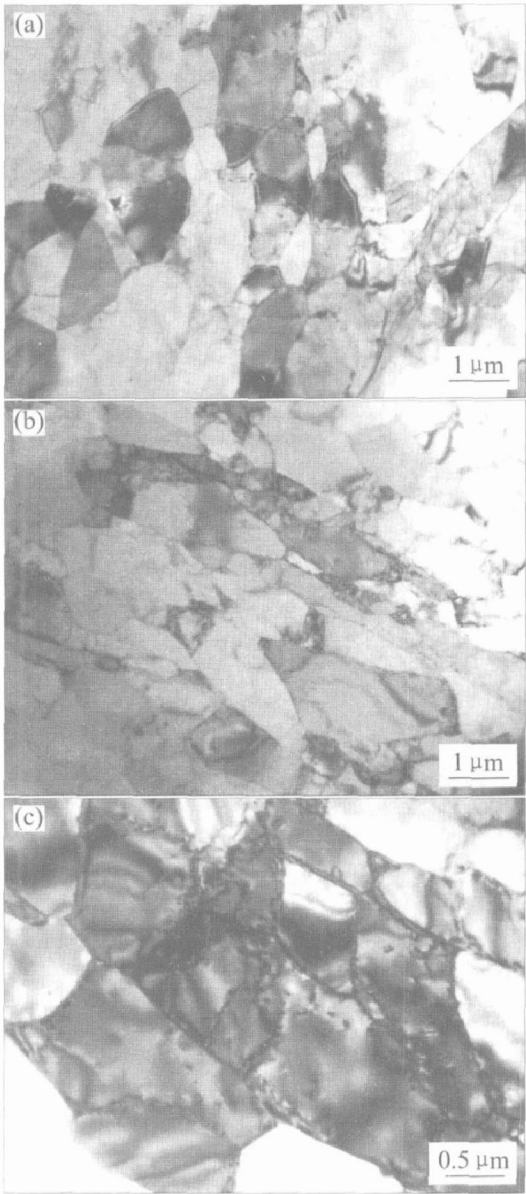


图 5 连续 ECAP 变形二道次后纵向 TEM 像

Fig. 5 TEM images of longitudinal microstructures after two pass of continuous ECAP deformation

(a) —Near the surface; (b), (c) —Center

同, 此时的亚晶界已经相对平直、纤细(图 5(c))。

图 6 所示为连续 ECAP 变形 4 道次后的 TEM 像。由图 6 可看出, 经过 4 道次挤压后, 晶粒并没有进一步细化, 由 SAD 像可以看出, 与挤压一道次相比, 晶粒间的错排度并没有进一步升高, 仍然维持与挤压一道次后的相当水平(图 6(a)), 以小角度晶界和亚晶为主。与常规 ECAP 工艺的结果不同。且在经过 4 道次挤压后, 个别晶粒内部仍然有一定的位错存在(图 6(b))。

图 7 所示为连续 ECAP 变形不同道次后, 试样横截面的显微硬度的变化。由图 7 可以看出, 连续 ECAP 变形使试样的显微硬度比变形前有显著提

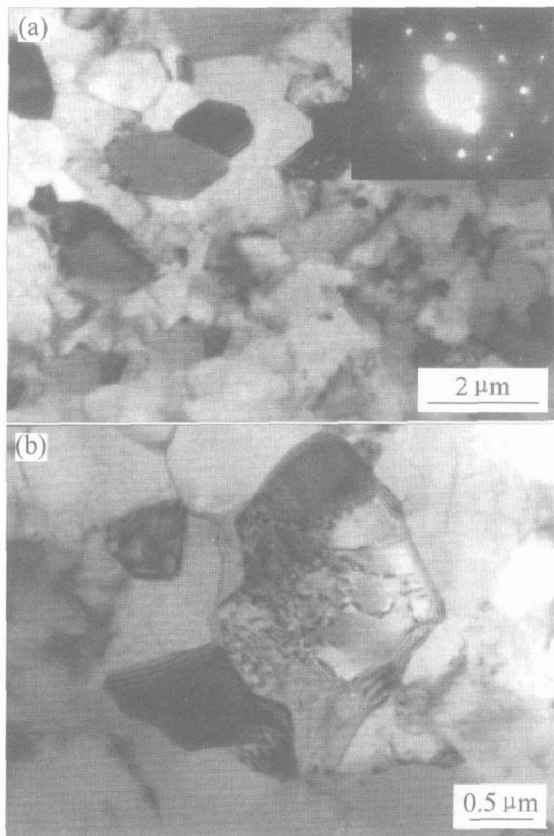


图 6 连续 ECAP 变形四道次后横截面的 TEM 像

Fig. 6 TEM images of transverse microstructures after four passes of continuous ECAP deformation

(a) —Microstructure and SADPs;
(b) —Dislocation in grain

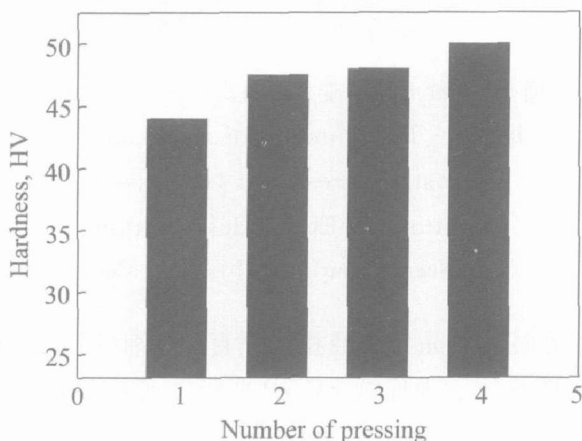


图 7 不同挤压道次横截面硬度

Fig. 7 Hardness of different pressing number

高,但随着挤压道次的增加,试样的显微硬度提高幅度不大。

从以上实验结果可以看出,与常规 ECAP 工艺类似,连续 ECAP 工艺可以有效细化纯铝的晶粒,经过一道次加工后,晶粒内部普遍形成了尺寸为 650~900 nm 的亚结构,在晶界和亚晶界处存在大

量位错堆积;但是在少数大尺寸晶粒($> 1.5 \mu\text{m}$)内部仍存在高密度的位错网格。纵向面的情况略有不同,晶粒被明显拉长,同时与挤压轴线成 45° 角,这与文献中的描述是一致的^[16]。文献[10]和[16]的结果表明,一般 ECAP 工艺中,纯铝一道次变形组织中大量晶粒内部都存在密度较高的位错组织,但在连续 ECAP 工艺中,无论是横截面或纵向面,亚晶内部位错数量都很少,只是在少数较大尺寸的晶粒中才存在高密度的位错网格。分析其原因,由于在连续 ECAP 工艺中,坯料在摩擦力作用下进入变形区,受到摩擦力剧烈作用,因此产生较大热量,且实验采用的挤压速度为 40 mm/s,大大高于文献中采用的挤压速度,导致变形区产生大量变形热,这些都使最终的变形温度较高,实验中实际测得的纯铝挤出后表面温度为 500 K,较高的温度非常有利于位错的运动与反应,极大促进了纯铝动态回复过程的发生,因此与文献相比,在挤压一道次时,就已经形成了大量的内部基本无位错的亚晶结构,而只有少量大晶粒内部留存高密度位错网结构。

在变形 2、3 道次时,随着应变的增加,晶粒并未进一步细化,但是少数内部存在高密度位错网结构的大晶粒消失,直到挤压 4 道次,材料显微组织依然为直径为 650~900 nm 的亚晶结构,但与一道次相比,亚晶界趋于平直、清晰,亚晶内基本没有位错存在。但仍然没有形成以大量大角晶界为主的细晶组织,这从图 2(a) 和 6(a) 中的 SAD 图像可以看出。这是由于连续 ECAP 工艺变形温度较高,利于动态回复过程的进行,导致每道次变形都伴随了较大程度的动态回复,有利于在晶粒内部位错反应生成亚结构,同时也由位错反应释放了大部分晶格内的能量,这就使多道次挤压时,后一道次应变从一个晶内位错密度和能量相对较低的水平开始,因此随着变形道次的增加,并没有累积足够的能量形成大量大角晶界,在变形 4 道次后,材料仍然以亚晶和小角度晶界为主,为了形成大角晶界为主的组织,应设法降低变形区温度。

3 结论

1) 连续 ECAP 工艺可以有效连续细化纯铝的显微组织,制备长度无限制的细晶金属棒材。

2) 连续 ECAP 工艺挤压的材料存在表面和内部组织的不均匀现象,但对性能无明显影响。

3) 与常规 ECAP 相比,连续 ECAP 工艺变形一道次时就可以形成大量的亚晶组织,同时只在部

分大晶粒内部存在高密度位错网格。

4) 变形一道次以后, 随着应变的增加, 组织与性能的变化并不明显, 这是由于较高的变形区温度促进了金属的动态回复过程, 释放了能量。

REFERENCES

- [1] Chen M W, Ma E, Hemker K J, et al. Deformation twinning in nanocrystalline aluminum [J]. *Science*, 2003, 300(5): 1275 - 1277.
- [2] Champion Y, Langlois C, Guerir-Mailly S, et al. Near-perfect elastoplasticity in pure nanocrystalline copper[J]. *Science*, 2003, 300(2): 310 - 311.
- [3] Kumar K S, Swygenhoven H V, Suresh S. Mechanical behavior of nanocrystalline metals and alloys[J]. *Acta Mater*, 2003, 51(19): 5743 - 5774.
- [4] 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.
- [5] 刘咏, 唐志宏, 周科朝, 等. 纯铝等径角挤技术(I)——显微组织演化[J]. *中国有色金属学报*, 2003, 13(1): 21 - 26.
LIU Yong, TANG Zhihong, ZHOU Kechao, et al. Equal channel angular pressing process (ECAP) of pure Al(I)——microstructure evolution[J]. *The Chinese Journal of Nonferrous Metals*, 2003, 13(1): 21 - 26.
- [6] Huang J Y, Zhu Y T, Jiang H, et al. Microstructures and dislocation configurations in nanostructured Cu processed by repetitive corrugation and straightening[J]. *Acta Mater*, 2001, 49(9): 1497 - 1505.
- [7] 郝南海, 王全聪. 等径侧向挤压变形均匀程度的有限元分析[J]. *中国有色金属学报*, 2001, 11(S2): 230 - 233.
HAO Nanhai, WANG Quancong. Finite element analysis of deformation uniformity of equal cross section lateral extrusion[J]. *The Chinese Journal of Nonferrous Metals*, 2001, 11(S2): 230 - 233.
- [8] 覃继宁, 张荻, 张国定, 等. 6061 铝合金 ECAP 变形后退火组织稳定性和织构变化[J]. *中国有色金属学报*, 2005, 15(4): 519 - 523.
QIN Jining, ZHANG Di, ZHANG Guo-ding, et al. Microstructure and texture Change in equal channel angular pressed 6061 aluminum sheet by static annealing[J]. *The Chinese Journal of Nonferrous Metals*, 2005, 15(4): 519 - 523.
- [9] Gubicza J, Balogh L, Hellmig R J, et al. Dislocation structure and crystallite size in severely deformed copper by X-ray peak profile analysis[J]. *Mater Sci Eng A*, 2005, A400 - 401: 334 - 338.
- [10] Iwahashi Y, Horita Z, Nemoto M, et al. An investigation of microstructural evolution during equal-channel angular pressing[J]. *Acta Mater*, 1997, 45(11): 4733 - 4741.
- [11] Matsubara K, Miyahara Y, Horita Z, et al. Developing superplasticity in a magnesium alloy through a combination of extrusion and ECAP[J]. *Acta Mater*, 2003, 51(11): 3073 - 3084.
- [12] Shin D H, Kim I, Kim J, et al. Microstructure development during equal-channel angular pressing of titanium[J]. *Acta Mater*, 2003, 51(4): 983 - 996.
- [13] Zhilyaev A P, Kim B K, Szpunar J A, et al. The microstructural characteristics of ultrafine-grained nickel[J]. *Mater Sci Eng A*, 2005, A391(2): 377 - 389.
- [14] Lee J C, Seok H K, Suh J Y. Microstructural evolutions of the Al strip prepared by cold rolling and continuous equal channel angular pressing[J]. *Acta Mater*, 2002, 50(16): 4005 - 4019.
- [15] Raab G J, Valiev R Z, Lowe T C, et al. Continuous processing of ultrafine grained Al by ECAP-Conform[J]. *Mater Sci Eng A*, 2004, A382: 30 - 34.
- [16] Iwahashi Y, Horita Z, Nemoto M, et al. The process of grain refinement in equal-channel angular pressing[J]. *Acta Mater*, 1998, 46(9): 3317 - 3331.

(编辑 李艳红)