

文章编号: 1004-0609(2005)01-0066-06

Al-5.8% Cu 合金半固态浆料的控制熔化制备法^①

王晓颖^{1, 2}, 介万奇², 李言祥¹

(1. 清华大学 机械工程系, 北京 100084;

2. 西北工业大学 凝固技术国家重点实验室, 西安 710072)

摘 要: 研究了具有枝晶组织的 Al-5.8% Cu 合金在控制熔化过程中固相形态的演变, 以及加热速率、保温时间对固相形态演变的影响。分析了影响熔化组织中固相形态的因素, 提出由枝晶组织直接获得适合半固态成形的球晶组织的控制熔化工艺, 并制备了固相颗粒圆整、尺寸较小、分布均匀的半固态浆料。

关键词: 控制熔化; 半固态; 组织演变

中图分类号: TG 148

文献标识码: A

Preparation of Al-5.8% Cu alloy semi-solid slurry by controlled melting

WANG Xiao-ying^{1, 2}, JIE Wang-qi², LI Yan-xiang¹

(1. Department of Mechanical Engineering, Tsinghua University, Beijing 100084, China;

2. State Key Laboratory of Solidification Process,
Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, China)

Abstract: The microstructure evolution of a dendritic Al-5.8% Cu alloy during controlled heating and re-melting process was investigated. Attention has been paid to the effects of heating rate and holding time on the morphology changing of solid grains during re-melting. Based on the analysis of the factors influencing morphology of the melting grains, a new method to prepare semi-solid slurry by controlling as-cast microstructure and melting process was proposed. And a semi-solid slurry was successfully obtained by using the new method.

Key words: controlled melting; semi-solid; microstructure evolution

半固态加工 (Semi-solid processing)^[1, 2] 经过 30 年的发展, 已经成为一项极具优势的近终成形技术, 尤其适用于汽车工业中铝、镁铸件的生产。与传统的加工工艺如铸造、锻造相比, 半固态加工的优势与特点在于加工对象为具有非枝晶固相颗粒的半固态浆料, 因此整个工艺的关键是制备具有细小、圆整固相颗粒的半固态浆料。制备方式通常为机械搅拌^[3]、电磁搅拌^[4]及应变诱发激活^[5]等, 但是这些制备方式涉及到熔体污染、设备复杂和成本昂贵等问题, 一定程度上阻碍了半固态加工技术实用化的发展。国内外一些科研工作者致力于开发简单经济的半固态浆料制备方法, 如倾斜板法^[6]、液

相线铸造^[7]、再熔融加热法^[8]等。与搅拌制浆一样, 这几种方法也是通过改变凝固时的形核和生长过程来获得半固态浆料。

本文作者提出了一种通过控制熔化过程, 由枝晶组织合金直接制备具有球形固相的半固态浆料的新方式。这里, 熔化不再仅仅是一个通常意义上的自然过程, 而是一个通过精确控制加热速率、加热温度和保温时间等一系列过程参数从而控制熔化组织或熔体结构的过程, 并将这样的熔化过程称之为控制熔化^[9]。同时研究了具有普通凝固组织的合金在加热重熔过程中固相形态的演变以及加热速率、保温时间对固相组织形态演变的影响, 分析了影响

① 收稿日期: 2004-05-25; 修订日期: 2004-10-15

作者简介: 王晓颖(1971-), 女, 博士。

通讯作者: 王晓颖, 博士; 电话: 010-62773640; E-mail: wang-xy@mail.tsinghua.edu.cn

熔化过程中固相形态的因素。对控制加热工艺进行优化, 制备了合格的半固态浆料。

1 实验

实验材料为 Al-5.8% Cu 合金, 由电解铜 (99.99%) 和纯铝 (99.99%) 熔配而成, 金属型浇注。由于设备的限制, 熔化过程中组织形貌的变化很难直接观察到, 实验中采用液淬的方式将高温状态下的组织、成分分布等特点尽可能地保留至室温, 进行间接的观察和测试^[10, 11]。揭示加热过程中固相组织形貌与温度的关系需要大量的实验, 受定向凝固实验的启发, 设计了“定向熔化”实验装置来研究实验合金随温度升高的组织演化过程, 该装置的工作原理如图 1 所示。调整炉体移动速度, 可以使试样获得不同的加热速率。淬火后的试样沿轴向剖开, 磨平, 抛光, 观察组织沿轴向的变化, 研究不同熔化阶段的组织形态。

2 结果与分析

2.1 Al-5.8%合金熔化过程的组织演变

图 2 所示为不同温度下 Al-5.8% Cu (质量分数) 合金的金相组织, 加热速率为 16.5 K/min。铸

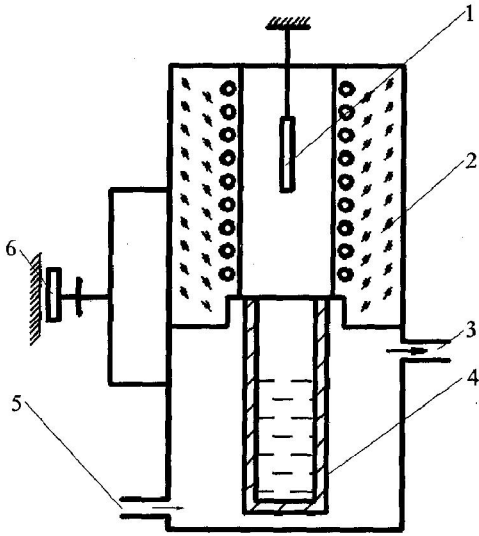


图 1 定向熔化实验装置工作原理图
Fig. 1 Schematic diagram of directional melting equipment
1—Specimen; 2—Gradient temperature furnace; 3—Outlet; 4—Quenching tank; 5—Inlet; 6—Motion control system

态组织如图 2(a) 所示, 一定数量的非平衡共晶分布在晶界和枝晶臂间, 为典型的枝晶组织。加热过程中, 非平衡共晶扩散溶解, 到达共晶温度 (548 °C) 后未溶解的非平衡共晶熔化。未熔化的固相晶粒形态具有枝晶特征, 枝晶臂间的非平衡共晶熔化形成

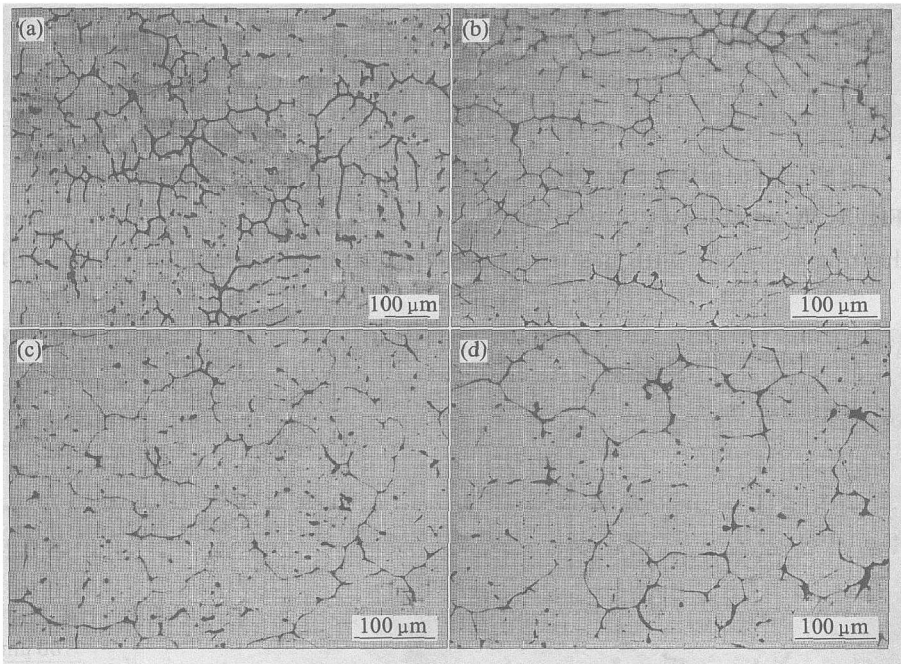


图 2 Al-5.8% Cu 合金枝晶试样熔化过程中的液淬组织
Fig. 2 Quenched microstructures of dendritic Al-5.8% Cu alloy during heating process at heating rate of 16.5 K/min
(a) —As cast; (b) —545 °C; (c) —580 °C; (d) —620 °C

的液滴孤立地分布在晶粒内,如图 2(c)所示。温度升高,液相向固相推进,同时固相内又有新的液相形成,将晶粒分隔成更小的固相晶粒,如图 2(d)所示。可以看出,620 ℃时的晶粒有球化趋势,但未完全球化。

2.2 加热速率的影响

将试样分别以 2.5 K/min 和 200 K/min 的速率加热至接近共晶熔化温度,淬火组织中的非平衡共晶如图 3 所示。不同的加热速率对非平衡共晶的数量和形态影响很大。以 2.5 K/min 加热的组织中大部分非平衡共晶已扩散溶解,剩余小部分呈短薄片状分布在基体中,而以 200 K/min 快速加热的非平衡共晶与原始组织相比,只有少量溶解,大部分仍然连续地分布在晶界上。

图 4 所示为试样加热至 620 ℃时形成的固液混合的半固态组织。可以看出,以 2.5 K/min 加热时,晶粒间的液相层较薄,大量的液相以孤立液滴的形式分布在固相中。以 200 K/min 加热时,基本

保持了未加热前原始组织的形态特征,非平衡共晶原位熔化,枝晶间少量的液相尚未球化。

将试样以不同速率加热至 620 ℃,分别保温 15 min 和 30 min 后液淬,金相组织如图 5 所示。显然,以 2.5 K/min 和 200 K/min 加热的试样在 620 ℃经 30 min 保温后均能获得较为理想的球晶组织,固相晶粒圆整,周围液相分布均匀,但以 2.5 K/min 加热的试样组织的圆整程度以及液膜的分布比 200 K/min 加热的试样更为理想。经 15 min 保温后,以 2.5 K/min 加热的试样可以获得球晶组织,快速加热的试样中固相未能完全球化,即加热速率小的试样,其组织更容易球化。

2.3 熔化组织形态的影响因素

理想的半固态成形用的浆料组织应该是细小、圆整的固相颗粒均匀地分布在液相中,这包括了评价半固态组织的 3 个方面:固相尺寸、固相形态和固相颗粒的分布。利用控制熔化法制备半固态浆料,固相尺寸、形态和分布则主要取决于熔化过程

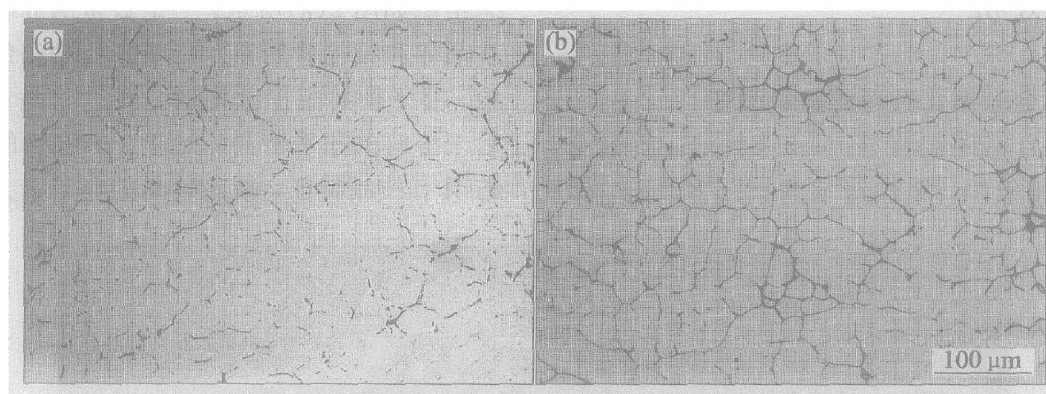


图 3 以不同加热速率加热到 545 ℃的 Al-5.8% Cu 合金组织的非平衡共晶照片

Fig. 3 Morphologies of non-equilibrium eutectic of Al-5.8% Cu alloy after heating to 545 ℃ with heating rates of 2.5 K/min (a) and 200 K/min (b)

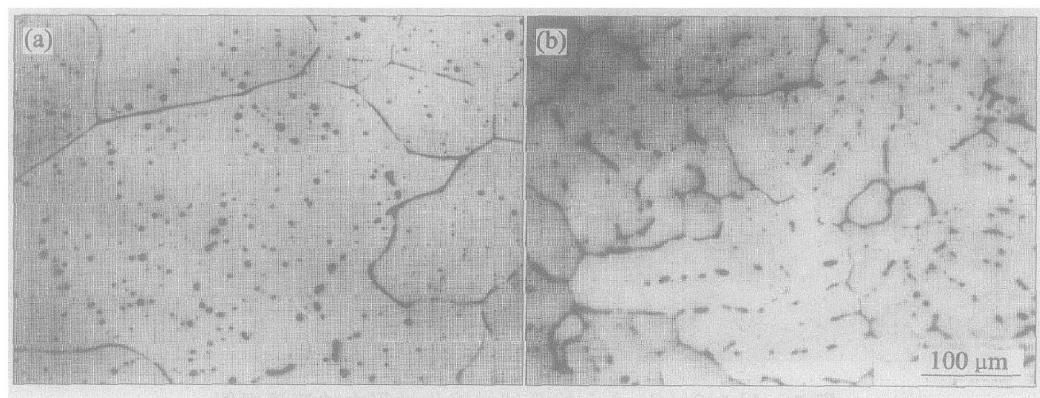


图 4 以不同速率加热至 620 ℃的 Al-5.8% Cu 合金的液淬组织

Fig. 4 Quenched microstructures of dendritic Al-5.8% Cu alloy after heating to 620 ℃ with heating rates of 2.5 K/min (a) and 200 K/min (b)

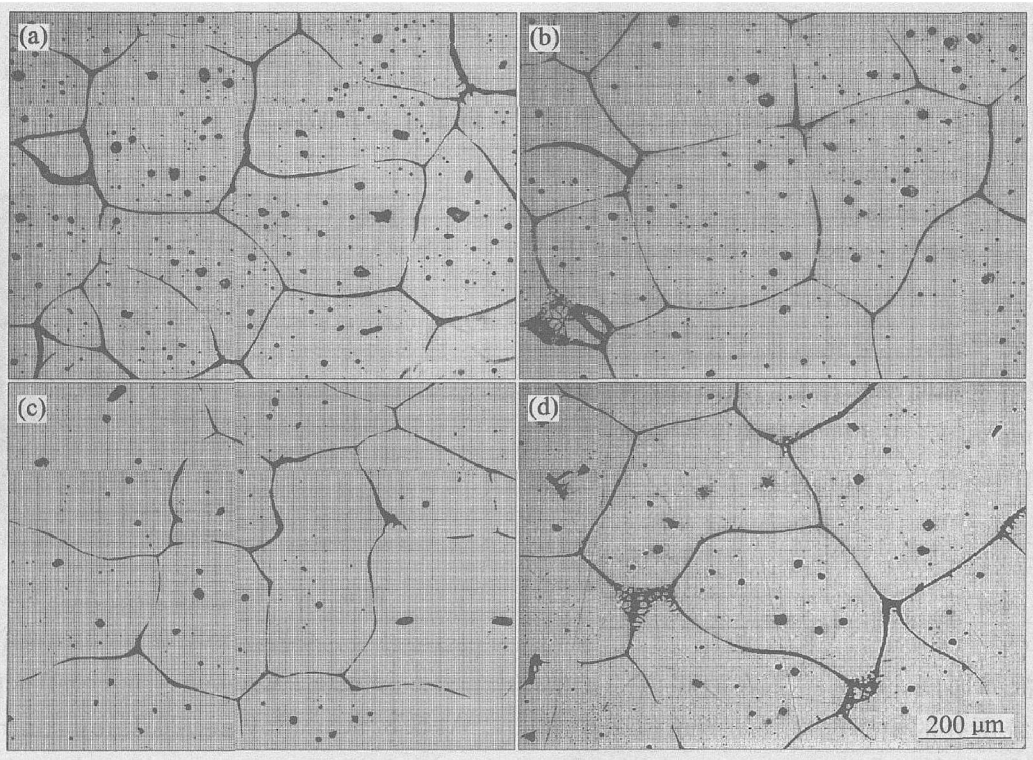


图 5 Al-5.8% Cu 合金以不同速率加热至 620 °C 后保温不同时间的液淬组织

Fig. 5 Quenched microstructures of dendritic Al-5.8% Cu alloy after heating to 620 °C with different rates and holding time

(a) —Heating rate 2.5 K/min, holding 15 min; (b) —Heating rate 2.5 K/min, holding 30 min;
(c) —Heating rate 200 K/min, holding 15 min; (d) —Heating rate 200 K/min, holding 30 min

中液相形成与演化的进程。

液相的形成始于晶界及低熔点相。连续分布的低熔点相在熔化时能将所环绕的固相颗粒与其它固相完全分开。断续的低熔点相只能先形成孤立的液滴,随着温度的升高液滴向周围扩展,形成连通的液相层,达到分隔固相的目的。这一过程需要温度和成分的耦合来完成。因此,为了获得固相均匀分布的半固态浆料,需要原始组织具有连续分布的低熔点相,同时应选择适当的加热方式,将这种连续性尽可能地保留至低熔点相的熔化温度。实验观察表明,快速加热是将室温组织形态保持至高温的有效方式。

若晶界上不存在低熔点相,相邻晶粒的分离将取决于晶界处界面能的平衡,即固液界面表面能和晶界表面能的大小。晶界能够被液相渗入而将相邻的晶粒分开的条件是^[12]

$$2\gamma_{SL} < \gamma_{gb} \tag{1}$$

式中晶界界面能 γ_{gb} 与晶粒间的位向差有关^[13],在小角度的区域($\theta < 15^\circ$),位向差小的晶粒形成的晶界具有较低的界面能,不易被液体润湿分离。即使被分离,容易再度聚合形成大的团聚体。根据 War-

rington 和 Boon^[14] 的模型可以估计 Al 合金中形成低能界面的可能性小于 3.4%, Arnberg 等^[15] 关于 6082 铝合金组织的二次电子像也表明低能晶界仅占 3.8%~11.2%,且随浇注温度的不同而不同。这些数据说明,具有随机位向的晶粒能够聚合在一起的可能性非常小,因此,自由凝固的枝晶材料熔化时较少出现晶粒的团聚现象,晶界和低熔点相的分布决定了固相的分离和分布情况。

固相尺寸是两方面因素作用的结果,即原始组织晶粒尺寸的大小和半固态组织固相颗粒在熔化过程中的长大。如果不考虑固相的长大,细小的原始晶粒必然会熔化出细小的半固态固相颗粒,所以希望熔化前的组织尽量细小。固相颗粒的长大包括数个独立颗粒的团聚融合和单个颗粒的 Ostwald 熟化。由于低能界面的比例很小且熔化过程不存在剧烈搅拌,可以忽略晶粒间的团聚。单个颗粒的 Ostwald 熟化过程中颗粒直径的变化规律遵循 LSW 理论^[16],即

$$d^3 = d_0^3 + kt \tag{2}$$

式中 d_0 、 d 分别为颗粒长大前和长大后的直径, k 为熟化系数, t 为时间。据此可知,这种长大机制与

时间相关。因此,抑制长大的有效途径是尽量减少固液相共存的时间,反映在加热方式上即为快速加热,短时保温。

非球形固相颗粒在半固态的球化是一个自发现象,驱动力是体系总表面能的降低。一个非球形的固相颗粒,不同部位的曲率半径存在差异,引起 Ostwald 熟化,最终消除曲率上的差异形成球体。这个过程实际上是固相颗粒的“Ostwald 自熟化”。按照 Ostwald 熟化理论,球化过程也就是曲率半径小的突起部位熔化和曲率半径大的凹陷部位物质沉积的过程。Chen 和 Kattamis^[17] 计算了突起消失的速度 dL/dt 和凹陷部位的填充速度 dI/dt :

$$\frac{dL}{dt} = \frac{4\sigma D}{H_{CL}(1-k)m_L} \frac{1}{R} \left[\frac{1}{a} - \frac{1}{R} \right] \quad (3)$$

$$\frac{dI}{dt} = \frac{4\sigma D}{H_{CL}(1-k)m_L} \frac{R}{a^2} \left[\frac{1}{a} - \frac{1}{R} \right] \quad (4)$$

式中 σ 为固液界面能, D 为溶质在液相内的扩散系数, T 为系统所处的绝对温度, H 为单位体积熔化热, c_L 为温度为时的液相成分, k 为溶质平衡分配系数, m_L 为液相线斜率。这里 a 取负值。上式表明,温度越高,突起和凹陷部位的曲率半径越小,球化速度就越快。处于半固态的固相枝晶,时间不受限制的情况下均可以演变为球形,但提高系统所处的温度,减小枝晶臂间距可以有效地减少球化时间。

2.4 控制熔化法制备的半固态材料

晶粒细小且容易分离的等轴枝晶材料是采用控制熔化法制备半固态浆料的前提。工程上获得晶粒细小的等轴枝晶的方法是添加晶粒细化剂以及采用金属型浇注。采用低温浇注可以获得晶粒之间容易分离的原始组织,更适合制备半固态浆料。

在控制原始组织的前提下,合适的加热方式是获得理想的半固态组织形态的保证。快速加热的方式能够使与时间相关的现象如扩散、粗化、球化受到抑制,适用于半固态温度前的加热熔化过程,保证半固态组织具有均匀分布的细小固相颗粒。对于未球化的固相颗粒,需要选择适当的保温时间完成球化并防止晶粒过度粗化。从提高性能和降低成本的角度考虑,保温时间在达到球化要求的情况下越短越好。

本文作者采用细化晶粒、低温浇注、快速加热、短时保温的方法,制备了 Al-5.8% Cu 合金半固态浆料,其液淬组织如图 6 所示。由图可知,固相颗粒比较圆整,尺寸较小,而且没有颗粒聚集现

象,是较为理想的半固态组织。该方法不需要复杂昂贵的电磁或机械搅拌制浆设备,只需控制浇注温度、加热速率和保温时间,工艺简单可行,并大大降低了生产成本。

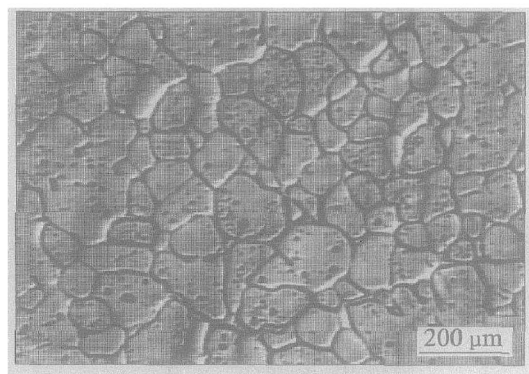


图 6 控制熔化法制备的 Al-5.8% Cu 合金半固态组织(在 620 °C 下液淬)

Fig. 6 Quenched microstructure of Al-5.8% Cu alloy at 620 °C by controlled melting

3 结论

1) 利用定向熔化液淬法研究了具有枝晶组织的 Al-5.8% Cu 合金在熔化和保温过程中组织形态的演变,以及加热速率和保温时间对形态演变的影响。实验结果表明,控制熔化过程能够获得具有球形固相的半固态浆料。

2) 通过分析影响熔化组织形态的因素,提出获得理想半固态浆料的方式,即改善原始组织和控制熔化过程,并从工程角度出发给出了可行的具体措施。

3) 采用细化晶粒、低温浇注配合快速加热和短时保温的工艺,成功地制备出了 Al-5.8% Cu 合金固相颗粒圆整、尺寸较小、分布均匀的半固态浆料。

REFERENCES

- [1] Spencer D B, Mehrabian R, Flemings M C. Rheological behavior of Sn-15% Pb in the crystallization range [J]. Metallurgical Transactions, 1972, 3 (7): 1925 - 1932.
- [2] Flemings M C, Mehrabian R. Casting semisolid metals [J]. Modern Casting, 1973, 63: 31 - 33.
- [3] Flemings M C. Behavior of metal alloys in the semisolid state [J]. Metallurgical Transactions B, 1991, 22B: 269 - 293.

- [4] Vives C. Elaboration of semisolid alloys by means of new electromagnetic rheocasting processes[J]. Metallurgical Transaction B, 1992, 23B: 189 - 206.
- [5] Young K P, Kynka C P, Courtois J A. Fine Grained Metal Composition[P]. US 4415374, 1983.
- [6] Haga T, Kapranos P. Simple rheocasting processes [J]. Journal of Materials Processing Technology, 2002, 130 - 131: 594 - 598.
- [7] Xia K, Tausig G. Liquidus casting of a wrought aluminum alloy 2618 for thixoforming[J]. Materials Science and Engineering A, 1998, 246: 1 - 10.
- [8] 杨红亮, 张质良, Ohnaka I, 等. 再熔融加热对亚共晶铝硅合金半固态组织演变的影响[J]. 中国有色金属学报, 2003, 13 (5): 1151 - 1156.
- YANG Hong-liang, ZHANG Zhi-liang, Ohnaka I, et al. Effect of re-melting heat treatment on semisolid structure evolution of hypoeutectic Al-Si alloy[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2003, 13 (5): 1151 - 1156.
- [9] Wang X Y, Jie W Q. Controlled melting process of off-eutectic alloy[J]. Acta Materialia, 2004, 52: 415 - 422.
- [10] Tzimas E, Zavaliangos A. Evolution of Near-equiaxed Microstructure in the Semisolid State[J]. Materials Science and Engineering A, 289: 228 - 240.
- [11] Ferrante M, Freitas E D. Rheology and microstructural development of a Al-4wt% Cu alloy In the semisolid state. Materials Science and Engineering A, 1999, 271: 172 - 180.
- [12] Doherty R D, Lee H, Feest E A. Microstructure of stir-cast metals[J]. Material Science and Engineering A, 1984, 65 (1): 181 - 189.
- [13] 冯端. 金属物理学(第一卷): 结构与缺陷[M]. 北京: 科学出版社, 2000. 416 - 466.
- FENF Duan. Structure and Defects, Metal Physics [M]. Beijing: Science Press, 2000. 416 - 466.
- [14] Warrington D H, Boon M. Ordered structures in random grain boundaries: some geometrical probabilities[J]. Acta Metallurgica, 1975, 23 (5): 599 - 607.
- [15] Arnberg L, Bardal A, Sund H. Agglomeration in two semisolid type 6082 aluminum alloys[J]. Materials Science and Engineering A, 1999, 262: 300 - 303.
- [16] Ratke L, Beckermann C. Concorrent growth and coarsening of spheres[J]. Acta Materialia, 2001, 49: 4041 - 4054.
- [17] Chen M, Kattamis T Z. Dendrite coarsening during directional solidification of Al-Cu-Mn alloys[J]. Materials Science and Engineering A, 1998, 247: 239 - 247.

(编辑 龙怀中)