

文章编号: 1004 - 0609(2004)08 - 1366 - 06

# 电场退火对 3104 铝合金板显微组织与再结晶织构的影响<sup>①</sup>

胡卓超<sup>1, 2</sup>, 赵 骧<sup>1</sup>, 左 良<sup>1</sup>, 王 福<sup>1</sup>, C. Esling<sup>2</sup>

(1. 东北大学 材料与冶金学院, 沈阳 110004;

2. Letam, CNRS-UMR 7078, University of Metz, Ile du Sauley, 57045 Metz, France)

**摘 要:** 利用三维取向分布函数(ODF)和透射电镜(TEM)等方法研究了电场退火对冷轧 3104 铝合金板材再结晶、第二相粒子和再结晶织构的影响。结果表明: 电场退火具有抑制铝合金板再结晶形核和长大的作用, 但并未改变其再结晶形成机制; 促进了第二相粒子  $MnAl_6$  长大; 有利于提高立方织构( $\{001\} \langle 100 \rangle$ ) 的强度, 同时降低了某些轧制织构的强度。根据 Gibbs-Thomson 理论, 探讨了电场退火时 3104 铝合金板再结晶及立方织构形成机制。

**关键词:** 电场; 3104 铝合金板; 显微组织; 再结晶织构; 第二相粒子

中图分类号: TG 335; TG 146.2

文献标识码: A

## Effects of electric field annealing on microstructure and recrystallization texture of 3104 aluminum alloy sheets

HU Zhuo-chao<sup>1, 2</sup>, ZHAO Xiang<sup>1</sup>, ZUO Liang<sup>1</sup>, WANG Fu<sup>1</sup>, C. Esling<sup>2</sup>

(1. School of Materials and Metallurgy,

Northeastern University, Shenyang 110004, China;

2. Letam, CNRS-UMR 7078, University of Metz, Ile du Sauley, Metz 57045, France)

**Abstract:** The effects of electric field on microstructure, precipitation and recrystallization texture of cold rolled 3104 aluminum alloy sheets were investigated by X-ray-ODF analysis combined with TEM morphology. The cold rolled 3104 aluminum alloy sheets were treated at different temperatures for 90 min with conventional annealing and electric field annealing, respectively. The result shows that the electric field annealing retards the recovery and recrystallization processes, reduces the mean grain size, and increases the size of  $MnAl_6$  and enhances cube texture. According to Gibbs-Thomson's theory, such effects are attributed to the fact that the electric field decreases the driving force of recrystallization, and then hinders the nucleation and grain growth. As the S oriented grains have relatively high storage energy, they have strong preference to recrystallization. As a result, the cube texture is enhanced.

**Key words:** electric field annealing; 3104 aluminum alloy; recrystallization texture; precipitation

近年来, 随着电致迁移及电致塑性现象的发现, 电场在改善金属的组织 and 性能方面受到重视并得到实际应用。前人的研究表明, 电场可影响纯铝和纯铜的回复与再结晶<sup>[1]</sup>, 提高 O2 钢和 4340 钢的淬透性<sup>[2-4]</sup>等, 并认为造成电致迁移及电致塑

性现象的原因与电场对材料内部晶体缺陷(空位、位错和晶界等)的交互作用有关。再结晶织构的产生是各种取向的晶核在形成和长大过程中相互竞争的结果, 电场势必对其产生重要的影响。本文作者前期的研究也发现电场退火可改变 O8Al 深冲钢板

① 基金项目: 国家重点基础研究发展规划项目(G1999064908); 教育部科研重大项目资助(0208)

收稿日期: 2003-12-02; 修订日期: 2004-04-19

作者简介: 胡卓超(1976-), 男, 博士研究生。

通讯作者: 王 福, 教授; 电话: 024-83684032(H); 024-83670655(O); E-mail: wangfu\_neu@sina.com

的再结晶组织, 且有利于提高其深冲性能<sup>[5, 6]</sup>。但关于电场作用下铝合金板材再结晶组织形成与演变及电场作用下第二相粒子的析出行为的研究却寥寥无几<sup>[7]</sup>。人们普遍要求  $3 \times \times \times$  系铝合金板材具有良好的冲压成形性和较低的制耳率<sup>[8, 9]</sup>, 而影响冲压成形性和制耳率的最关键因素则是组织。本文作者以 3104 铝合金为对象, 研究了在不同温度下电场退火对 3104 铝合金再结晶和第二相粒子析出及再结晶组织的影响, 希望以此加深对再结晶组织形成机制的理解, 进一步通过电场退火调控 3104 铝合金板的再结晶组织。

## 1 实验

采用西南铝业公司提供的 3104 铝合金热轧成品料, 板厚 2.3 mm, 化学成分(质量分数, %)为: Mn 1.0、Mg 1.28、Cu 0.22、Fe 0.36、Si 0.19, 余量为铝。首先将此板材沿热轧方向进行压下量为 90% 冷轧。然后从冷轧板沿轧向截取尺寸 50 mm × 20 mm × 0.23 mm 的样品, 分别对其进行非电场和电场退火。退火工艺如下: 以 10 °C/min 的速度分别加热到 200、300、400 和 500 °C, 保温 90 min, 随后出炉空冷。电场退火时, 电场强度设定为 4 kV/cm, 通以氮气保护。不锈钢电极板与高压直流电源负极相连, 样品与电源正极相连, 负极与正极相距 10 mm, 电压为 4 kV。电场热处理装置如图 1 所示。

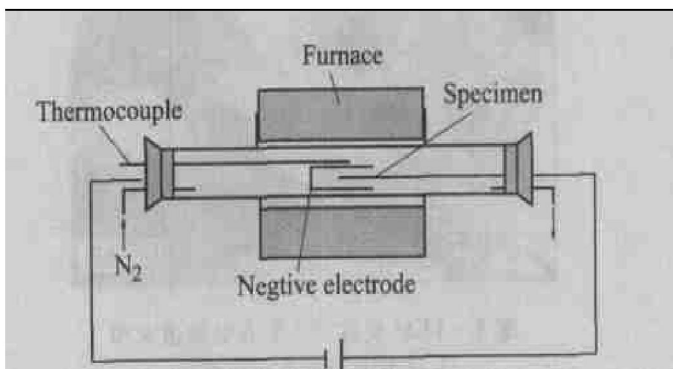


图 1 电场热处理装置示意图

Fig. 1 Schematic of electric field treatment set

组织测定在东北大学测试中心 D/max- IIIA 型 X 射线衍射仪上完成。按 Schulz 反射法进行, 测定时采用  $\text{Co K}\alpha$  辐射。为了增加被照射面积而获得更好的统计性, 测试中使样品作平动, 管电压为 35 kV, 管电流为 20 mA, 发散狭缝 DS 为 2°, 并加 2 mm 限高光栅, 防散射狭缝 SS 为 5 mm, 接收狭缝

RS 为 5 mm, 测量 {111}、{200} 和 {220} 3 张不完整极图。扫测按同心圆步进方式进行,  $\alpha$  由 0°~70°,  $\beta$  由 0°~360°,  $\Delta\alpha = \Delta\beta = 5^\circ$ 。数据采集由计算机完成。ODF 分析采用东北大学织构研究室系统分析软件<sup>[10]</sup>按‘二步法’进行, 结果用恒  $\phi$ -ODF 截面图表示。样品在 HAV-5 型低负荷显微硬度计上进行显微硬度(HV)测试。

透射电镜样品取板材与电极相对侧, 先机械减薄至 100  $\mu\text{m}$  左右, 然后进行双喷式电解减薄, 在 Philips-EM 400 透射电镜下对其形貌进行观察。

## 2 实验结果

### 2.1 显微组织观察

图 2 所示为 200 °C 非电场退火与电场退火后样品的 TEM 观察。由图 2(a) ( $E = 0$ ) 可见, 在 200 °C 退火时, 非电场退火样品的多边化亚晶区域较多(黑色箭头所示), 且仍然存在着大量的胞状组织, 亚晶晶核正处于产生的初级阶段。而由图 2(b) ( $E = 4 \text{ kV/cm}$ ) 可见, 在 200 °C 电场退火时, 样品的亚

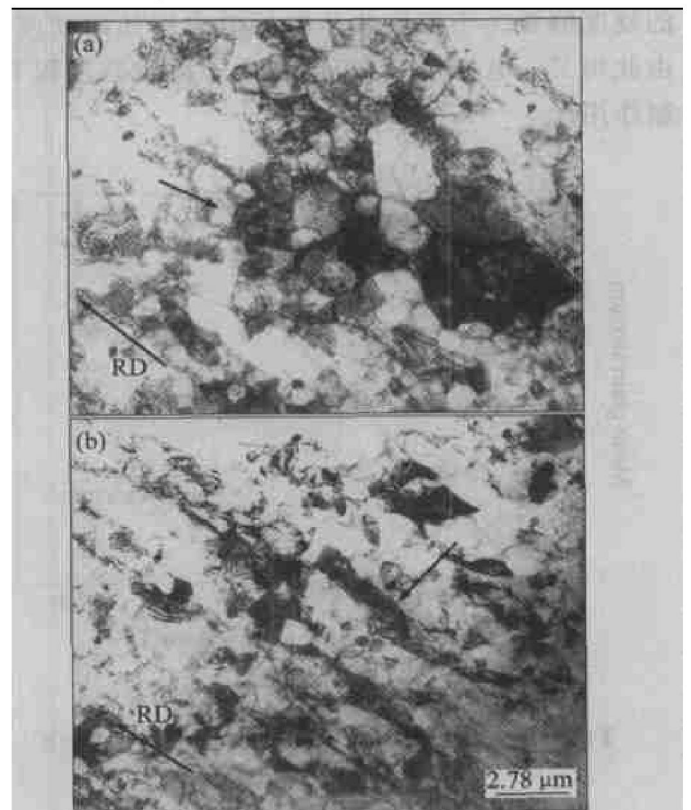


图 2 200 °C 非电场退火与电场退火样品的显微组织

Fig. 2 Microstructures of sample with conventional annealing and electric field annealing at 200 °C for 90 min

(a)  $-E = 0$ ; (b)  $-E = 4 \text{ kV/cm}$

晶晶核尺寸和数量明显小于 200 °C 非电场退火样品的亚晶，且在样品中依然存在大量与冷轧态组织相似的条状纤维组织(黑色箭头所示)。这表明电场抑制了亚晶的产生和合并长大，并因此影响了再结晶形核。

当退火温度达到 300 °C，时间为 90 min 时，非电场退火和电场退火样品的再结晶均已结束，并进入了晶粒长大阶段，随着温度的升高，再结晶晶粒的尺寸也逐渐增大，但是非电场退火与电场退火样品的晶粒尺寸仍有差别。图 3 所示为 300 °C 至 500 °C 退火后样品平均晶粒尺寸分布的图像分析结果。由图 3 可见，在非电场退火与电场退火下，再结晶晶粒尺寸均随着退火温度增加而增大，但电场退火样品的晶粒尺寸始终小于相同条件下非电场退火样品的晶粒尺寸；随着退火温度的进一步升高(达到 500 °C)，其中电场退火样品的晶粒尺寸仍然略小于非电场退火样品的晶粒尺寸，但差距很小。图 4 所示为对不同退火温度下 3104 铝合金样品的显微硬度随退火温度的变化规律。由图 4 可明显看出，在不同温度下非电场与电场退火 90 min 样品的显微硬度值随着退火温度增加而降低，但电场退火样品的硬度值要高于相应的非电场退火样品的硬度值。由此可见，电场对 3104 铝合金的再结晶过程有抑制作用。

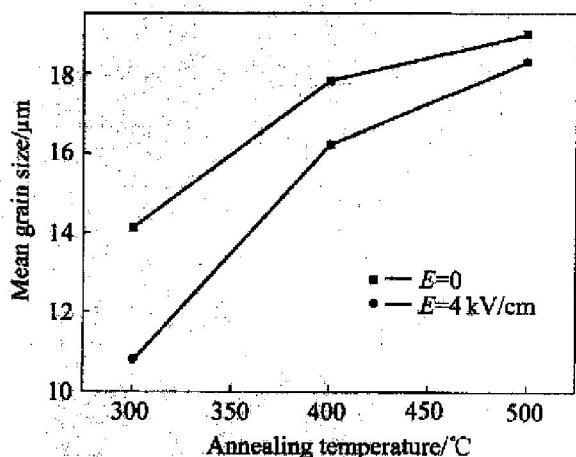


图 3 平均晶粒尺寸随退火温度的变化

Fig. 3 Variation of mean grain size with annealing temperature

### 2.2 第二相粒子的析出

由图 5 可以看出，显微组织中分布着许多析出的第二相粒子。通过扫描电镜的能谱分析可知，这些析出相主要是  $MnAl_6$ 。无论是非电场退火、还是电场退火，析出相  $MnAl_6$  均呈多边形、长方形或方形。通过对 300 个析出相粒子的尺寸进行测量，发

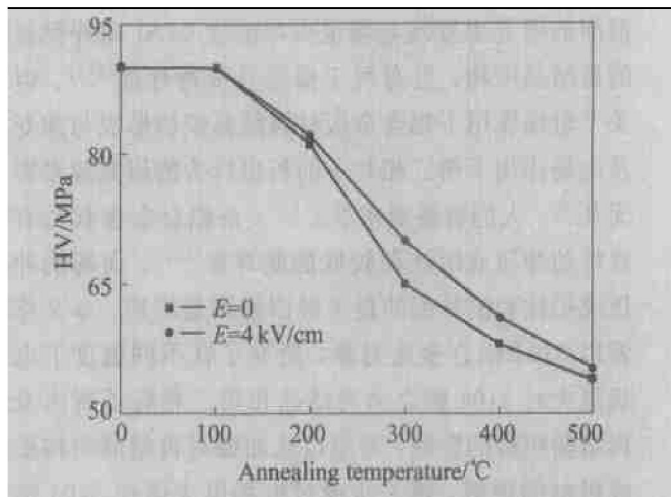


图 4 显微硬度随退火温度的变化

Fig. 4 Variation of microhardness with annealing temperature

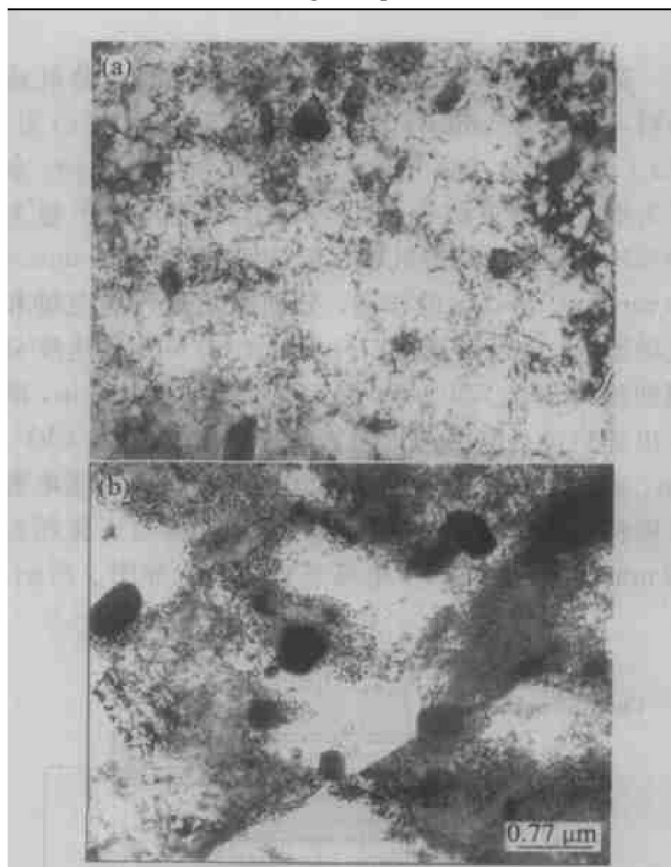


图 5 TEM 观察 500 °C 非电场退火和电场退火下析出相的变化

Fig. 5 Precipitation of 3104 Al alloy sample with conventional annealing and electric field annealing at 500 °C for 90 min (a)  $-E=0$ ; (b)  $-E=4\text{ kV/cm}$

现在 500 °C 非电场退火时，析出相粒子的平均尺寸为 0.28 μm，而在相同的条件下电场退火的样品中  $MnAl_6$  析出相的平均尺寸则为 0.46 μm。实验结果表明电场有利于第二相粒子  $MnAl_6$  的长大。

### 2.3 组织的演变

样品中各主要组织组分: Cube 组织、Copper 组织、Brass 组织、S 组织, 取向密度随温度的变化如图 6 所示。在 200 °C 时, 因处于回复阶段, 无论非电场退火, 还是电场退火, 再结晶组织均未出现, 仍为典型的冷轧组织。当退火温度升高至 300 °C 时, 从图上可以看出, 样品中除具有一定的 S {123} <634>, Copper {112} <111> 和 Brass {110} <112> 冷轧组织外, 还出现了一定的再结晶 Cube {001} <100> 组分 (取向密度为 3.2) (见图 7 (a))。而且 Cube 组织取向密度随着退火温度的增加而增加, 尤其是电场退火, 在 500 °C 时达到最大强度, 取向密度为 5.8 (图 7), 且电场退火样品的 Cube 组织取向密度始终大于非电场退火样品的 Cube 组织。而样品其他组织组分均随着退火温度的增加而减小, 在低温区 (200~ 300 °C) 减小幅度极大, 当退火温度高于 350 °C, 这种减小的趋势反而不明显。除 Copper 组织外, 电场退火样品的

Brass 组织和 S 组织强度始终低于非电场退火样品的 Brass 组织、S 组织强度。

### 3 分析与讨论

近年来人们对电场对再结晶的影响作了一些研究, 一般认为再结晶驱动力来源于形变储能, 并主要以微观缺陷 (诸如空位、位错、亚晶界和晶界等) 形式表现出来。在再结晶过程中, 无畸变再结晶晶粒的形成与长大, 晶界迁移取决于晶界两侧的能量差与晶界能, 即具有这两个优势的亚晶 (或晶粒) 将优先形成再结晶晶核。根据 Gibbs-Thomson 理论<sup>[11]</sup>, 晶核长大的临界半径为

$$R_c = 2r/P_d \quad (1)$$

式中  $r$  为各种取向亚晶的平均晶界能,  $P_d$  为再结晶驱动力。当一亚晶尺寸大于临界半径  $R_c$  时, 它将成为再结晶晶核。

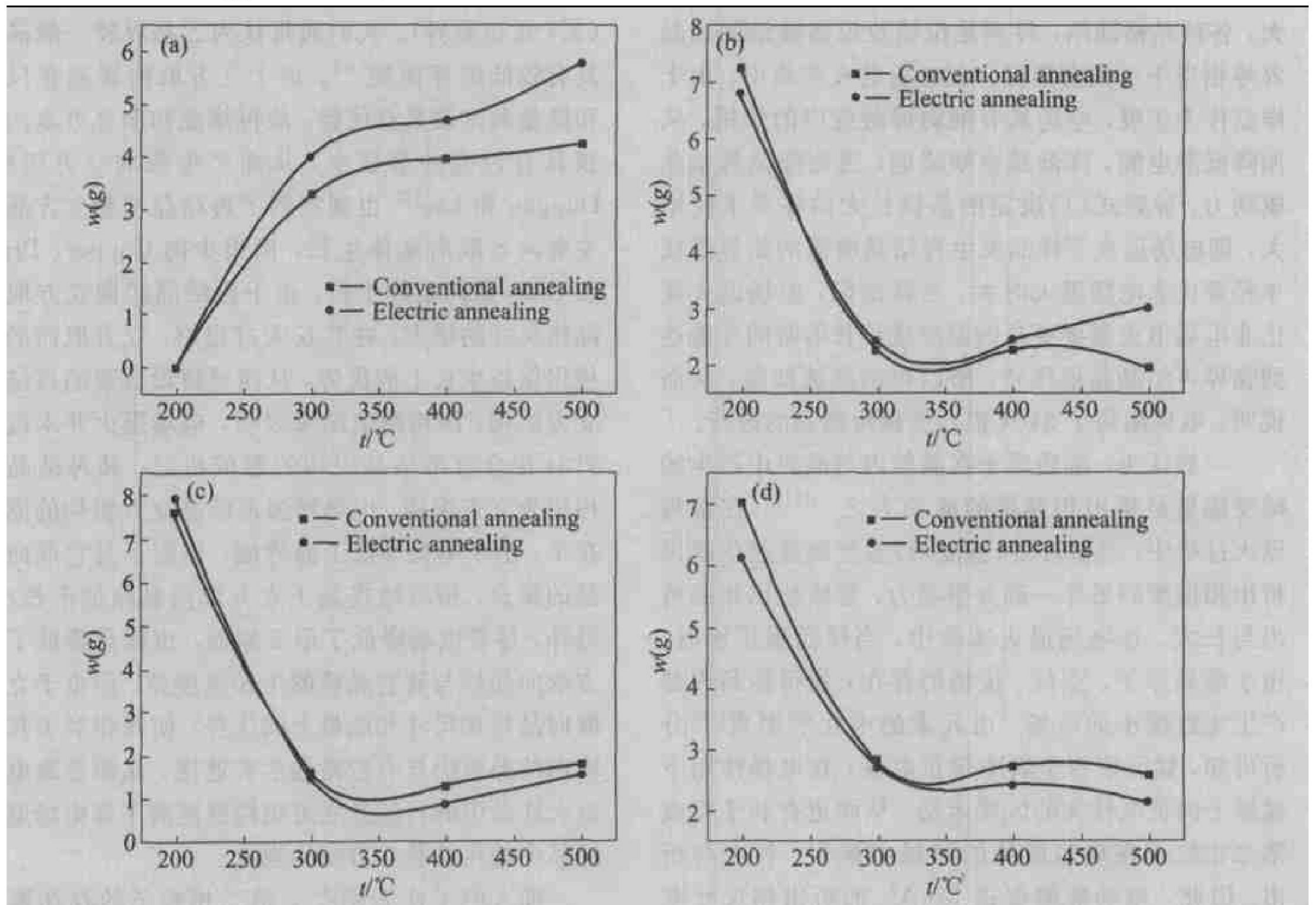


图 6 非电场退火与电场退火主要组织组分取向密度值  $w(g)$

Fig. 6 Orientation intensities  $w(g)$  of several main texture components of conventional annealing and electric field annealing (a) —Cube texture; (b) —Copper texture; (c) —Brass texture; (d) —S texture

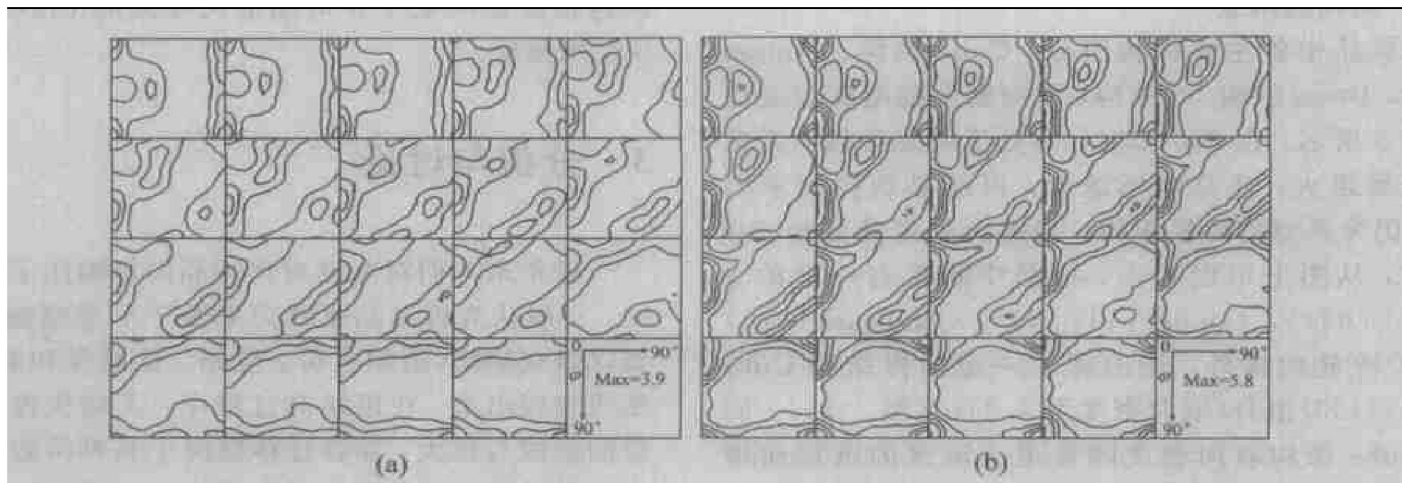


图 7 500 °C 非电场退火与电场退火样品的恒  $\Psi$  ODF 截面图

Fig. 7 Constant  $\Psi$  ODF sections of specimens with conventional and electric field annealing at 500 °C  
(a)  $-E = 0$ ; (b)  $-E = 4 \text{ kV/cm}$

金属电子理论认为，空位具有负电性。晶格缺陷能实质上是由于负电荷的屏蔽效应引起的静电能<sup>[12]</sup>。这种屏蔽作用越大，缺陷具有的能量也越大，各种晶格缺陷，特别是位错及位错缠结区和晶界等相当于空位密集区。在电场退火实验中，由于样品作为正极，电场具有削弱屏蔽效应的作用，从而降低静电能，降低晶格缺陷能，进而降低再结晶驱动力，导致式(1)决定的晶核长大的临界半径增大，即电场退火下样品发生再结晶所需的临界形核半径要比非电场退火时大。这就是说，电场退火要比非电场退火需要更高的温度或更长的时间才能达到临界再结晶晶核尺寸，所以再结晶被抑制。从而说明，电场阻碍了 3104 铝合金板再结晶的进行。

一般认为，溶质原子在晶粒内与晶界中产生的畸变能量是析出相偏聚的驱动力之一<sup>[13]</sup>。在常规退火过程中，外部环境(温度场)通过能量起伏提供析出相偏聚的另外一部分驱动力，导致析出相的析出与长大。在电场退火实验中，当样品做正极时，由于溶质原子、空位、位错的存在，使得样品内部产生无数微小的电场。由元素的电化学因素<sup>[13]</sup>分析可知，锰元素在金属中带正电性，在电场作用下锰原子向负电性大的区域运动，从而更有利于完成第二相粒子在缺陷能低的区域中聚积、长大与析出。因此，电场能够促进  $\text{MnAl}_6$  的析出相尺寸变大。

再结晶组织的形成和发展是各种取向晶核在生长中的竞争过程，完全再结晶时的组织是初始长大晶核含量与生长速度竞争的综合结果。大量研究表明，铝合金再结晶立方织构形成的初期为立方取向

亚晶的直接长大。因为  $S\{123\} \langle 634 \rangle$  取向亚晶较一般取向的亚晶有高的平均储能<sup>[14]</sup>，同时立方晶粒与 S 取向基体具有较好的  $38.21^\circ \langle 111 \rangle$  取向关系 ( $\Sigma 7$  重位晶界)。人们通常认为  $\Sigma$  晶界较一般晶界具有较低的界面能<sup>[10]</sup>。由于立方取向亚晶在尺寸和能量两方面具有优势，故再结晶初期立方取向晶核具有较高的形核率，从而产生强的立方织构。Duggan 和 Lee<sup>[15]</sup> 也观察到了再结晶初期立方晶核主要向 S 取向基体生长，而很少向 Copper, Brass 和 Goss 取向基体生长。由于再结晶初期立方取向晶核尺寸的增大，在其长大过程中，立方取向的晶核仍保持生长上的优势，从而导致形成强的再结晶立方织构。织构测试结果表明，电场退火并未改变 3104 铝合金再结晶组织的形成机制，其再结晶组织仍为立方织构。电场增强再结晶立方织构的原因在于，由于电场降低了晶界能，抑制了其它取向亚晶的聚合，相应地提高了立方取向晶核的形核率；另外，尽管电场降低了形变储能，也就是降低了立方取向晶核与其它晶核的生长速度差，但由于立方取向晶核在尺寸和能量上的优势，使其相对于其它取向的晶核仍具有较高的生长速度，从而导致电场退火样品中的再结晶立方织构强度高于非电场退火样品中的再结晶立方织构强度。

前人的工作表明<sup>[16]</sup>，第二相粒子的存在影响了再结晶退火时晶界的迁移，从而对再结晶的过程产生一定的影响作用。虽有研究表明<sup>[13]</sup>，在铝基合金中，当第二相粒子平均尺寸较小 ( $d \leq 0.3 \mu\text{m}$ )，对基体的再结晶有阻碍作用；反之，当第二相粒子平均尺寸较粗大 ( $d \geq 0.3 \mu\text{m}$ )，则起促进作用。本

研究表明, 电场一方面增加了晶内和晶界上析出相粒子的尺寸, 但另一方面却抑制了再结晶的进行。这主要是由于, 在再结晶初期, 第二相粒子尺寸较小, 所以对再结晶起抑制作用, 同时由于电场也对再结晶具有一定的抑制作用, 所以再结晶被明显推迟; 而随着温度的提高, 再结晶继续进行, 第二相粒子尺寸逐渐增大, 第二相粒子对再结晶过程的影响逐渐向促进方面发展。在此时电场有两个明显的作用, 一方面依然影响形变储能, 抑制再结晶; 另一方面, 却促进第二相粒子长大, 而长大的第二相粒子促进了再结晶。但从本实验结果发现, 在晶粒长大阶段, 电场依然对再结晶具有一定程度抑制作用, 但此时的抑制作用明显弱于再结晶形核阶段的抑制作用。这一方面的研究将在以后进行更加深入的研究。

## REFERENCES

- [1] Conrad H, Guo Z, Sprecher A F. Effect of an electric field on the recovery and recrystallization of Al and Cu [J]. *Scripta Metallurgica*, 1989, 23(6): 821 - 824.
- [2] Sprecher A F, Mannan S L, Conrad H. On the mechanisms for the elector plastic effect in metals [J]. *Acta Metall Mater*, 1986, 34(7): 1145 - 1162.
- [3] Cao W D, Lu X P, Sprecher A F, et al. Increased harden ability of steel by an external electric field [J]. *Mater Lett*, 1990, 9: 193 - 197.
- [4] Koch C C. Experimental evidence for magnetic or electric field effects on phase transformations [J]. *Mater Sci Eng A*, 2000, A287: 213 - 218.
- [5] 胡卓超, 赵 骧, 左 良. 电场退火对 08Al 深冲钢板再结晶组织的影响 [J]. *金属学报*, 2003, 39(2): 213 - 216.  
HU Zhuo-chao, ZHAO Xiang, ZUO Liang. Effects of electric field annealing on the recrystallization texture of cold rolled 08Al killed steel sheet [J]. *Acta Metallurgica Sinica*, 2003, 39(2): 213 - 216
- [6] 胡卓超, 赵 骧, 左 良. 电场退火对 08Al 深冲钢板深冲性能的影响 [J]. *东北大学学报*, 2002, 23(10): 948 - 951.  
HU Zhuo-chao, ZHAO Xiang, ZUO Liang. Effects of electric field annealing on the deep drawing properties of 08Al killed steel sheet [J]. *Journal of Northeastern University*, 2002, 23(10): 948 - 951.
- [7] 蒋奇武, 王存胜, 王 福, 等. 电场作用下高纯铝箔再结晶组织的研究 [J]. *中国有色金属学报*, 2001, 11(4): 598 - 603.  
JIANG Qi-wu, WANG Cun-shen, WANG Fu, et al. Recrystallization textures of high-purity aluminum foil annealed with an electric field [J]. *The Chinese Journal of Nonferrous Metals*, 2001, 11(4): 598 - 603.
- [8] Hollinshead P A, Sheppard T. Development of rolling textures in aluminum alloy 3004 subjected to varying hot-rolling deformation [J]. *Metall Mater Trans A*, 1989, 20A(8): 1495 - 1507.
- [9] Merchant H D, Hodgson D S, O'Reilly I, et al. Structure and property evolution during drawing and wall ironing of aluminum alloy 3004 [J]. *Materials Characterization*, 1990, 25(3): 251 - 261.
- [10] 梁志德, 徐家祯, 王 福. 织构材料的三维取向分析术-ODF 分析 [M]. 沈阳: 东北工学院出版社, 1986. 108.  
LIANG Zhi-de, XU Jia-zeng, WANG Fu. 3-D Orientation Distribution Analysis of Textured Materials [M]. Shenyang: Northeastern University of Technology Press, 1986. 108.
- [11] Vatne H E, Daaland O. On the formation of cube texture in aluminum [J]. *Mater Sci Forum*, 1994, 157 - 162: 1087 - 1094.
- [12] Baluffi R W. Grain Boundary Structure and Kinetics [M]. Metal Park, Ohio, ASM, 1979. 125.
- [13] Oscarsson A, Lindh E, Hutchinson W B. Evolution of microstructure and texture during hot and annealing of AA3004 can stock [A]. *Thermo-Mechanical Processing in Theory, Modeling & Practice [C]. exp2.*, Stockholm, Sweden, 1997. 290 - 306.
- [14] 李 超. 金属学原理 [M]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学出版社, 1996: 62, 304.  
LI Chao. Theory of Metal Materials [M]. Harbin: Harbin Institute of Technology University Press, 1996: 62, 304.
- [15] Duggan B J, Lee C S. Deformation banding origin size and recrystallization in FCC intermediate to high metals [J]. *Scripta Metall Mater*, 1992, 27: 150.
- [16] Johnson C P, Humphreys F J. The Influence of Particle Stimulated Nucleation on Recrystallization Textures in Aluminium Alloy [C]. *Proc. of ICOTOM11*, Xi'an, China, 1996, 2: 1263.

(编辑 何学锋)