文章编号: 1004-0609(2011)01-0198-07

纯钼粉末多孔烧结材料 ECAP 的数值模拟及实验

薛克敏, 王晓溪, 李 萍, 王 成, 张 翔

(合肥工业大学 材料科学与工程学院, 合肥 230009)

摘 要:采用 DEFORM-3D 软件对纯钼粉末多孔烧结材料等径角挤压过程进行单道次三维有限元模拟和实验研 究,获得变形过程中试样的应力、应变、致密行为等相关场量变化规律。模拟结果表明:等径角挤压工艺对粉末 材料具有强烈的致密效果,整个变形过程可分为3个阶段,即初始变形、过渡变形及稳定变形;试样纵横截面上, 等效应变均存在不均匀分布现象,靠近模具内角和上表面处试样所获应变较大,相对密度也较高。试样不同部位 所处应力状态及应变速率分布状态的不一致是导致其应变分布不均匀的根本原因。单道次挤压实验结果与模拟结 果具有较好的一致性,证明了所建立有限元模型的可靠性。

关键词:粉末烧结材料;等径角挤压;数值模拟;显微组织 中图分类号:TG376 文献标志码:A

Numerical simulation and experiment of pure molybdenum powder sintered material with porosities during ECAP

XUE Ke-min, WANG Xiao-xi, LI Ping, WANG Cheng, ZHANG Xiang

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

Abstract: Three-dimensional finite element model was used to analyze the deformation behavior of pure molybdenum powder sintered material with porosities during a single pass of equal channel angular pressing (ECAP). The distributions of effective strain, effective stress and relative density of the sample during ECAP processing were obtained. The simulation results indicate that ECAP is an effective technique to densify powder materials and the whole deformation process could be divided into three stages: initial deformation, transitional deformation and steady deformation. The inhomogeneous deformations exist in the transverse plane and longitudinal plane of the sample, and the effective strain and relative density in the inner side and on the top of the sample are much larger than those at other positions. This inhomogeneity is attributed to the fact that the stress state and strain rate at different positions of the sample are different. In addition, the experimental results have good consistency with the simulation ones, which shows the reliability of established finite element model.

Key words: powder sintered material; equal channel angular pressing; numerical simulation; microstructure

作为一种难熔稀有金属,金属钼由于原子间结合 力极高,具有较高的熔点和高温强度,良好的导热、 导电、抗腐蚀等力学和电热性能,近年来被广泛地应 用于化工冶金及航空航天等领域,成为国民经济中一 种重要的原料和不可替代的战略物资^[1-2]。目前,钼及 其合金生产从经济上考虑 90%采用粉末冶金制坯,但 塑性变形仍沿用传统加工工艺。由于加热温度较高, 工艺过程难以控制,常出现许多质量问题,如劈裂、 分层、强度降低等,同时组织和性能易产生明显的各 相异性,满足不了生产使用的要求。因此,改善现有 生产工艺,开发新型制备技术,提供更高性能的材料 和制品,便成为材料科学工作者急需解决的关键问题。

基金项目:国家自然科学基金资助项目(50875072); 霍英东教育基金资助项目(121053);安徽省优秀青年科技基金资助项目(10040606Y21) 收稿日期:2010-05-06; 修订日期:2010-09-28

通信作者: 薛克敏,教授,博士; 电话: 0551-2904758; 传真: 0551-2904758; E-mail: xuekm0721@sina.com

等径角挤压(ECAP)是最基础、最典型,也是当前 发展最为迅速的一种大塑性变形工艺方法。它具有设 备简单、试样三维尺寸较大、工业应用前景广阔等特 点^[3-5]。近年来,国内外采用该工艺已成功制备多种致 密金属及其合金的块体超细晶材料^[6-13],如铝、铜、 钛、铝合金、镁合金及低碳钢等。但同致密材料相比, 国内外在粉末材料 ECAP 领域的研究仍处于起步阶 段^[14-20],特别对于一些难变形材料,更是鲜有报道。

为此,针对上述问题,本文作者将 ECAP 工艺与 粉末冶金技术相结合,采用大型商业有限元软件 DEFORM-3D 对纯钼粉末多孔烧结材料单道次 ECAP 过程进行了数值模拟,探讨分析了材料变形过程中的 应力、应变、致密行为等相关场量变化规律,并对有 限元模拟结果进行了相关实验验证,旨在为深入研究 粉末材料大塑性变形工艺提供理论指导和现实依据。

1 有限元模型的建立

1.1 材料应力一应变曲线

以纯钼粉末颗粒(约 45 µm)为原料,添加适量硬脂 酸锌作为润滑剂,室温压制成 *d*12 mm×17 mm 的圆柱 形压坯,并在 1 760 ℃真空条件下进行高温烧结。对 烧结后的试样(相对密度约为 0.8)进行标准压缩试验, 得到不同变形条件下材料的流变应力曲线(见图 1),将 给定变形状态参数(*έ*,*ε*,*T*)下的流变应力数据以数 据点形式输入计算程序。

1.2 模型参数的选择

研究表明[18-20],等温挤压工艺可以有效提高粉末





Fig.1 True stress-true strain curves of pure Mo powders sintered

材料的塑性加工能力,有利于其变形均匀性及致密程度的提高。考虑到钼抗高温氧化能力较差(高于 600 ℃ 迅速氧化)和室温延展性不佳,本研究采用 400 ℃等温条件下的 ECAP 工艺进行三维有限元模拟研究。

试样为 10 mm×10 mm×80 mm 规格的纯钼粉末多 孔烧结材料,初始相对密度设为 0.8。有限元分析模型 及跟踪节点的选取如图 2 所示。





Fig.2 FEM model (a) and point tracking (b)

模具内角 φ=90°,外角 ψ=37°,内角圆弧 r=0.5 mm, 不考虑模具变形,将其设为刚体,与试样初始变形温 度相同(均为 400 ℃),周围环境温度为 20 ℃,挤压速 度为 1 mm/s。模具和试样摩擦接触处理采用常剪切模 型,摩擦因数设为 0.1,试样自由离散成 50 000 个四 面体网格单元。

2 模拟结果与讨论

2.1 挤压过程分析

图 3 和图 4 所示分别为单道次 ECAP 过程中的载



图 3 ECAP 载荷—行程曲线

Fig.3 Load—stroke curve during ECAP process: ① Initial deformation; ② Transitional deformation; ③ Steady deformation

荷—行程曲线及试样在不同阶段的变形情况,本次模 拟共分1000个增量步。根据金属流动特征和挤压力的 变化趋势,可将整个变形过程分为3个不同阶段:初 始变形①、过渡变形②以及稳定变形③。

1) 初始变形阶段

由于试样和模具之间存在间隙,初始阶段试样充 盈模具并在模腔内发生镦粗变形,逐渐与通道紧密贴 合。当挤压力增至足以使材料屈服发生塑性变形时, 试样在转角处发生剪切变形,开始实现"突破",即向 着水平通道流动。在模具转角处,由于模具几何形状 的特点,试样上下表面金属流动速度存在差异,靠近 内角处金属流动所受阻力大,故其流动速度较慢,使 得试样头部形状发生翘曲,出现"斜面",且越靠近模 具内角处,材料"突破"难度越大。同时,当试样前端 被完全剪切时,试样和模具外侧拐角产生脱离(见图 4 Step 250),形成间隙(Corner gap)。随着试样发生剪切 变形部分的逐渐增加,其内应力和挤压所需的载荷也 急剧增加。

2) 过渡变形阶段

试样前端已经过主要剪切变形区,但在竖直方向 上仍受到压缩作用。此时,位于剪切变形区的材料完 全满足了屈服准则,发生了沿整个截面的剪切变形(见 图 4 Step 600)。随着变形的持续进行,角部间隙逐渐 发生调整,挤压载荷缓慢增加。

3) 稳定变形阶段

挤压过程中,随着试样与水平通道接触面积的不断增大,摩擦力不断增加,导致外角处间隙逐渐消失 (No gap)(见图 4 Step 800)。此时,处于同一剪切面上的金属质点在水平方向速度基本相同,试样持续通过转角发生剪切变形,沿内外角连线形成了近似平行四边形的大应变剪切变形面,变形连续、协调、稳定地进行,挤压载荷基本保持稳定。值得注意的是,与致密材料不同,变形后期挤压载荷略有上升。这里考虑可能是由于此时材料已接近完全致密,变形抗力增大, 模具内角处金属流动受到过大阻力所致,如图 4 Step 1000 中圆圈所示。

2.2 等效应变分析

等效应变的大小及分布情况在一定程度上可以反 映出试件变形累积的效果,从而进一步决定了材料晶 粒细化和组织致密的效果。

图 5 所示为试样在不同变形阶段的等效应变分布 情况。由图 5 可以看出:变形初期,由于头部变形不 均匀,等效应变分布较为复杂且不均匀,多集中于模 具内外拐角处。随着变形逐渐进入稳定变形阶段,试 样在连续稳定的剪切作用下,内部等效应变分布越来 越均匀;变形结束时,除头尾为小变形区之外,试样 内部形成了较为均匀的主要剪切变形区,基本呈四边 形分布,平均等效应变约为 1.07。



图 4 挤压过程中不同阶段试样的变形情况

Fig.4 Different stages of deformation during ECAP process



图 5 试样等效应变云图

Fig.5 Effective strain distribution of sample during ECAP process

为了能更直观地说明整个变形过程中试样内部各 质点的等效应变分布情况,本研究选取了纵横截面上 的 7 个跟踪点(选取方法详见图 2(b))进行详细分析, 如图 6 所示。



Fig.6 Effective strain of tracking points

由图 6 可以看出,试样各个部位的等效应变随着 变形时间的增加逐渐增大,最终达到一稳定数值。在 横截面上,靠近模具内角处质点(P₂)的等效应变要远 远高于靠近模具外角处的质点(P₃)和中部质点(P₁),且 等效应变达到稳定的时间也明显缩短;沿厚度方向各 点等效应变基本相同(P₁, P₄, P₅)。在纵截面上,各质 点等效应变变化趋势较为一致,靠近头部质点(P₆)进 入稳定变形区的时间略早于中部质点(P₁)和靠近尾部 的质点(P₇),各点等效应变大小最终逐渐趋于一致。

图 7 所示为变形结束时刻试样主要变形区中心纵 截面 *A*—*B* 处的等效应变分布情况。由图 7 可以明显 看出,沿高度方向试样等效应变值存在差异,位于模 具底部的材料所获得变形量明显较顶部小,该区域约 占整个纵截面高度的 1/4 左右。这是由于材料经过模 具转角时,位于内外转角处的金属流速存在差异,处 于下表面的金属流速较快,材料尚未完全充满模具拐 角且与其存在间隙,剪切变形不充分,所获得变形量 略小所致。应当注意的是,这种应变分布不均匀的现 象将不利于主要变形区获得晶粒细小和性能均匀的组 织,实际中应通过相应工艺方案如增加背压及过渡圆 角等措施加以改善和避免。



图 7 试样主要变形区 A—B 截面应变分布

Fig.7 Effective strain distribution of *A*—*B* section

2.3 平均应力分析

试样不同部位变形的不均匀性归结于试样内部各 质点应力状态的不对称性。图 8 所示为等径角挤压稳 定变形阶段试样内部平均应力的分布情况。







变形初期,由于受到冲头挤压作用的影响,靠近 模具内角处的金属所受压应力最大(*C*处),经转角剪 切变形材料进入水平通道后,之前的压应力转变成了 拉应力(*H*处)。与此不同的是,靠近模具外角处的金 属在刚刚进入转角剪切变形区时,由于金属粒子沿剪

process

切方向被拉长,初始压应力转变成了拉应力(H 处), 而当剪切变形结束试样进入水平通道时,材料又受到 了压应力的作用(F 处),即应力状态发生了压应力一拉 应力一压应力的转变。此外,由于试样存在端部效应, 头尾部分变形行为更加复杂,从而进一步加剧了试样 整体应力应变状态分布的不均匀性。

2.4 应变速率分析

在等径角挤压变形过程中,试样内部各金属质点 的瞬时变形状态可通过其等效应变速率及速度场的分 布情况反映出来。

图 9 所示分别为试样等效应变速率及速度场的分 布。从图 9(a)可以清楚地看出,在稳定变形阶段,试 样内部等效应变速率集中分布在模具内外转角处,呈 细长条带状分布,并在模具内角处应变速率达到局部 最大值,内外转角之间的中心区域应变速率数值较低, 但所占面积比例较大。这是由于挤压过程中,在冲头 外力的作用下,当试样经过模具转角受到剧烈剪切作 用时,速度方向发生了急剧改变,流经模具外转角地 带处的材料流动速度较高(见图 9(b)),实际剪切面的 位置向水平通道方向发生了偏移,导致实际剪切角度 略大于理想剪切角度。



图9 试样等效应变速率及速度场分布

Fig.9 Distributions of effective strain rate (a) and velocity (b) of sample

2.5 致密行为分析

有关研究表明^[20-21],当粉末材料的密度达到一定 程度时,其相关力学性能会有质的突变。因此,有效 消除材料内部孔隙,细化材料内部组织,提高材料综 合力学性能便成为粉末材料塑性加工的主要目的。

图 10 和 11 所示分别为等径角挤压过程中不同变 形阶段试样相对密度分布云图及相应跟踪点的相对密 度变化情况。由图 10 可以看出,变形初期在冲头压力 的作用下,材料致密程度得到明显改善,且越靠近冲 头材料密度越大(见图 10②)。随着挤压过程的不断进 行,在模具转角处强烈的剪切作用下,材料密度得到 进一步提高(见图 10③和④),最终形成一个较为稳定 且分布较为均匀的高密度区域(见图 10⑤)。对比图 11 与图 6 可以发现,试样的密度分布状况与其应变分布 特征存在较好的一致性,应变量较大的区域材料致密 程度也较高。



图 10 ECAP 不同变形阶段试样相对密度分布 Fig.10 Relative density distribution of sample during ECAP



Fig.11 Relative density of tracking points

为了更加深入地了解变形过程中主要变形区内材料的致密过程,选取中心质点 P₁进行跟踪观察,其相对密度的变化规律如图 12 所示。由图 12 可知,在整个变形过程中,根据曲线的变化趋势可将材料致密化过程分为如下 4 个阶段。

 L实阶段 该阶段试样尚未进入剪切变形区 域,处于一种压缩状态。由于初始时刻材料内部孔隙 较多,在冲头压力作用下,材料内部形成了较大的静 水压力,孔隙大量收缩,密度上升较快。

2) 缓慢增长阶段 随着试样被逐步挤入模具转角 地带,由于前一阶段材料整体密度的提高,孔隙数量 和大小都得到明显减少,试样内部将产生加工硬化现 象,静水压力的致密效应将逐渐减弱。因此,材料致 密程度增长的速度开始逐步减缓。 3)快速增长阶段 在模具转角处大剪切变形的作用下,内部孔隙随基体材料发生剪切变形,得到了有效焊合。此时,基体组织之间结合紧密程度不断增加,剪切塑性变形的致密效应得到不断加强,试样致密程度得到显著提高。

4) 稳定阶段 当试样被挤入水平通道后,材料已 基本达到理论压实密度,接近完全致密。此后,试样 处于刚性平移阶段,密度基本不再发生变化。



Fig.12 Relative density of point P_1

3 实验验证

考虑到粉末材料塑性变形能力较弱,为保证挤压 过程顺利进行,本研究在 400 ℃条件下进行了纯钼粉 末多孔烧结材料—不锈钢包套单道次等温 ECAP 实验 研究。

实验前将纯钼粉末制成具有一定强度和密度的挤 压毛坯(相对密度约为 0.8),经 1 760 ℃真空高温烧结 6 h 后将其加工成 d7 mm×15 mm 的圆柱状试样,装入 包套内备用,材料初始晶粒尺寸约为 75.78 µm。实验 所用模具参数与模拟设置相一致,冲头挤压速度约为 1 mm/s,采用石墨--机油润滑以减小摩擦对整个变形 过程的影响。挤压前毛坯及包套实物图如图 13 所示。

图 14 所示为 ECAP 变形前后试样横截面上的显 微组织。由图 14 可以看出, ECAP 工艺强烈的剪切效 应对粉末材料具有强烈的致密效果,初始状态下试样 内部存在的少量微孔隙(见图 14(a)中箭头部分所示)已 基本完全闭合。经排水法测得变形后试样整体相对密 度为 0.98,已接近完全致密,这与前述有限元模拟结 果相一致。此外,材料在高度致密的同时其显微组织 也得到明显细化,1 道次 ECAP 变形后平均晶粒尺寸 约为 32.65 µm。



图 13 挤压前毛坯及包套实物图

Fig.13 Schematic diagram of sample and tube before ECAP



图 14 初始烧结体及一道次 ECAP 后试样横截面光学显微 组织

Fig.14 Optical microstructures of sample at transverse plane: (a) Initial; (b) After single pass of ECAP

4 结论

 1) 纯钼粉末多孔烧结材料单道次 ECAP 变形过 程分为3个阶段:挤压初始阶段,过渡变形阶段及稳 定变形阶段。变形初期,试样与剪切通道之间存在间 隙,随着通道对试样摩擦力的不断增大,间隙逐渐消 失。变形后期,由于材料致密程度的提高及模具内角 处金属流动阻力的增大,挤压载荷略有上升。

2) ECAP 变形过程中,试样等效应变和相对密度的分布呈现不均匀性。靠近模具内角和上表面处试样应变较大,相对密度也较高。试样不同部位所处应力状态及速度场分布的不一致是导致其应变不均匀分布

的根本原因。

3) ECAP 工艺强烈的剪切效应对粉末材料具有强 烈的致密和细化效果。纯钼粉末多孔烧结材料在 400 ℃条件下经1道次等温 ECAP 变形后,整体相对密度 达到 0.98,接近完全致密;显微组织得到明显细化, 平均晶粒尺寸约为 32.65 μm。

REFERENCES

- 罗振中. 钼的应用及其发展[J]. 中国钼业, 1998, 22(4): 17-20.
 LUO Zheng-zhong. Application and development of molybdenum[J]. China molybdenum industry, 1998, 22(4): 17-20.
- [2] 王东辉, 袁晓波, 李中奎, 郑 欣, 张军良, 张 清, 白 润. 钼 及钼合金研究与应用进展[J]. 稀有金属快报, 2006, 25(12):
 1-7.

WANG Dong-hui, YUAN Xia-obo, LI Zhong-kui, ZHENG Xin, ZHANG Jun-liang, ZHANG Qing, BAI Run. Progress of research and applications for Mo metal and its alloys[J]. Rare Metals Letters, 2006, 25(12): 1–7.

- [3] VALIEV R Z, ISLAMGALIEV R K, ALEXANDROV I V. Bulk nanostructured materials from severe plastic deformation[J]. Progress in Materials Science, 2000, 45: 103–189.
- [4] 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.
- [5] KIM H S, SEO M H, HONG S I. Plastic deformation analysis of metals during equal channel angular pressing[J]. Journal of Materials Processing Technology, 2001, 113: 622–626.
- [6] SUO Tao, LI Yu-long, GUO Ya-zhou, LIU Yuan-yong. The simulation of deformation distribution during ECAP using 3D finite element method[J]. Materials Science and Engineering A, 2006, 432: 269–274.
- [7] XU W, WU X, HONMA T, RINGER SP, XIA K. Nanostructured Al–Al2O3 composite formed in situduring consolidation of ultrafine Al particles by back pressure equal channel angular pressing[J]. Acta Materialia, 2009, 57: 4321–4330.
- [8] SENKOV O N, SENKOVA S V, SCOTT J M, MIRACLE D B. Compaction of amorphous aluminum alloy powder by direct extrusion and equal channel angular extrusion[J]. Materials Science and Engineering, 2005, A393: 12–21.
- [9] CHANG S Y, LEE K S, CHOI S H, SHIN D H. Effect of ECAP on microstructure and mechanical properties of a commercial 6061 Al alloy produced by powder metallurgy[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2003, 354: 216–220.
- [10] 刘 咏, 唐志宏, 周科朝, 李志友. 纯铝等径角技术(II)—变形 行为的模拟[J]. 中国有色金属学报, 2002, 13(2): 294-299.
 LIU Yong, TANG Zhi-hong, ZHOU Ke-chao, LI Zhi-you. Equal channel angular pressing process of pure aluminum (II)—Simulation of deformation behavior[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2003, 13(2): 294-299.
- BRASZCZYNSKA-MALIK KN. Spherical shape of *y*-Mg17Al12 precipitates in AZ91 magnesium alloy processed by

equal-channel angular pressing[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2009, 487: 263–268.

- [12] 吕 哲,郑立静,于 燕,李焕喜,高文理. 7050 铝合金等通道 多转角挤压过程的三维有限元模拟[J]. 稀有金属材料与工程, 2008, 37(12): 2125-2128.
 LV Zhe, ZHENG Li-jing, YU Yan, LI Huan-xi, GAO Wen-li. Finite element simulation of deformation behavior of aluminum alloy 7050 during equal channel multi-angular pressing[J]. Rare metal materials and engineering, 2008, 37(12): 2125-2128.
- [13] LUGO N, LLORCA N, SUNOL J J, CABRERA J M. Thermal stability of ultrafine grains size of pure copper obtained by equal-channel angular pressing[J]. Journal of Materials Science, 2010, 45: 2264–2273.
- [14] LAPOVOK R, TOMUS D, SKRIPNYUK VM, BARNETT MR, GIBSOND MA. The effect of hydrogenation on the ECAP compaction of Ti–6Al–4V powder and the mechanical properties of compacts[J]. Materials Science and Engineering A, 2009, 513/514: 97–108.
- [15] XIA K, WU X. Back pressure equal channel angular consolidation of pure Al particles[J]. Scripta Materialia, 2005, 53: 1225–1229.
- [16] 李 萍, 黄科帅, 薛克敏, 周明智, 韩国民. 纯铝粉末多孔烧结材料等通道转角挤压[J]. 中国有色金属学报, 2009, 19(5): 881-886.
 LI Ping, HUANG Ke-shuai, XUE Ke-min, ZHOU Ming-zhi, HAN Guo-min. Equal channel angular pressing of pure Al powder sintered material[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2009, 19(5): 881-886.
 [17] MAPTIN P. EPANTISEK S. OTTO P. DECUENA C. ECADER.
- [17] MARTIN B, FRANTISEK S, OTTO B, REQUENA G ECAP vs. direct extrusion —Techniques for consolidation of ultra-fine Al particles[J]. Materials Science and Engineering A, 2009, 504: 1–7.
- [18] QUANGA P, JEONG YG, YOON SC, HONG SH, KIM HS, Consolidation of 1vol.% carbon nanotube reinforced metal matrix nanocomposites via equal channel angular pressing[J]. Journal of Materials Processing Technology, 2007, (187/188): 318–320.
- [19] MANI B, PAYDAR MH. Application of forward extrusion-equal channel angular pressing(FE-ECAP) in fabrication of aluminum metal matrix composites[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2010, 492: 116–121.
- [20] 周明智, 薛克敏, 李 萍. 粉末多孔材料等径角挤压过程热力 耦合有限元数值分析[J]. 中国有色金属学报, 2006, 16(9): 1510–1516.

ZHOU Ming-zhi, XUE Ke-min, LI Ping. Coupled thermo-mechanical finite element analysis of metal with porosities during equal channel angular pressing process[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2006, 16(9): 1510–1516.

[21] 李 萍, 薛克敏, 周明智. 铝粉烧结材料等通道转角挤压组织 性能演变[J]. 材料研究学报, 2009, 23(6): 577-581.
LI Ping, XUE Ke-min, ZHOU Ming-zhi. Microstructure and properties evolution and mechanism analysis of sintered aluminum powder during equal channel angular expression[J].
Chinese journal of materials research, 2009, 23(6): 577-581.