

等通道球形转角挤压过程中工业纯铝的微观组织演变与力学性能

王晓溪¹, 张翔^{2,3}, 庄翌¹, 陆佳鑫¹, 井新宇¹

(1. 徐州工程学院, 江苏 徐州 221018)

(2. 江苏徐州工程机械研究院, 江苏 徐州 221004)

(3. 高端工程机械智能制造国家重点实验室, 江苏 徐州 221004)

摘要: 突破传统 ECAP 变形全过程通道等截面思路, 提出一种耦合剪切应变和正应变于一体的新型等通道球形转角挤压 (equal channel angular extrusion with spherical cavity, ECAE-SC) 工艺。在自行研制的模具上对工业纯铝进行室温单道次 ECAE-SC 挤压实验, 采用 OM、EBSD 和 TEM 等技术手段, 研究了 ECAE-SC 变形过程中工业纯铝微观组织的演变规律, 并测试了变形后试样的显微硬度。结果表明, 在 ECAE-SC 工艺剧烈简单剪切变形诱导下, 工业纯铝仅需 1 道次挤压变形即可获得等轴、细小、均匀的超细晶组织, 平均晶粒尺寸约为 400 nm; 工业纯铝室温 ECAE-SC 变形以位错滑移为主并伴有不完全连续动态再结晶, 其微观组织经历了剪切带→位错胞→小角度亚晶→大角度等轴晶粒等动态演化过程。1 道次 ECAE-SC 变形后, 工业纯铝组织以{110}<001>高斯织构为主, 同时存在部分{111}<112>铜型织构; 材料显微硬度值大幅提升, 由初始 289.4 MPa 提高到 565.3 MPa, 增幅高达 95.33%, 且分布均匀性良好。

关键词: 剧烈塑性变形; 等通道球形转角挤压; 应变累积; 晶粒细化; 组织演变

中图分类号: TG376

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2020)06-1963-07

现代科学技术和工业化进程的飞速发展, 对金属材料提出了苛刻的性能要求。剧烈塑性变形^[1,2] (severe plastic deformation, SPD) 作为一种先进的塑性加工技术, 具有强烈的晶粒细化能力, 它通过引入大的塑性应变能够直接将金属材料晶粒细化至亚微米甚至纳米级水平, 进而改善其微观组织结构, 提高材料综合性能。其中, 等通道转角挤压 (equal channel angular pressing, ECAP) 工艺^[3]备受学者的广泛关注并被深入研究, 被国际材料学界公认为是 SPD 技术中最具代表性和应用潜力的工艺之一。

研究表明, ECAP 技术可在不改变坯料截面形状和尺寸的前提下, 通过反复多道次、变换多路径的剧烈塑性剪切变形累积较高的塑性应变, 进而细化晶粒。目前, 人们利用 ECAP 技术已成功制备出包括纯金属、合金及金属间化合物等在内的各种块体超细晶 (ultrafine grained, UFG) 材料。然而, 随着研究的不断深入, 传统 ECAP 工艺也逐渐凸显出一些缺点^[4,5], 如晶粒细化能力有限、应变难以均匀控制、变形效率

不高、难以实现连续生产等, 因此限制了其在工业生产上的大规模应用。

近年来, 各国学者对传统 ECAP 技术进行改进与创新, 开发设计了多种具有不同变形形式的新型复合 SPD 工艺。如: Xue 等^[6]提出一种等径角挤压工艺 (equal channel angular pressing and torsion, ECAPT), 通过在传统 ECAP 出口通道内设置一段螺旋状型槽, 显著提高了变形过程中粉体材料内部的静水压力和侧表面变形, 实现了 200 °C 下纯铝粉末颗粒的完全固结和显著细化; Hu 等^[7]将传统正挤压与 ECAP 结合, 提出一种挤压-剪切 (extrusion-shear, ES) 复合挤压方法, 研制了适合 Gleeble-1500D 热模拟机的 ES 挤压装置, 开展了不同温度下的 AZ31 镁合金 ES 挤压实验, 研究了变形过程中材料微观组织、变形织构和力学性能的演变规律; Fadaei 等^[8]提出一种螺旋等通道转角挤压法 (spiral equal channel angular extrusion, Sp-ECAE), 经 200 °C 下 1 道次挤压使 AZ80 镁合金平均晶粒尺寸由初始铸态 48 μm 细化至 17 μm, 材料

收稿日期: 2019-06-19

基金项目: 国家自然科学基金 (51905462); 江苏省“六大人才高峰”高层次人才选拔培养资助项目 (GDZB-127); 江苏省科协青年科技人才“托举工程”资助培养项目 (苏科协发〔2018〕202 号)

作者简介: 王晓溪, 女, 1985 年生, 博士, 副教授, 徐州工程学院机电工程学院, 江苏 徐州 221018, 电话: 0516-83105376, E-mail: wxx19851109@sina.com

屈服强度和抗拉强度提高近 70%，同时获得了良好的塑性；Muhammad 等^[9]提出一种增量等通道转角挤压法（incremental equal channel angular pressing, I-ECAP），经 300 °C 下 6 道次挤压变形获得了具有亚微米晶粒结构的高强韧性超细晶工业纯钛。上述研究表明，基于 ECAP 技术的新型复合 SPD 工艺在提高材料累积应变效率、晶粒细化能力、强韧化改性以及减少变形缺陷等方面发挥了积极作用。

本研究基于传统 ECAP 法累积塑性应变和通道等截面的思路，提出一种集剪切、镦粗和挤压等多种变形方式于一体的新型等通道球形转角挤压工艺（equal channel angular extrusion with spherical cavity, ECAE-SC），在自行研制的 ECAE-SC 模具上实现了工业纯铝室温单道次复合、连续、高效剧烈塑性变形。采用 OM、EBSD、TEM 和显微硬度测试等方法研究了 ECAE-SC 变形过程中工业纯铝的组织与性能演变规律，在此基础上探讨了晶粒细化机制。

1 实 验

图 1 为本研究所采用的 ECAE-SC 工艺原理图。该工艺突破了传统 ECAP 变形全过程通道等截面的思路，在 ECAP 模具两条等径通道相交的转角处设置了一大尺寸球形空腔。在外力作用下，金属坯料进入转角球形膨胀区域时产生向外扩张力，受到类似于镦-挤复合的连续剪切变形，进而在材料内部产生应力集聚，极大地改善了坯料的受力状态，有效地提高了变形材料的应变累积效果。

实验材料为经均匀化退火处理的工业纯铝 1060 铸锭，采用线切割方法加工成 $\phi 15 \text{ mm} \times 80 \text{ mm}$ 的圆柱形棒料。在 Y32-100 型四柱液压机上对工业纯铝坯料进行室温 1 道次 ECAE-SC 变形实验，挤压速度约为 1 mm/s，自制的模具结构和变形后坯料实物如图 2 所示。

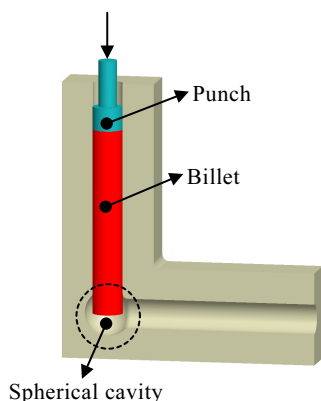


图 1 ECAE-SC 基本原理示意图

Fig.1 Schematic illustration of ECAE-SC die

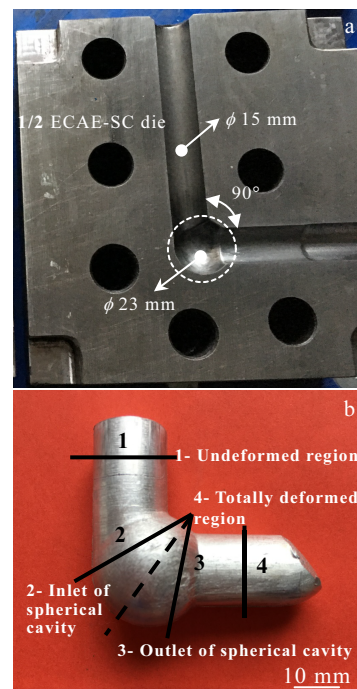


图 2 实验用 ECAE-SC 变形模具及挤压坯料实物图

Fig.2 Self-designed ECAE-SC die (a) and the processed billet (b)

ECAE-SC 模具为圆形截面通道，等径通道内角为 90°，通道尺寸为 $\phi 15 \text{ mm}$ ，转角处球形空腔直径为 $\phi 23 \text{ mm}$ 。实验前，在坯料表面和模具通道内壁均匀涂抹 MoS_2 -石墨复合润滑剂，以减小剧烈塑性变形过程中因摩擦产生的不利影响。

挤压结束后，分别从变形坯料 4 个不同部位（图 2b：1-未变形区；2-球形转角入口区；3-球形转角出口区；4-完全变形区）沿横截面切取试样，进行微观组织观察和力学性能测试，所有实验结果均取自试样中心部位。采用 5% HF 水溶液（5 mL HF+95 mL H_2O ）对制备好的金相试样进行腐蚀，在 Leica DMI5000M 型倒置式光学显微镜（OM）上进行金相组织观察。为进一步观察变形过程中材料内部微观结构特征，首先利用线切割切取厚度为 0.3 mm 的薄片，在细砂纸上将试样手工磨制至 60 μm 厚度，然后用打孔机剪裁出直径为 3 mm 的圆片，随后采用双喷电解抛光在试样中心进行减薄穿孔，电解液为 60% CH_3OH +35% $\text{C}_4\text{H}_{10}\text{O}$ +5% HClO_4 （体积比），电解温度约为 -30 °C，最后在 JEM-2010 高分辨透射电子显微镜上进行 TEM 观察，加速电压为 200 kV。EBSD 测试在 JSM-7001F 热场发射扫描电子显微镜上完成，试样经机械抛光后在 HClO_4 和 $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$ （体积比为 1:9）混合溶液中电解抛光 30 s，以去除表面残余应力，抛光电压为

30 V。室温下,采用德国 KB30S 型全自动维氏显微硬度试验机测量变形后不同部位试样的显微硬度,加载载荷 0.98 N,加载时间 15 s,同一试样在同一平面上以中心为圆心等距离选择 9 个不同的测量位置,取其平均值作为最终测试结果。

2 结果与分析

2.1 金相组织

图 3 为 1 道次 ECAE-SC 变形后,工业纯铝不同部位试样的金相组织。由图 3a 可以看出,未变形试样为原始铸态组织,晶粒粗大不均,近似呈等轴状分布,平均晶粒尺寸为 400~500 μm 。ECAE-SC 变形初期,工业纯铝坯料在外力下首先发生镦粗变形,随后进入球形转角空腔,体积膨胀变大,并逐渐贴合模具内壁。此时,转角内材料发生了剧烈的塑性流动,晶界开始变得模糊不清,组织中可观察到金属流线和剪切变形特征,如图 3b 箭头所示。由于球形空腔直径大于相交的等径通道,因此材料在 ECAE-SC 模具转角区域不仅受到传统 ECAE 变形产生的近似纯剪切作用,还将同时发生镦粗和挤压两种变形。而耦合镦-挤-剪切多种变形,材料实际受到剧烈的简单剪切变形^[10],进而使得变形晶粒沿剪切方向被显著拉长,且排布具有一定的方向性,与水平挤压方向约成 45° (图 3c)。1 道次 ECAE-SC 变形后,材料内部累积了较高的塑性应

变,大量剪切变形带的交叉、增殖导致晶粒细化和破碎现象十分明显,组织也变得更加细小和均匀 (图 3d)。观察图 3d 还可以发现,在这些细长剪切带之间和内部,还存在着大量微米级以下的细小等轴晶粒 (图 3d 中箭头所指)。

2.2 EBSD 分析

图 4 为工业纯铝 1 道次变形后晶粒的 EBSD 组织。从图 4 可以看出,在剧烈塑性剪切应变诱导下,工业纯铝试样经 1 道次 ECAE-SC 变形后,初始晶粒被剪切拉长呈细密、狭长的条带状,晶界变得模糊不连续,但多以小角度晶界结构为主,表明此时晶粒内部存在着大量的亚结构或亚晶。仔细观察图 4a 还可以发现,在这些细长晶粒的内部,还弥散分布着一些十分细小的破碎晶粒,它们呈等轴状分布并具有大角度晶界结构,晶粒尺寸在亚微米甚至纳米级别。

图 5 为 1 道次 ECAE-SC 变形后工业纯铝试样的极图 (PF) 与取向分布函数图 (ODF)。从图 5a 可以看出,工业纯铝 ECAE-SC 变形后晶粒取向出现弥散分布现象,形成了明显的剪切织构,最大极密度点接近于 {111} 极图中心位置。此外,在 {110} 极图中心附近还存在一个弱强度极点,这与 fcc 金属典型扭转变形所形成的织构形态特征相似^[11],考虑这与新型 ECAE-SC 工艺剧烈塑性剪切变形作用导致晶粒发生转动有关。结合图 5b 所示的 ODF 图可知, ϕ_2 从 40°

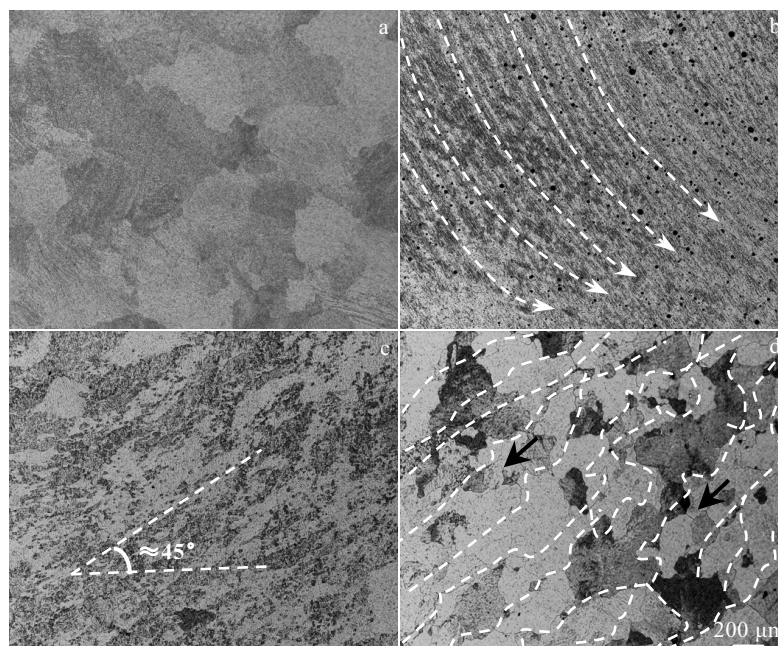


图 3 工业纯铝 1 道次 ECAE-SC 变形后不同部位试样金相组织

Fig.3 Optical microstructures of commercially pure aluminum at different deformation regions after one pass of ECAE-SC: (a) undeformed, (b) the inlet of spherical cavity, (c) the outlet of spherical cavity, and (d) totally deformed

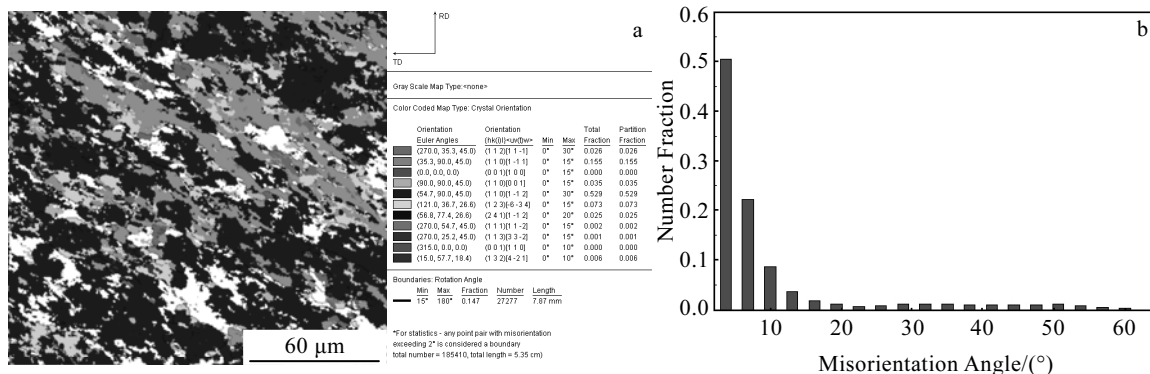


图 4 工业纯铝 1 道次 ECAE-SC 变形后 EBSD 组织

Fig.4 EBSD microstructure of commercially pure aluminum after one pass of ECAE-SC: (a) orientation distribution and (b) grain boundary distribution

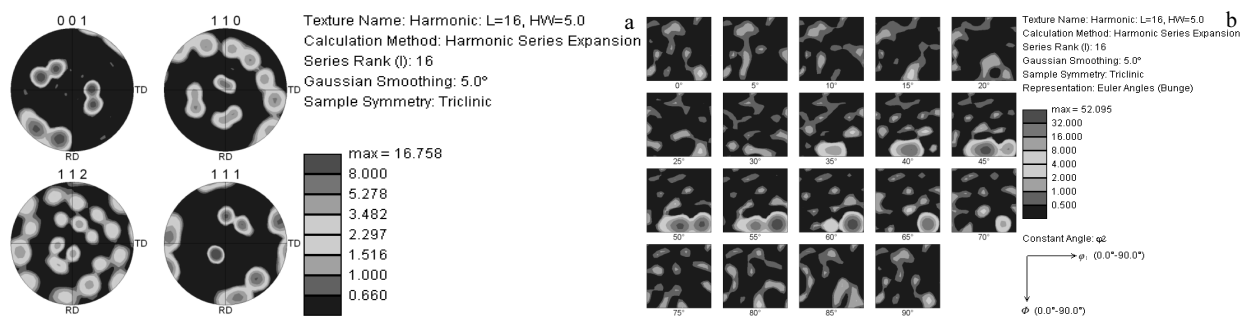


图 5 工业纯铝 1 道次 ECAE-SC 变形微观织构

Fig.5 Texture of commercially pure aluminum after one pass of ECAE-SC: (a) PF and (b) ODF

到 65° 均出现强点, 且强点多出现在截面图底部, 由此可推断出工业纯铝 ECAE-SC 变形织构以高斯织构 $\{110\}\langle 001 \rangle$ 为主, 同时含有部分铜型织构 $\{111\}\langle 112 \rangle$ 。

2.3 微观结构

图 6 为 1 道次 ECAE-SC 变形后工业纯铝试样的 TEM 组织。由图可知, 变形初期, 材料内部剪切变形的痕迹十分明显, 出现了许多平行板条状剪切带 (图 6a), 板条宽度为 200~300 nm。狭长板条组织内部位错密度较高, 大量位错不断地产生、增殖、累积, 形成了高密度的位错缠结和位错墙 (图 6b)。

随着挤压过程进行, 材料内部累积应变增加, 位错密度继续上升, 晶格缺陷增加, 产生了很强的晶格畸变能, 从而导致动态回复过程的发生^[12]。部分位错通过重排和相消形成位错胞, 胞内位错开始逐渐向胞壁转移。组成胞壁的位错墙不断吸收附近位错, 使得位错墙厚度减小, 并进一步分割板条组织, 位错胞逐渐演化成为小角度胞状亚结构, 此时板条边界变得模糊, 内部锯齿状亚晶界清晰可见 (图 6c)。变形后

期, 材料内部应变量进一步增大, 细小的亚晶通过位向旋转和剪切变形不断地吸收位错^[13], 促使小角度晶界不断向大角度晶界结构转变, 最终在工业纯铝内部形成了组织细小、均匀的等轴超细晶组织, 平均晶粒尺寸在 400 nm 以下 (图 6d)。

仔细观察图 6d 可知, 变形组织中一些晶粒内部较为干净而仅有少量位错结构, 晶界相对平直、清晰, 由此可推断 ECAE-SC 变形过程中, 工业纯铝组织中还出现了不完全连续动态再结晶^[14]。此外, 从选区电子衍射 (SAED) 还可以发现, 衍射花样呈环形分布但衍射斑点较为发散, 表明一些破碎的细小晶粒已逐渐演变成为大角度晶界结构, 但同时材料内部产生了大量的晶体缺陷, 变形组织中仍存在部分小角度晶界结构^[15]。

以上实验结果表明, 工业纯铝 ECAE-SC 变形组织中小角度与大角度晶界结构并存, 其微观组织经历了板条状剪切带→胞状组织→小角度亚晶→大角度等轴晶等晶粒细化的演变过程。工业纯铝室温 ECAE-SC

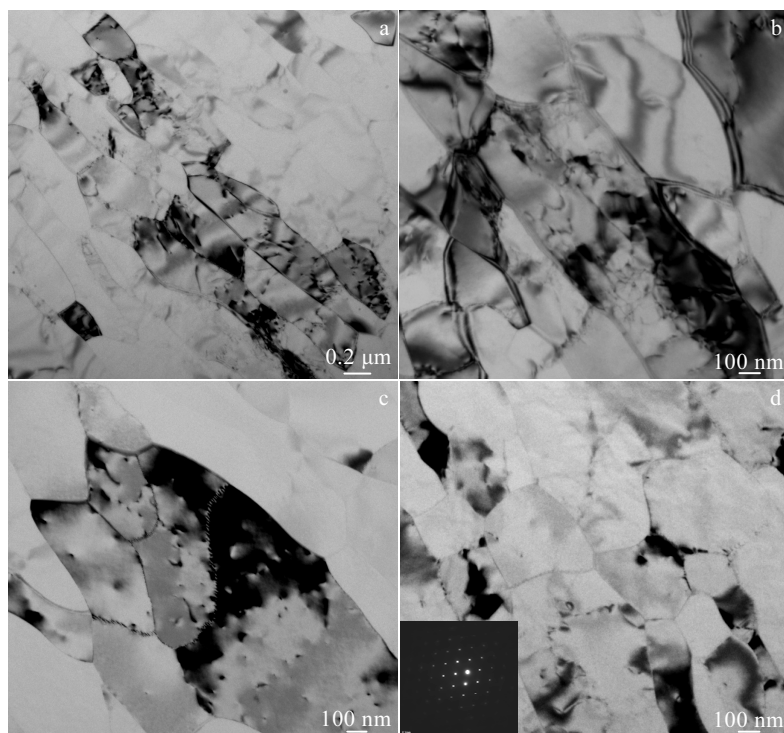


图 6 工业纯铝室温 1 道次 ECAE-SC 变形 TEM 组织

Fig.6 TEM microstructure of commercially pure aluminum after one pass of ECAE-SC: (a) shear bands, (b) dislocations with high density, (c) subgrains with low angle boundaries, and (d) equiaxed ultrafine grains

变形晶粒细化机制以位错滑移为主，并伴有不完全连续动态再结晶。

2.4 显微硬度

图 7 给出了工业纯铝经 1 道次 ECAE-SC 变形后，不同部位试样横截面上的显微硬度分布。从图 7a 可知，1 道次 ECAE-SC 变形后，工业纯铝显微硬度有了

明显的提高，平均硬度值从初始 289.4 MPa 增加至 565.3 MPa，增幅高达 95.33%，同时硬度分布均匀性也较好。变形初期，当坯料被挤入球形转角区（区域 2）时，显微硬度急剧升高，材料强化效果最好，平均硬度值为 476 MPa。随后的 ECAE-SC 变形使得材料内部累积应变变量继续增加，显微硬度值继续增加，但增

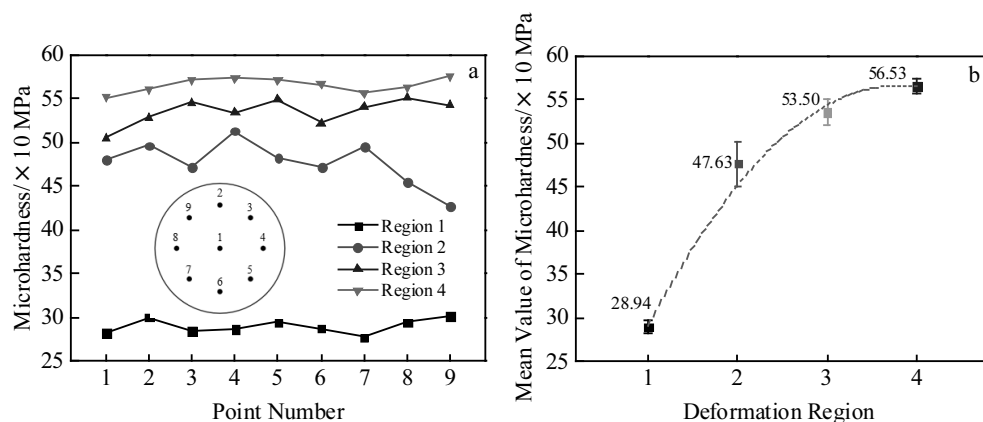


图 7 工业纯铝 1 道次 ECAE-SC 变形后不同部位试样横截面显微硬度

Fig.7 Microhardness of commercially pure aluminum on the cross section at different deformation regions: (a) microhardness distribution, and (b) average values of microhardness

幅逐渐变小。仔细观察图 7b 还可以发现, ECAE-SC 变形过程中, 随着应变量的增加, 工业纯铝试样不仅显微硬度大大提高, 且硬度分布均匀性也得到进一步改善。

显微硬度这一变化趋势与前述工业纯铝 ECAE-SC 微观组织演变过程密切相关。变形初期, 材料在转角区域受到简单剪切应力作用, 剧烈的塑性剪切变形使得初始晶粒发生细化和破碎, 内部形成了大量含有高密度位错的平行板条, 产生了大量晶体缺陷, 阻碍了位错的运动^[16], 从而使得硬度值显著提升。由于纯铝具有较高的层错能, 变形过程中位错容易产生交滑移, 大部分位错会以动态回复的方式相抵消^[17], 位错不断被亚晶界(小角度晶界)吸收湮灭, 最终形成了具有大角度晶界结构的超细晶粒。因此, 随着累积应变量的不断增加, 大量晶体缺陷导致材料内部具有较高的晶格畸变能, 从而为动态回复和动态再结晶提供了驱动力, 使得工业纯铝变形组织中出现了软化现象, 进而表现为变形后期材料显微硬度增幅减小, 硬度值逐渐趋于饱和。

综上所述, 新型 ECAE-SC 工艺模具转角处大尺寸“球形分流”的特殊结构设计, 实现了传统 ECAP 剪切变形与镦粗、挤压等多种变形形式的有机结合, 具有更加优越的晶粒细化能力。在剧烈简单剪切应变诱导作用下, 工业纯铝实现了室温单道次复合、高效、连续变形, 材料变形效率和晶粒细化效果均得到了显著提高。

3 结 论

1) 在剧烈简单剪切应变诱导下, 工业纯铝仅需室温 1 道次 ECAE-SC 变形, 晶粒即可被细化至亚微米级水平, 平均晶粒尺寸约为 400 nm; ECAE-SC 变形后工业纯铝以高斯织构{110}<001>为主, 同时含有部分铜型织构{111}<112>。

2) 工业纯铝室温 ECAE-SC 变形以位错滑移为主, 并伴有不完全连续动态再结晶。变形组织中首先产生了大量含有高密度位错的板条状剪切带, 随着应变量的增加, 缠结的位错通过重排或相消逐渐演变成位错胞, 形成小角度亚晶, 随后被拉长的亚晶通过位向旋转和剧烈剪切不断破碎、细化, 最终转变成成为具有大角度晶界结构的等轴超细晶组织。

3) ECAE-SC 变形具有强烈的细晶强化效果。工业纯铝经 1 道次 ECAE-SC 变形后, 显微硬度提升明显, 硬度值从初始 289.4 MPa 增加至 565.3 MPa, 增幅高达 95.33%, 且硬度整体分布较为均匀。

参考文献 References

- [1] Harsha R N, Mithun Kulkarni V, Satish Babu B. *Materials Today: Proceedings*[J], 2018, 5(10): 22 340
- [2] Wang Hui(王 辉), Liu Manping(刘满平), Tang Kai(唐 恺) et al. *Materials Review(材料导报)*[J], 2016, 30(8): 119
- [3] Valiev R, Langdon T G. *Progress in Materials Science*[J], 2006, 51(7): 881
- [4] Lu Liwei(卢立伟), Zhao Jun(赵 俊), Chen Shengquan(陈胜泉) et al. *The Chinese Journal of Nonferrous Metal(中国有色金属学报)*[J], 2015, 25(9): 2350
- [5] Feng Qiang(冯 强), Yang Xing(杨 兴), Sun Zanpeng(孙赞鹏) et al. *Journal of Guangxi University, Nat Sci Ed(广西大学学报, 自然科学版)*[J], 2017, 42(5): 1657
- [6] Li P, Xue K M, Wang X et al. *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*[J], 2014, 24(5): 1289
- [7] Hu H J, Liu Y, Zhang D et al. *Journal of Alloys and Compounds*[J], 2017, 695: 1088
- [8] Fadaei A, Farahafshan F, Sepahi-Boroujeni S. *Materials and Design*[J], 2017, 113: 361
- [9] Muhammad J Q, Giribaskar S, Andrzej R. *Materials and Design*[J], 2017, 122: 385
- [10] Wang Xiaoxi(王晓溪), Zhang Xiang(张 翔), Zhang Lei(张磊) et al. *The Chinese Journal of Nonferrous Metals(中国有色金属学报)*[J], 2019, 29(7): 1360
- [11] Lv Mengnan(吕梦南), Yang Xirong(杨西荣), Zhao Xicheng(赵西成) et al. *Materials Science & Technology(材料科学与工程)*[J], 2014, 22(4): 113
- [12] Wu Shiding(吴世丁), An Xianghai(安祥海), Han Weizhong(韩卫忠) et al. *Acta Metallurgica Sinica(金属学报)*[J], 2010, 46(3): 257
- [13] Howeyze M, Arabi H, Eivani A R et al. *Materials Science and Engineering A*[J], 2018, 720: 160
- [14] Li P, Lin Q, Wang X et al. *International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*[J], 2018, 72: 367
- [15] Najafi S, Eivani A R, Samaee M et al. *Materials Characterization*[J], 2018, 136: 60
- [16] Jing Feifei(井菲菲), Yang Xirong(杨西荣), Liu Xiaoyan(刘晓燕) et al. *Rare Metal Materials and Engineering(稀有金属材料与工程)*[J], 2018, 47(4): 125
- [17] Wang Chengpeng(汪程鹏), Li Fuguo(李付国), Lu Hongya(陆红亚) et al. *Heat Treatment of Metals(金属热处理)*[J], 2012, 37(2): 14

Microstructure Evolution and Mechanical Properties of Commercially Pure Aluminum During Equal Channel Angular Extrusion with Spherical Cavity (ECAE-SC)

Wang Xiaoxi¹, Zhang Xiang^{2,3}, Zhuang Yi¹, Lu Jiabin¹, Jing Xinyu¹

(1. Xuzhou University of Technology, Xuzhou 221018, China)

(2. Jiangsu Xuzhou Construction Machinery Research Institute, Xuzhou 221004, China)

(3. State Key Laboratory of Intelligent Manufacturing of Advanced Construction Machinery, Xuzhou 221004, China)

Abstract: A new process named equal channel angular extrusion with spherical cavity (ECAE-SC) is proposed based on the idea of breaking through the equal channel during the whole process of traditional ECAP, which combines positive strain with shear strain. On the self-designed ECAE-SC die, the continuous, efficient and compound severe plastic deformation of commercially pure aluminum was realized in a single pass of ECAE-SC at room temperature. Microstructure evolution of commercially pure aluminum during ECAE-SC process was analyzed by optical microscopy (OM), EBSD and TEM. Moreover, microhardness of the processed materials at different deformation regions was tested. The results show that under the severe plastic deformation induced by simple shear, the equiaxed ultrafine grains with average grain size of 400 nm can be obtained by only one pass of ECAE-SC. The deformation mechanism of ECAE-SC at room temperature is dominated by dislocation slip accompanied with incomplete continuous dynamic recrystallization, and the grain refinement process mainly includes the generation of shear bands, the formation of cellular substructures, the appearance of subgrains with low angle boundaries (LABs) and the formation of equiaxed ultrafine grains with large angle boundaries (HABs). After one pass of ECAE-SC, the main texture of commercially pure aluminum is Gauss texture $\{110\} \langle 001 \rangle$, while some $\{111\} \langle 112 \rangle$ copper texture exists. The microhardness of the processed materials on the cross section increases significantly, and the average value increases from 289.4 MPa to 565.3 MPa, with an increase of 95.33%. Meanwhile, a more uniform hardness distribution is obtained.

Key words: severe plastic deformation (SPD); equal channel angular extrusion with spherical cavity (ECAE-SC); strain accumulation; grain refinement; microstructure evolution

Corresponding author: Wang Xiaoxi, Ph. D., Associate Professor, School of Mechanical and Electrical Engineering, Xuzhou University of Technology, Xuzhou 221018, P. R. China, Tel: 0086-516-83105376, E-mail: wx19851109@sina.com