

激光自蔓延烧结 Fe-Al 合金及其成型过程温度场数值模拟

李 刚, 许新颖, 葛少成

(辽宁工程技术大学, 辽宁 阜新 123000)

摘 要: 对 Fe40Al60 粉末压坯进行激光点燃自蔓延烧结, 利用 XRD、金相、硬度等表征手段, 分析烧结合金表层区、中部区和底部区的微观组织结构及宏观性能, 并采用有限元分析方法, 对 Fe40Al60 激光烧结过程的温度场进行数值模拟, 得到了烧结过程温度场分布云图和路径图。结果表明: 表层区产物相主要为 FeAl、Al₂O₃, 中部区产物相为 Fe₃Al、FeAl、Al₂O₃, 底层区产物相为 Fe₃Al、Al₂O₃ 和 Fe; 烧结合金表层区组织为条状, 中部区组织为胞状, 底层区组织为针状; 表层区硬度 HV 为 9010 MPa, 中间层硬度 HV 为 10 050 MPa, 底层区硬度 HV 为 9650 MPa。模拟结果表明: 10 s 时, 表层区温度最高为 1150 K, 中部区温度为 894.033 K, 底层区温度最低为 820.979 K。表明试样各区域物相与该区温度场模拟结果相一致。

关键词: Fe-Al 金属间化合物; 激光自蔓延烧结; ANSYS 软件; 温度场

中图分类号: TG113

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2016)11-2873-05

Fe-Al 金属间化合物具有比强度高^[1]和高温抗氧化^[2]、抗硫化、耐腐蚀^[3]等优异性能, 是极具潜力的高温结构材料^[4]。以 Fe₃Al 和 FeAl 为代表的 Fe-Al 金属间化合物具有比常见不锈钢、耐热钢和高温合金更优异的性能, 因此特别适用于作为结构部件使用, 在能源、动力、航空航天和机械等领域有广阔的应用前景^[5], 所以合成纯度较高的 Fe₃Al 和 FeAl 越来越受到学者的关注。激光诱导自蔓延烧结是一种制备 Fe-Al 金属间化合物的新技术, 与其他方法相比, 具有纯度高、污染少、节约能源等许多优点^[6], 其机理^[7]是采用激光作为点火的热源, 利用化学反应自身的生成热来维持材料的合成, 当反应被引发以后, 随着燃烧波的推进, 反应物转变为生成物。由于烧结过程中温度对于反应过程中的原子扩散和反应转化率影响很大^[8], 且温度又直接影响该区域的组织形貌、物相结构, 进而影响宏观力学性能。所以, 温度场分布的研究对于烧结产物的获得具有重要意义。

对金属材料进行激光烧结时, 材料内部的吸热、流动和冷却过程十分短暂和复杂, 致使数值模拟成为研究激光烧结的致密化过程的重要手段^[9]。瑞士的 S. Kolossov 等人^[10]基于连续介质理论建立了激光烧结过程的三维有限元分析模型, 模型考虑了温度和相变的变化对于比热容、热传导系数等材料特性和边界条件的影响。并且针对 Ti 粉烧结过程的温度场进行了数值模拟和实验验证。

Conneectiut 大学的 Y. W. Zhang^[11]建立了金属粉末的激光烧结过程温度场模型, 模型考虑了烧结过程中的密度变化和体积收缩, 但未考虑烧结过程中温度对于热物性参数的影响。南京航空航天大学的顾冬冬等人^[12,13]利用 ANSYS 软件, 根据金属粉末激光选区烧结的特点, 初步建立了用于模拟多组元金属粉末烧结过程中的传热行为的数学模型, 模型中考虑了热物性参数和相变潜热随温度的变化, 通过数值模拟计算得到金属粉末选区激光烧结的温度场随时间的变化规律。

本研究对 Fe40Al60 粉末压坯进行激光点燃自蔓延烧结, 测试烧结合金表层区、中部区和底部区的微观组织结构及宏观性能, 并基于激光烧结的数学模型, 采用有限元分析方法, 对 Fe40Al60 激光烧结过程的温度场进行模拟。

1 实 验

如表 1 所示, 实验所用 Al 粉、Fe 基粉的原子比为 3:2, 质量比为 5.4:7.5。

采用 QM-1SP2 型行星式球磨机进行球磨机进行球磨, 球磨时间为 4 h, 球磨前粉末装罐后抽真空以防止球磨过程中的氧化。

将混合均匀的原始粉末在 WE-30 型液压试验机上压制成 $\Phi 15 \text{ mm} \times 20 \text{ mm}$ 的圆柱形试样, 压制压力为 100 kN。

收稿日期: 2015-11-15

基金项目: 国家自然科学基金 (51274116)

作者简介: 李 刚, 男, 1969 年生, 博士, 教授, 辽宁工程技术大学, 辽宁 阜新 123000, 电话: 0418-3352431, E-mail: xuxinying66@163.com

表 1 实验材料及性质

Table 1 Experimental materials and property

Composition	Purity/%	Particle size/ μm	Impurity concentration, $\omega\%$
Fe	≥ 88.0	75	$\text{Cr} \leq 10, \text{Si} \leq 1, \text{RSO}_4 \leq 0.1$ $\text{C} \leq 0.1, \text{N} \leq 0.005, \text{Cu} \leq 0.005$
Al	≥ 99.0	15~75	$\text{Fe} \leq 0.17, \text{Si} \leq 0.11, \text{Cu} \leq 0.01$

采用 HL-1500 无氨横流 CO₂ 激光加工机对压坯进行引燃烧结, 光斑直径为 $\Phi 15 \text{ mm}$, 引燃功率为 1000 W。

对切割试样的表层区、中部区及底部区进行相应的组织性能测试。

采用 XRD-600X 型 X 射线衍射仪进行物相结构分析, Cu 靶作为 X 射线源, 扫描起始角度为 20°, 终止角度为 100°, 扫描速度 2°/min, 扫描时间 40 min。

用 40MAT 倒置显微镜进行显微组织观察, 其中腐蚀液成分为氟化氢溶液 (浓度为 40%), 硝酸溶液 (浓度为 98%), 蒸馏水 (浓度为 100%), 其体积比为 3:5:42。

在 HV-50 型维氏硬度计上测烧结合金的显微硬度, 其中载荷 20 kg, 保载时间 10 s, 在烧结合金上、中、下 3 个面分别测试 5 点, 取其平均值即为该层硬度值。

2 结果与分析

2.1 XRD 分析

图 1 为烧结功率为 1000 W, 烧结合金各区 XRD 图谱。可知, 表层区的物相主要为 Al₂O₃、AlFe, 中部区的物相主要为 Al₂O₃、Fe₃Al 和 FeAl; 底层区的物相主要为 Al₂O₃、Fe₃Al 和 Fe。Fe、Al 通过扩散反应, 生成了共晶的 FeAl 相以及富铁的 Fe₃Al。由于烧结是在空气中进行, Al 极易被氧化, 生成 Al₂O₃ 陶瓷颗粒, 可以改善 Fe-Al 金属间化合物材料的室温脆性及 600 °C 以上强度和蠕变抗力急剧降低等性能缺陷。在底层区, 可能由于自蔓延不充分, 有部分 Fe 残留。

2.2 显微组织表征

图 2 为烧结合金表层区、中部区和底部区的显微组织照片。比较可知, 中部区组织最均匀致密。这是因为

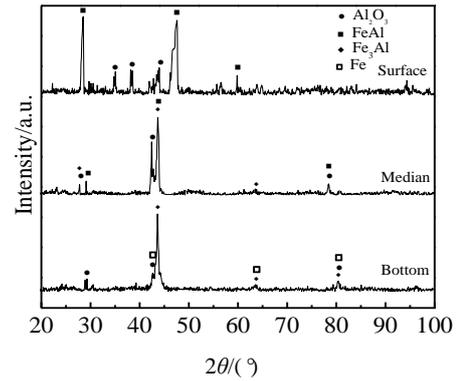


图 1 试样各层 XRD 图谱

Fig.1 XRD patterns of each layer of sintering alloy

激光在作用过程中, 各物相吸收能量最大处是在距表面一定的深度上, 所以中间面烧结的最好, 组织最均匀致密。而底层区不是激光直接作用, 属于自蔓延区, 温度没有中部区高, 烧结的不均匀, 形貌比较分散, 组织粗大。而表层区的合金由于激光能量过高, 反应较为剧烈, 使表层区合金中的杂质元素和部分 Al 迅速发生气化, 所以有一定量的孔洞。

2.3 硬度测试

表 2 为烧结合金不同区域的维氏硬度值。由表 2 可知, 表层区的 HV 硬度值为 9010 MPa, 中部区为 10 050 MPa, 底部区为 9650 MPa。结合 XRD 分析可知, 中部区是 FeAl 及 Fe₃Al 双相, 由于这 2 种金属间化合物的晶胞大、滑移面间隙小、对称性低, 而且滑移系的数量有限, 因此位错滑移困难, 故中部区硬度最高。表层区由于高能激光的直接冲击致使元素烧损, 硬度相对较低, 而底层区由于自蔓延反应不完全, 烧结的不均匀, 硬度介于两者之间。

3 有限元计算方法

3.1 激光烧结过程的热传导方程

由激光烧结过程的特点做出如下假设: 模型的初始

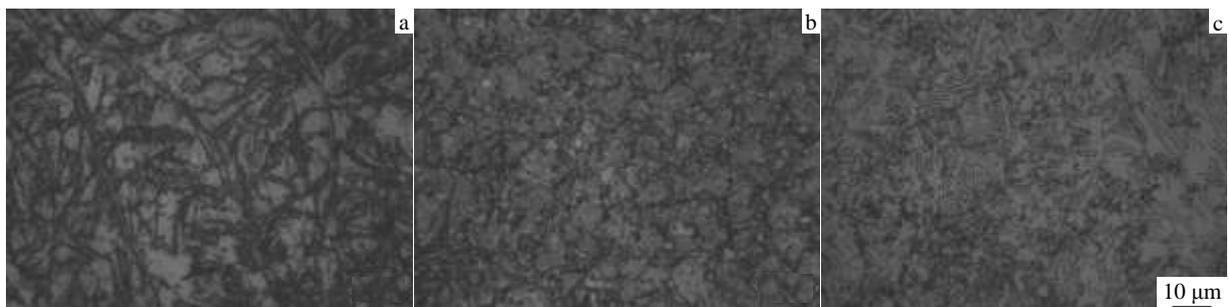


图 2 Fe-Al 烧结合金表层区、中部区、底层区的显微组织

Fig.2 Microstructures of Fe-Al sintering alloy surface (a) and the median (b), and the bottom (c) layers

表 2 烧结合金各区硬度值

Table 2 Vickers-hardness of evch layer of the sintering alloy (MPa)

Area	Hardness of the sintering alloy, HV
Surface	9010
Median	10050
Bottom	9650

温度为 298 K；忽略反应时模型与周围的辐射换热；激光只起到点火作用，不参与后续的反应；材料为各向同性。

激光诱导自蔓延过程中，粉末颗粒之间的热行为可以用典型的热传导方程来描述^[14]：

$$\rho c \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} (k \frac{\partial T}{\partial x}) + \frac{\partial}{\partial y} (k \frac{\partial T}{\partial y}) + Q \quad (1)$$

式中： ρ 为密度， kg/m^3 ； c 为比热容， $\text{J}/(\text{kg K})$ ； k 为导热系数， $\text{W}/(\text{m K})$ ； T 为温度， $^{\circ}\text{C}$ ； t 为时间， s ； Q 为相变潜热， W/m^3 。参数中 k ， c 都随温度变化。

3.2 初始条件和边界条件

激光诱导自蔓延反应中伴随着热传导、对流和热辐射 3 种传热方式。即粉末之间的热传导、压坯外表面与周围环境之间的对流换热、激光对照射面的热辐射。

初始条件：

$$T|_{t=0} = T_0 \quad (2)$$

式中， T 为零件的温度 ($^{\circ}\text{C}$)； t 为烧结的时间 (s)。

边界条件：

激光烧结温度场的计算用到以下 3 种边界条件：

(1) 第 1 类边界条件是指工件边界上的温度或温度场函数为已知，用公式表示为：

$$T|_s = T_s \quad (3)$$

$$T|_s = T_s \text{ 或 } T|_s = T(x, y, z, t)$$

式中，下标 s 为物体边界范围； T_s 为已知的工件表面温度，为定值； $T(x, y, z, t)$ 为已知工件表面温度函数，随时间，位置的变化而变化。

(2) 第 2 类边界条件是指物体边界上的热流密度分布 q_s 已知，可由下式表示：

$$k \frac{\partial T}{\partial n} = q_s(x, y, t) \quad (4)$$

(3) 第 3 类边界条件指边界上的物体与周围介质间的热交换，用下式表示：

$$k \frac{\partial T}{\partial n} = \alpha(T_a - T_s) \quad (5)$$

式中， q_s 为单位面积上的外部输入热源； α 代表对流换热系数，为 10； T_a 代表周围介质温度，为 298 K； T_s 为已知边界上的温度； n 为边界外法线的方向。

3.3 相变潜热处理

FeAl、Fe₃Al 的绝热温度均低于 1800 K，所以要想发

生自蔓延反应，必须外界对体系补充能量，用激光进行引燃，使 Fe 和 Al 发生高放热反应，这样可利用反应释放出来的热量将未反应部分预热，从而使燃烧波继续向前推进，完成整个烧结过程。在用 ANSYS 软件进行温度场模拟时，对激光直接照射面施加了热生成载荷，热生成数值是通过定义材料随温度变化热焓来算出的。如式 6 所示：

$$\Delta H = \int_{T_0}^T \rho c(T) dT \quad (6)$$

式中， H 为热焓， ρ 、 $c(T)$ 和 T 分别为密度、比热容和绝对温度。

4 烧结过程有限元模拟

4.1 建模及网格划分

烧结所用材料为 Fe40Al60，为 $\Phi 15 \text{ mm} \times 20 \text{ mm}$ 的圆柱形压坯，采用自由网格划分中的智能网格划分。考虑在激光直接烧结面上有较大的温度梯度，所以对激光直接照射区域采用较小的单元网格，保证网格具有足够的密度，以获得足够的计算精度。而对除直接照射面的区域采用较粗的网格以缩短求解时间。其结果如图 3 所示。

4.2 材料参数

为尽可能使模拟逼真并简化计算，分析中选用 SOLID70 单元作为分析单元，烧结过程温度场模拟属于典型的非线性瞬态分析，上述各项数据除密度外，都随温度发生明显变化，而如今有许多材料的热物理参数并不齐全，为解决这一问题，可以在 ANSYS 中输入材料在典型温度值时的热物理性能参数，建立相关参数的工程数据库，而对于那些未知温度处的参数可以通过插值法和外推法来确定。对于多组元粉末材料体系，其导热系数 λ 、比热容 c_p 都参数都与粉末材料所占比例有关，可通过下列方程估算得到^[15]。

$$\lambda = g_1 \lambda_1 + g_2 \lambda_2 \quad (7)$$

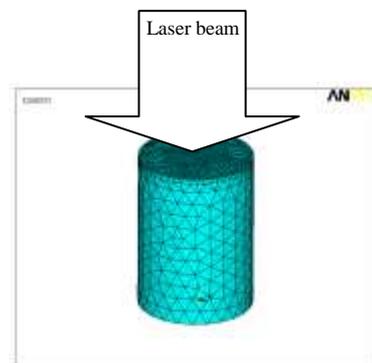


图 3 网格模型

Fig.3 Grid model

$$c=f_1c_1+f_2c_2 \tag{8}$$

式中, f_1 和 f_2 为 2 种粉末的质量分数, g_1 和 g_2 为 2 种粉末的体积分数。

材料各项热物理性能参数见文献[16]。

4.3 求解及模拟结果输出

输入上述参数后求解温度场, 可得到烧结几个时间点的温度场分布云图。图 4 为模型反应 6、8、10 s 时温度场分布云图。由图可知, 随着烧结时间的延长, 模型整体温度升高。模型上表面在烧结 6 s 时的温度为 1073 K, 8 s 时达到 1124 K, 10 s 时温度达到最高为 1150 K。中间面从 726.944 K 逐渐上升至 894.033 K, 下表面温度也由 627.947 K 逐渐上升到了 820.979 K。这是由于烧结时热量的积累效应造成的, 即已烧结部分对正在烧结部分有加热作用。此外, 随着烧结深度的增加, 烧结试样内部的温度和温度梯度迅速衰减, 这是因为热量在深度方向上的传播需要一定的时间, 而且深度越大, 热量传播的速度越慢, 温度下降的梯度越小。

图 5 为节点温度随时间变化历程图, 其中节点 1 位于表层区, 节点 2 处在中部区, 节点 3 位于底层区。从图中可以看出随着烧结时间的延长, 各节点的温度都在

升高, 并在 10 s 时达到最大值。节点 1 在 5.5 s 之前温度上升速度最快, 之后曲线趋于平缓, 说明表层区高放热反应集中在 5.5 s 内完成, 之后随着时间的增加, 温度上升不明显, 说明 10 s 内表层区烧结反应基本完成。节点 2、3 在 0~10 s 内曲线一直呈现上升趋势, 没有温度平台, 说明中间区和底层区在 10 s 内一直有反应发生。

5 模拟结果与实验结果相比较

结合 Fe-Al 体系激光诱导自蔓延反应热力学的特点, 可知当反应温度为 825 K 以下时^[17], 体系发生的反应为:



在此过程中, 当温度低于 Al 的熔点时, Fe_3Al 是通过 Fe 和 Al 元素在固态下发生扩散反应得到的, 随着温度的继续升高, 反应速率加快, 当温度达到 890 K 左右时^[18], 体系的主导反应为:



由温度场模拟结果可知, 烧结 10 s 后, 上表面温度最高为 1150 K, 中间面温度为 894.033 K, 下表面温度最低为 820.979 K。通过分析 Fe-Al 二元体系激光诱导自

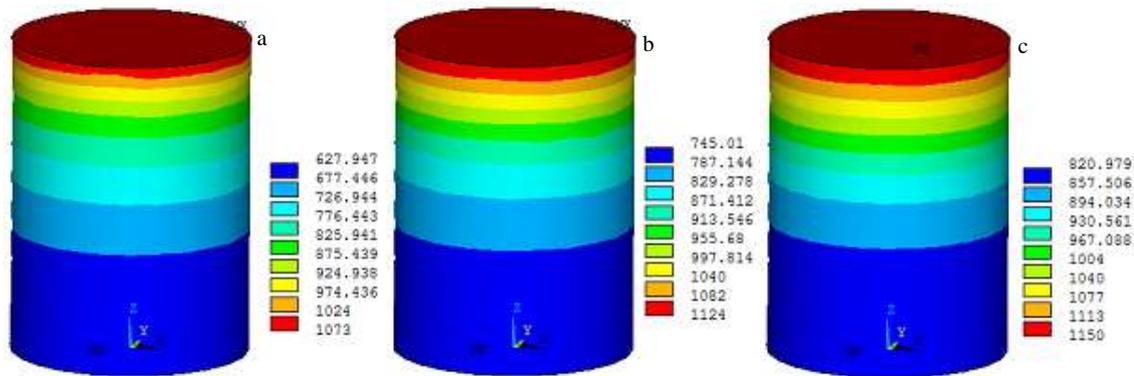


图 4 不同时间合金温度场分布云图

Fig.4 Temperature filed of sintering alloy at different time: (a) 6 s, (b) 8 s, and (c) 10 s

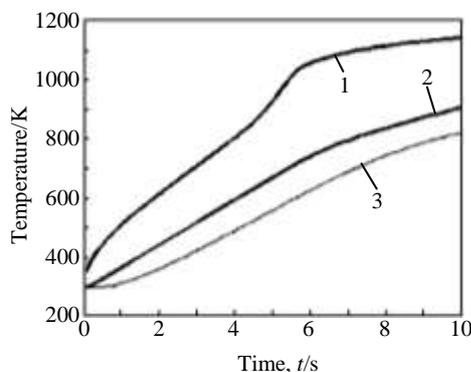


图 5 节点温度随时间变化曲线图

Fig.5 Node temperature graph changing over time

蔓延烧结反应热力学特点, 和式 (9)、(10) 可以得到烧结试样表层区、中部区和底部区的相组成, 与 XRD 分析结果一致。

6 结论

1) 烧结合金表层区产物相主要为 FeAl, 组织为条状, 硬度 HV 值为 9010 MPa, 中部区产物主要为 Fe_3Al 和 FeAl 双相, 组织为胞状, 硬度 HV 为 10 050 MPa, 底层区烧结产物主要为 Fe_3Al , 组织为针状, 硬度 HV 值为 9650 MPa。

2) 通过模拟计算可知 10 s 时, 合金表层区温度最高, 为 1150 K, 中部区温度为 894.033 K, 底层区温度

最低, 为 820.979 K。

3) 模拟结果与 XRD 分析结果相一致, 证明温度场模拟结果可靠。

参考文献 References

- [1] Li Tingting(李婷婷), Peng Chaoqun(彭超群), Wang Richu(王日初) *et al.* *The Chinese Journal of Nonferrous Metals*(中国有色金属学报)[J], 2011, 21(4): 784
- [2] Kang Xinting(康新婷), Yangkun(杨 坤), Wang Jian(王 建) *et al.* *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程) [J], 2012, 41(2): 822
- [3] Zhu Xiaolin, Yao Zhengjun, Gu Xuedong *et al.* *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*[J], 2009, 19(1): 143
- [4] Wang Bin(望 斌), Peng Zhifang(彭志方), Zhang Fan(张 凡) *et al.* *Materials Review*(材料导报)[J], 2007, 21(1): 75
- [5] Wang Jian(王 建), Tang Huiping(汤慧萍), Xing Jiandong(邢建东) *et al.* *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2011, 40(2): 545
- [6] Ma Yan(马 妍), Fan Quncheng(范群成), Gu Meizhuan(顾美转) *et al.* *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程) [J], 2006, 35(4): 567
- [7] Wang Cunshan(王存山), Xia Yuanliang(夏元良), Li Gang(李 刚) *et al.* *Chinese Journal of Lasers*(中国激光)[J], 2003, 30(5): 471
- [8] Li Gang(李 刚), Jin Hongmei(金红梅), Han Feng(韩 凤) *et al.* *Transactions of Materials and Heat Treatment*(材料热处理学报)[J], 2014, 35(3): 218
- [9] Ouyang Hongwu(欧阳鸿武), Liu Zhuomin(刘卓民), Wang Qiong(王 琼) *et al.* *Materials Science and Engineering of Powder Metallurgy*(粉末冶金材料科学与工程)[J], 2009, 14(4): 218
- [10] Kolossov S, Boillat E, Glardon R *et al.* *International Journal of Machine Tools & Manufacture*[J], 2004, 44: 117
- [11] Zhang Y W. *Thesis for Doctorate*[D]. Connecticut: University of Connecticut, 1998
- [12] Gu Dongdong, Shen Yifu, Liu Mancang. *Transactions of Nanjing University of Aeronautics & Astronautics*[J], 2004, 21(3): 225
- [13] Shen Yifu(沈以赴), Gu Dongdong(顾冬冬), Li Shouwei(李守卫) *et al.* *Journal of Nanjing University of Aeronautics & Astronautics*(南京航空航天大学学报)[J], 2008, 37(5): 638
- [14] Shen Xianfeng(沈显峰). *Thesis for Doctorate*(博士论文)[D]. Chengdu: Sichuan University, 2005
- [15] Li Deying(李德英). *Thesis for Doctorate*(博士论文)[D]. Nan-chang: East China Jiaotong University, 2010
- [16] Ye Dalun(叶大伦), Hu Jianhua(胡建华). *The Manual of Practical Inorganic Thermodynamic Data*(实用无机热力学数据手册)[M]. Beijing: Metallurgical Industry Press, 2002: 354
- [17] Liang Jixiefu(梁基谢夫). Translated by Guo Qingwei(郭青蔚). *The Manual of Metal Binary Phase Diagram*(金属二元系相图手册)[M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2008: 59
- [18] Shen Peizhi(沈培智), Gao Lin(高 麟), Gao Haiyan(高海燕) *et al.* *Materials Science and Engineering of Powder Metallurgy*(粉末冶金材料科学与工程)[J], 2010, 15(1): 42

Laser Ignition Induced Self-propagating Synthesis of Fe-Al Alloy and Numerical Simulation of Temperature Field in Forming Process

Li Gang, Xu Xinying, Ge Shaocheng

(Liaoning Technical University, Fuxin 123000, China)

Abstract: Fe40Al60 alloy was prepared by laser ignition induced self-propagating high-temperature synthesis. The microstructure and macroscopic properties of different areas in the sintered alloy were investigated by XRD, microscopic tests and hardness tests. The temperature field of Fe40Al60 was simulated by finite element analysis software ANSYS. Contour maps of temperature field and the path map were obtained after sintering for 10 s. The results show that the main phases of the alloy surface are FeAl and Al₂O₃, in the median layer are Fe₃Al, FeAl and Al₂O₃, while in the bottom layer are Fe₃Al, Al₂O₃ and Fe. The microstructure of the surface is strip-like, the median cellular, and the bottom fine needle. The hardness of 10050 MPa occurs in the median layer which is the highest, while that is 9010 MPa in the surface layer, and 9650 MPa in the bottom layer. The simulation result shows that at 10 s, the temperature of the direct laser sintering surface is up to 1150 K, the median is 894.033 K and the bottom 820.979 K, which are consistent with the XRD results.

Key words: Fe-Al intermetallic compound; laser ignition induced self-propagating high-temperature synthesis; ANSYS software; temperature field

Corresponding author: Li Gang, Ph. D., Professor, College of Material Science and Engineering, Liaoning Technical University, Fuxin 123000, P. R. China, Tel: 0086-418-3352431, E-mail: xuxinying66@163.com