

热处理对增材制造 AlSi10Mg 合金组织性能及残余应力的影响

唐鹏钧^{1,2,3}, 陈冰清^{2*}, 闫泰起², 楚瑞坤⁴, 郭绍庆², 李沛勇^{1,2,3}

1. 中国航发北京航空材料研究院铝合金研究所, 北京 100095
2. 中国航发北京航空材料研究院 3D 打印研究与工程技术中心, 北京 100095
3. 北京市先进铝合金材料及应用工程技术研究中心, 北京 100095
4. 飞而康快速制造科技有限责任公司, 无锡 214145

摘要 增材制造 AlSi10Mg 合金通常存在较大的残余应力, 对材料的服役使用产生不利影响, 故需要采用热处理对残余应力予以控制甚至消除。利用 X 射线衍射、光学显微镜、场发射扫描电子显微镜、透射电子显微镜、背散射电子衍射、维氏硬度和拉曼光谱试验, 研究了成形态和退火态合金的显微组织、性能及残余应力。结果表明, 成形态合金由过饱和 Al 固溶体和 Si 相组成, 其中, Si 相以网状共晶硅和弥散分布的纳米硅颗粒 2 种形态存在。同时, 成形态合金的晶粒细小, 其晶粒尺寸分布的 d_{50} 值约为 10.4 μm 。250~300 $^{\circ}\text{C}$ 退火使合金元素从过饱和 Al 固溶体中析出, 形成平衡相 Mg_2Si 和 Si 相; 且随着退火温度升高, 合金元素析出越彻底。此外, 退火还引起网状共晶硅和纳米硅颗粒粗化, 促使晶粒长大并诱发再结晶。由于退火后合金中的细晶强化、固溶强化和弥散强化效果减弱, 故合金的维氏硬度下降。然而, 退火可以显著降低合金的残余应力, 下降幅度达到 60%~80%。因此, 为更好地实现组织和性能调控, 有必要针对增材制造铝合金的特点开发新的热处理制度。

关键词 增材制造; AlSi10Mg 合金; 热处理; 显微组织; 残余应力

航空航天飞行器的轻量化设计和制造因能够降低飞行器自重、减少能源消耗、提高飞行器载重和机动性而成为航空航天领域追求的永恒目标。通常情况下, 采用轻质材料和多孔、中空或点阵结

构设计是实现轻量化的有效途径。铝合金具有高比强度和高比模量的特点, 成为航空航天领域不可或缺的轻质金属材料, 在各型号航空航天飞行器中广泛应用。经长期的发展, 目前已建立起铸造铝合

收稿日期: 2020-05-22; 修回日期: 2020-07-29

作者简介: 唐鹏钧, 工程师, 研究方向为航空先进铝合金, 电子信箱: louis_biam@foxmail.com; 陈冰清 (通信作者), 研究员, 研究方向为增材制造, 电子信箱: hwtkjcbq1984@163.com

引用格式: 唐鹏钧, 陈冰清, 闫泰起, 等. 热处理对增材制造 AlSi10Mg 合金组织性能及残余应力的影响[J]. 科技导报, 2021, 39(9): 36-47; doi: 10.3981/j.issn.1000-7857.2021.09.004

金、变形铝合金和粉末冶金铝合金材料体系。传统铝合金的制造大多需要利用工装模具进行成形,难以实现复杂结构或点阵结构的制造。增材制造(又称3D打印)是基于计算机辅助设计(computer aided design, CAD)对三维模型进行逐层分割,再利用高能热源将材料逐层堆叠而加工出三维实体零部件的技术^[1]。该技术利用有限元分析对三维模型进行拓扑结构优化,通常可以达到减重20%~60%的效果。采用高能激光束为热源的选区激光熔化技术因能够实现复杂结构零部件的快速精准成形,成为当前商业化应用最广泛的一种金属材料增材制造技术。

AlSi10Mg合金具有良好的增材制造工艺适应性,已用于卫星支架、月球探测器支架、航空散热部件等轻质结构件的制造^[2-4]。然而,增材制造成形过程中冷却速率高达 $10^6 \sim 10^8$ K/s^[5],且合金处于周期性、非稳态热循环作用下^[6],使得成形态合金通常存在较大的残余应力,导致材料的承载能力受到影响,且容易发生应力腐蚀,从而降低了材料服役使用的可靠性。热处理可以较好地消除合金组织中的残余应力,因而被广泛应用。但对于铝合金而言,热处理温度过高会导致组织粗化和平衡相转变;温度过低则可能无法获得较好的去应力效果。目前,国内外对于铝合金增材制造成形工艺的探索和优化、成形态组织和性能的研究报道较多,主要涉及成形过程中铝合金的凝固行为以及不同成形参数对组织致密度和力学性能的影响^[7-9]。对增材制造AlSi10Mg合金热处理的研究则集中于不同热处理对显微组织、室温拉伸性能、疲劳性能或腐蚀性能的影响。研究结果显示,退火处理、固溶处理或固溶-时效处理会引起合金中细小的网状共晶硅发生钝化或粗化,从而导致室温拉伸性能^[10-13]和疲劳性能^[14-15]出现不同程度的下降。当然,也有报道显示,低温退火或适当的固溶-时效处理可能提升合金的强度或硬度。例如,Kempen等^[16]发现175℃时效6 h后合金的抗拉强度略有增加,维氏硬度提高约11.8%。Rosenthal等^[17]报道了200℃退火处理2 h后合金的屈服强度提升约13.3%,抗拉强

度几乎保持不变。但令人疑惑的是,该状态下合金的残余应力反而比成形态增加了近一倍。Zhou等^[18]研究了不同固溶处理和时效处理后合金显微组织的演变及维氏硬度,发现经520℃/2 h固溶处理和160℃/(6~12) h时效处理后合金中析出了G.P区和峰时效强化相 β'' ,其维氏硬度提高约8%。在抗腐蚀性性能方面,研究发现300℃退火有助于提升合金抵抗点蚀^[19]和应力腐蚀^[20]的能力,并可有效防止合金在腐蚀过程中出现微裂纹^[21];然而,也有报道显示,300℃退火反而导致合金的抗腐蚀性性能出现异常^[22]。总体来看,上述关于热处理对组织影响的研究报道大多关注共晶硅形貌的演变,对热处理后组织中组成相、晶粒形貌、残余应力等的研究尚不深入。因此,研究不同退火温度下选区激光熔化成形AlSi10Mg合金组成相、显微组织、维氏硬度及残余应力的演变规律,以期获得综合性能良好的组织性能和残余应力提供依据。

1 材料与方法

1.1 原材料

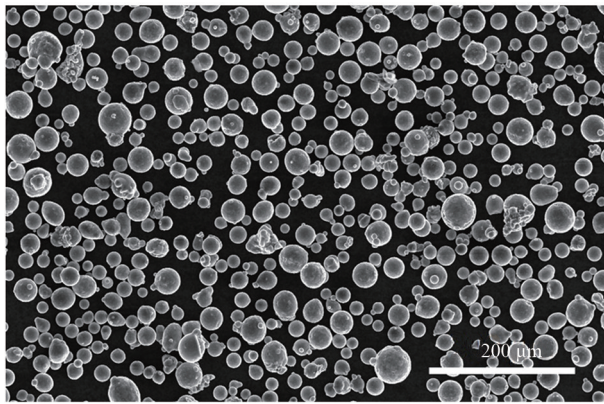
试验所用AlSi10Mg合金粉末的名义成分为Al-10Si-0.35Mg,采用气雾化工艺制备而成。粉末表面相对光滑,大多呈球形或类球形,如图1(a)所示;粉末的激光粒度典型值 d_{10} 、 d_{50} 、 d_{90} 分别为18.181、29.815、48.055 μm ,分布如图1(b)所示。

1.2 增材制造及热处理

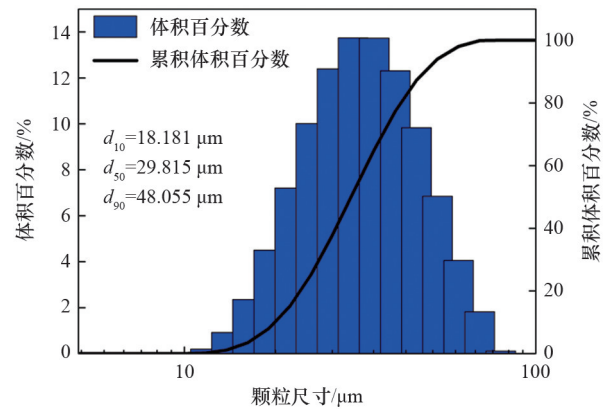
在XLine 1000R型Concept Laser成形设备上采用棋盘扫描策略进行试块成形(图2)。工艺参数范围为:层厚40 μm ,激光功率350~500 W,扫描速率1500~1800 mm/s,扫描间距0.13~0.18 mm。成形后利用线切割将试块从基板上取下,并将部分成形态试块分别于250、275、300℃进行2 h退火处理。

1.3 组织性能及残余应力分析

从成形态和退火态试块中切取尺寸约为7 mm×7 mm×5 mm的试块,依次采用120#、240#、400#、800#、1200#、2000#金刚石砂纸进行研磨;再利用GB/T 3246.1—2012标准中规定的高氯酸乙醇溶液(1+



(a) SEM形貌



(b) 激光粒度分布

图1 增材制造用 AISi10Mg 粉末形貌和激光粒度分布

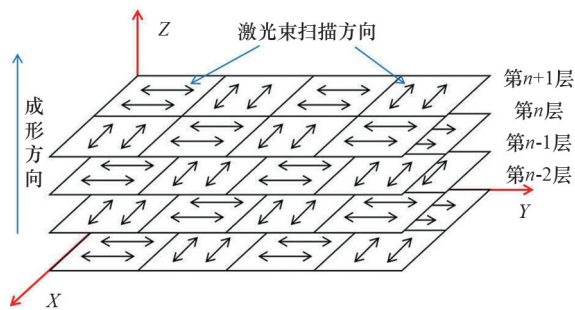


图2 增材制造扫描策略示意

9) 在 LectroPol-5 型电解抛光仪上进行电解抛光, 具体参数为: 起始电压 35 V, 电解时间 20 s。利用 D8 ADVANCE 型 X 射线衍射仪对成形态和退火态试块进行分析, 参数为: Cu-K α 衍射, $\lambda=0.154$ nm, 加速电压 40 kV, 2θ 范围 $10^\circ\sim 90^\circ$, 扫描速率 $4(^\circ)/\text{min}$; 采用 Jade 6.0 软件对 X 射线衍射 (XRD) 图谱进行物相分析和处理。利用 Leica DM4000 型光学显微镜和 FEI nano450 型场发射扫描电子显微镜观察成形态和退火态合金的显微组织。利用线切割切取成形态合金试片, 厚度约 0.5 mm; 依次采用 400 $\#$ 、800 $\#$ 、1200 $\#$ 、2000 $\#$ 金刚石砂纸研磨至厚度约 40 μm ; 冲取直径 3 mm 的试样在 Gatan Model 695 PIPS II 型离子减薄仪上利用氩离子进行减薄, 具体减薄参数为离子束能量 5 keV, 研磨角度 $\pm 8^\circ$, 直至形成初始孔洞; 然后调整离子束能量为 4 keV, 研磨角度 $\pm 6^\circ$, 继续减薄并扩大孔洞; 减薄过程用液氮冷却, 保持减薄温度为 -99°C 。利用 FEI Tecnai

G2 F20 型透射电子显微镜观察合金的组织形貌和选区电子衍射, 工作电压为 200 kV。利用 Hikari XP 型背散射电子衍射仪在 JEOL-7900 型场发射扫描电子显微镜上观察不同状态合金中晶粒形貌并统计晶粒尺寸分布。采用 FM-700 型显微硬度计, 结合 FM-ARS9000 型显微硬度测量系统, 按照 GB/T 4340.1—2009 对成形态和退火态合金的维氏硬度进行测试。利用 Jobin Yvon HR800 型拉曼光谱仪测试成形态和退火态合金中 Si 相的拉曼光谱, 激光波长 532 nm; 并参照文献[23]所述方法采用 Origin 9.0 软件对原始拉曼光谱曲线进行拟合和波数分析, 拟合曲线类型为 PsdVoigt1; 通过对拟合后成形态和退火态 Si 相拉曼光谱曲线进行峰位波数统计, 对比成形态和退火态合金的残余应力。

2 结果与分析

2.1 组成相分析

图3为成形态和退火态合金的 XRD 图谱及组成相分析结果。观察发现, 成形态合金的 XRD 图谱中主要存在 Al 和 Si 相的衍射峰, 且 Si 相的衍射峰强度明显低于 Al, 表明在成形态合金中 Si 相的含量很低。经退火处理后, 合金中依然存在 Al 和 Si 相的衍射峰; 但随着退火温度的升高, Si 相的衍射峰强度逐渐增强。同时, 退火态合金还观察到了微弱的 Mg_2Si 相的衍射峰, 如图 3(a) 所示; 当退火

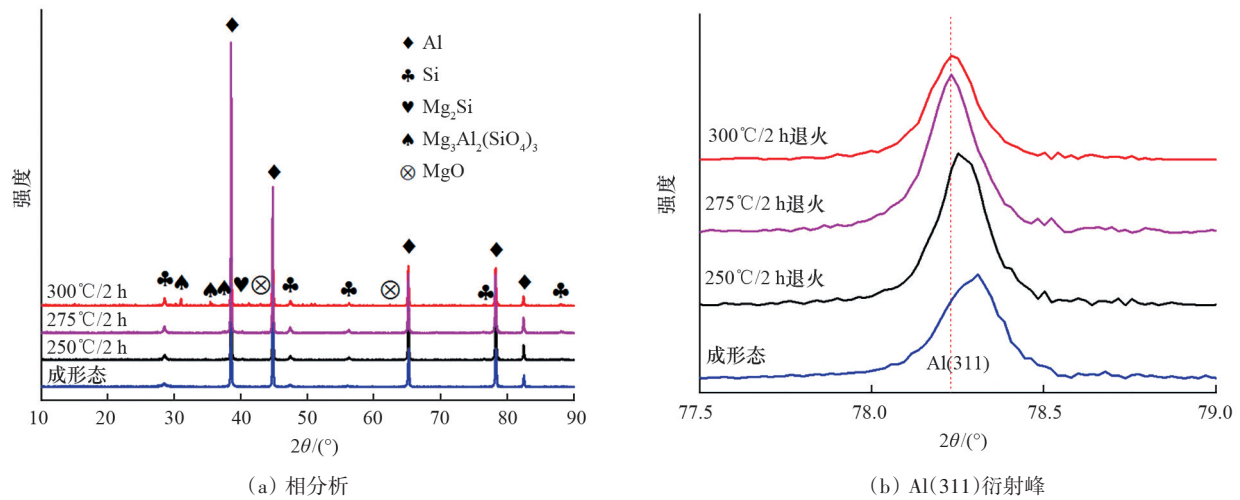


图3 成形态和退火态合金的XRD曲线及相分析

温度达 300℃ 时, 出现明显的氧化物 $Mg_3Al_2(SiO_4)_3$ 和 MgO 的衍射峰。对比成形态和退火态合金 Al(311) 衍射峰发现, 成形态合金该衍射峰位比标准峰位向 2θ 增大的方向偏移, 退火处理后衍射峰则逐渐靠近标准衍射峰, 如图 3(b) 所示; 当退火温度达到 275℃ 时, 该衍射峰已基本处于标准衍射峰峰位。根据 Bragg 方程 $2d\sin\theta=n\lambda$ 可知, 当衍射峰对应的 2θ 增大时, 晶面间距 d 减小。分析认为, 导致晶面间距减小的原因是由于 Si 原子半径比 Al 小, 大量 Si 原子固溶时引起的 Al 晶格收缩畸变抵消了少量 Mg 原子固溶时引发的膨胀效果^[24-25]。由此说明, 在增材制造 AlSi10Mg 合金的成形过程中, Si、Mg 合金元素在高冷却速率的作用下固溶于 Al 基体中形成了过饱和固溶体, 使得成形态合金仅存在 Al、Si 2 种主要物相; 退火处理则为合金元素从过饱和固溶体中析出提供了条件。

研究表明, 增材制造 AlSi10Mg 合金在 250℃ 左右开始发生析出 Mg_2Si 相的行为^[26]。一方面, 合金元素 Mg 和 Si 逐渐析出形成 Mg_2Si 相。但由于合金中 Mg 含量仅为 0.35%, 故析出的 Mg_2Si 相数量少, 对应的衍射峰强度仍很低。另一方面, 剩余的 Si 原子继续析出形成 Si 相。因此, 与成形态合金相比, 退火态合金的 XRD 图谱中出现 Mg_2Si 相的衍射峰, Si 相衍射峰强度随退火温度的升高而逐渐增强, 且 Al(311) 衍射峰与标准衍射峰峰位更接近。

2.2 显微组织观察

图 4 为成形态和退火态合金的金相显微组织。结果显示, 成形态和退火态合金的金相组织形貌无显著差异。其中, $\perp Z$ 面呈现出熔池相互垂直交织的形貌, $//Z$ 面则为“鱼鳞状”熔池逐层堆叠的形貌。分析认为, 熔池相互垂直交织的形貌特征由成形过程中激光束扫描路径逐层呈 90° 交叉所致; 而“鱼鳞状”熔池的产生与激光束能量呈高斯分布相关。由于激光束中心部位能量密度高、边缘能量密度低, 激光束中心部位的重熔深度大于激光束边缘扫描区域, 故导致“鱼鳞状”熔池的形成。此外, 成形态合金组织中还可观察到尺寸约 10~50 μm 的圆形孔洞分布于熔池内部或熔池边界附近(如图 4 中白色箭头所示), 其产生原因与未熔粉末颗粒或熔池中残留的气体有关^[24]。

图 5 为成形态和退火态合金的扫描电镜照片。观察发现, 成形态合金中存在明显的网状共晶硅组织。这种网状共晶硅组织的形成原因与 Al-Si 共晶的凝固过程为合作生长模式有关。在该模式下, Si 晶体凝固时不断进行分枝并改变生长方向, 从而在空间上形成相互连接的网状结构^[27]。根据共晶硅的形态和尺寸不同, 成形态合金的显微组织可大致分为 3 种: 熔池内部、熔池边界及熔池内部-熔池边界的过渡层, 如图 5(a) 所示。其中, 熔池边界为较为粗大的网状共晶硅, 宽度约 0.1~0.7 μm ; 熔池内

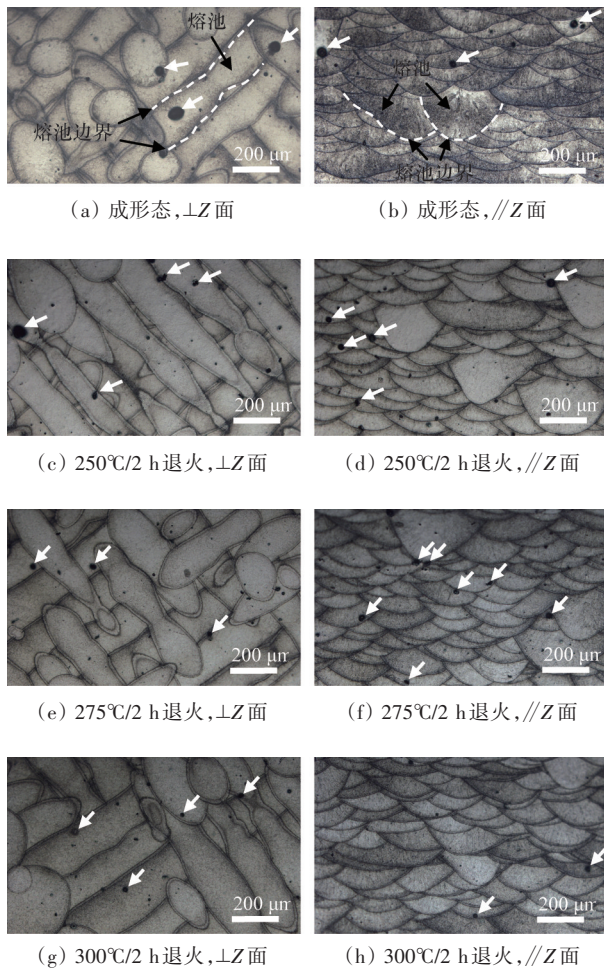


图4 成形态和退火态合金的金相组织形貌

部为相对细小的网状共晶硅,宽度约 $0.1\ \mu\text{m}$;两者的过渡层则为断续的、分布相对独立的共晶硅颗粒,未见明显的网状形貌特征,其颗粒尺寸与熔池内部的相当。由于成形过程中的冷却速率高,整个熔池的组织十分细小,形成的共晶硅尺寸达到亚微米级别。分析认为,成形态合金中共晶硅出现上述3种形貌的原因与成形过程的热传导有关。成形时,第 $n+1$ 层粉末铺于已凝固的第 n 层熔池表面,在激光束的作用下重熔并产生新的熔池边界。由于熔池边界附近组织的冷却速率较低,导致形成的网状共晶硅组织较为粗大,且出现二次枝晶形貌(图5(b)),故称为粗枝晶区(coarse cellular dendrite, CCD)^[15]。随着凝固过程的进行,固-液表面持续向熔池中心推移,在高冷却速率的作用下形成了细小的网状共晶硅形貌。同时,熔池内熔融合金

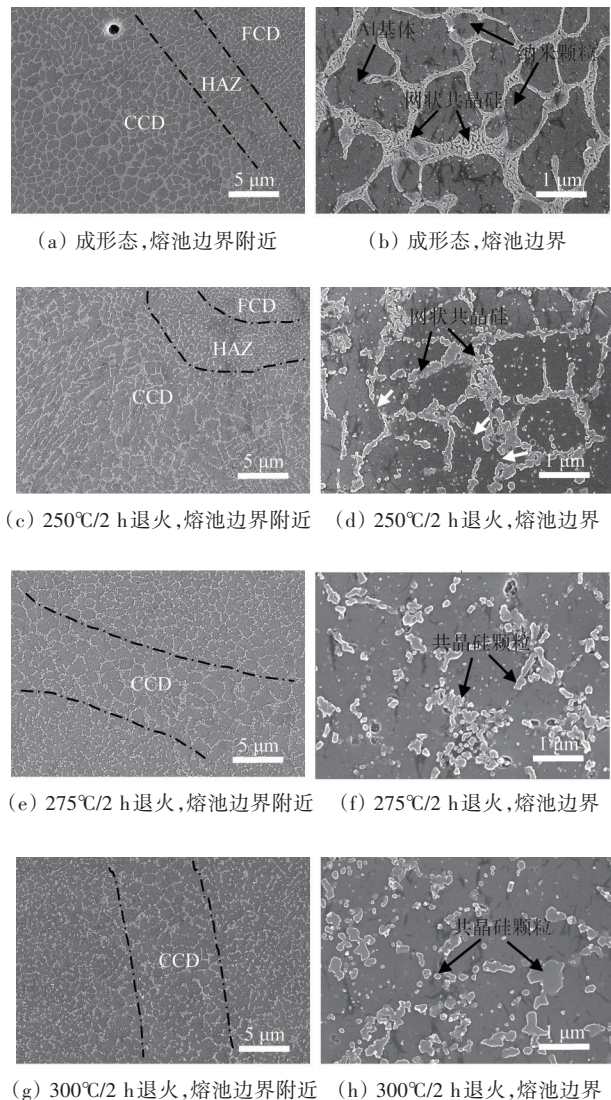


图5 成形态和退火态合金的SEM形貌

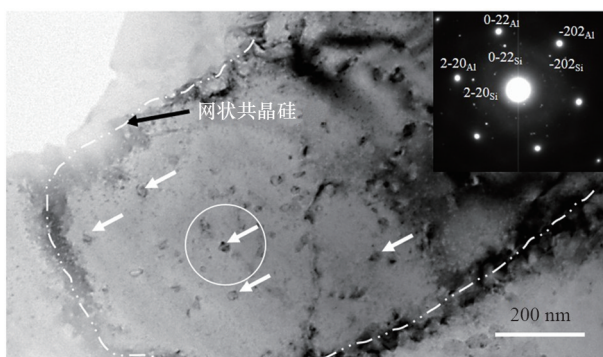
液中的热量继续向凝固组织中传递,使得已凝固的细小网状共晶硅在持续热量的作用下,出现钝化、断点和球化,从而形成过渡层,故称为热影响区(heat affected zone, HAZ)^[15]。熔池内部由于未受到明显的热传导影响,保持了快速凝固形成的细小网状共晶硅组织,故称为细枝晶区(fine cellular dendrite, FCD)^[15]。此外,组织中除了Al基体和网状共晶硅外,还存在数量较多的、弥散分布的纳米颗粒(图5(b))。该颗粒尺寸极其细小,难以通过扫描电镜及能谱分析手段进行成分分析和物相识别。

退火处理后,共晶硅的形貌发生了变化。当退火温度为 250°C 时,合金组织仍由网状共晶硅组成,

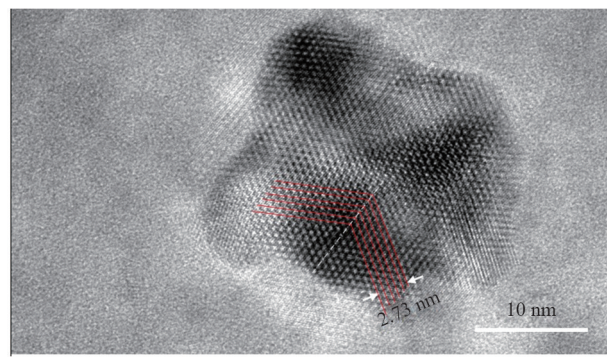
其粗枝晶区、热影响区和细枝晶区的特征仍与成形态相似,如图5(c)所示;但局部网状共晶硅已经出现断点,如图5(d)中白色箭头所示。退火温度升至275℃后,组织中仍可较为清楚地识别出粗枝晶区,但热影响区和细枝晶区则难以区分,如图5(e)所示。该状态下网状共晶硅断点持续增多,不连续性更加明显,表现为断续的、呈链状分布的共晶硅颗粒,如图5(f)所示。退火温度提高至300℃后,组织中只能大致识别粗枝晶区,如图5(g)所示。进一步观察只发现相对独立的共晶硅颗粒分布于Al基体中,如图5(h)所示。发生这种组织变化的原因在于退火过程中网状共晶硅组织发生了Ostwald熟化,即在宽度较小的部位出现收缩,形成断点,并以宽度较大的共晶硅颗粒为中心进行球化和粗化。由于Si颗粒的粗化速率随温度升高而增大^[28],故退

火温度越高,共晶硅颗粒的球化和粗化越明显。此外,退火过程还导致成形态合金中弥散分布的纳米颗粒相也发生了一定程度的粗化,且退火温度越高,粗化程度越大,纳米颗粒数量越少。

为辨别成形态合金中的纳米颗粒相,对成形态合金组织进行TEM观察,结果如图6所示。可以看出,在网状共晶硅包围的Al基体中弥散分布着尺寸约30 nm的颗粒相(图6(a)中白色箭头)。对包含纳米颗粒相的区域(图6(a)中白色圆圈区域)进行选区电子衍射,获得2套衍射斑点。经计算标定,较亮的为Al基体衍射斑,相对微弱的为Si相的衍射斑。进一步观察纳米颗粒的高分辨图(图6(b)),可以看出该纳米颗粒的原子层间距约为0.545 nm,与Si的晶格常数接近,进一步证实了该纳米颗粒为Si相。



(a) 明场像及SAED图



(b) 纳米颗粒相高分辨图

图6 成形态合金的TEM照片

图7为成形态和退火态合金的EBSD晶粒取向图。结果显示,成形态合金由等轴晶和柱状晶组成。其中,等轴晶尺寸较小,大多分布在熔池边界(图7中黑色虚线)附近,少量随机分布于熔池内部;柱状晶尺寸较大,主要存在于熔池内部,其晶粒生长方向垂直于熔池边界并指向熔池中心,如图7(a)、图7(b)所示。形成这种晶粒组织特征的原因主要是微小熔池在凝固过程中固-液界面最早出现于熔池边界附近,原始熔池边界的固相表面促进了熔融合金液的非自发形核,产生大量晶胚;同时,熔池内的熔融合金液也可能发生自发形核或依附氧化物质点发生非自发形核,产生部分晶胚;这些

晶胚同时长大形成等轴晶粒。随着等轴晶粒的形成,固相组织在不断热量传递下温度逐渐升高,固-液界面前沿液相组织中难以继续形成晶胚,使得晶粒可以持续沿温度梯度最大的方向(即垂直于熔池边界的方向)长大形成柱状晶。

退火处理后,合金组织主要由柱状晶组成,细小等轴晶几乎不复存在(图7(c)~图7(e))。统计//Z面的晶粒尺寸分布发现,成形态合金晶粒尺寸的 d_{50} 约为10.4 μm ,经250、275、300℃退火后晶粒尺寸 d_{50} 分别约12.6、13.2、13.4 μm (图7(f))。可见退火后晶粒长大了约20%~30%。由此说明,退火导致合金晶粒长大并诱发了再结晶。

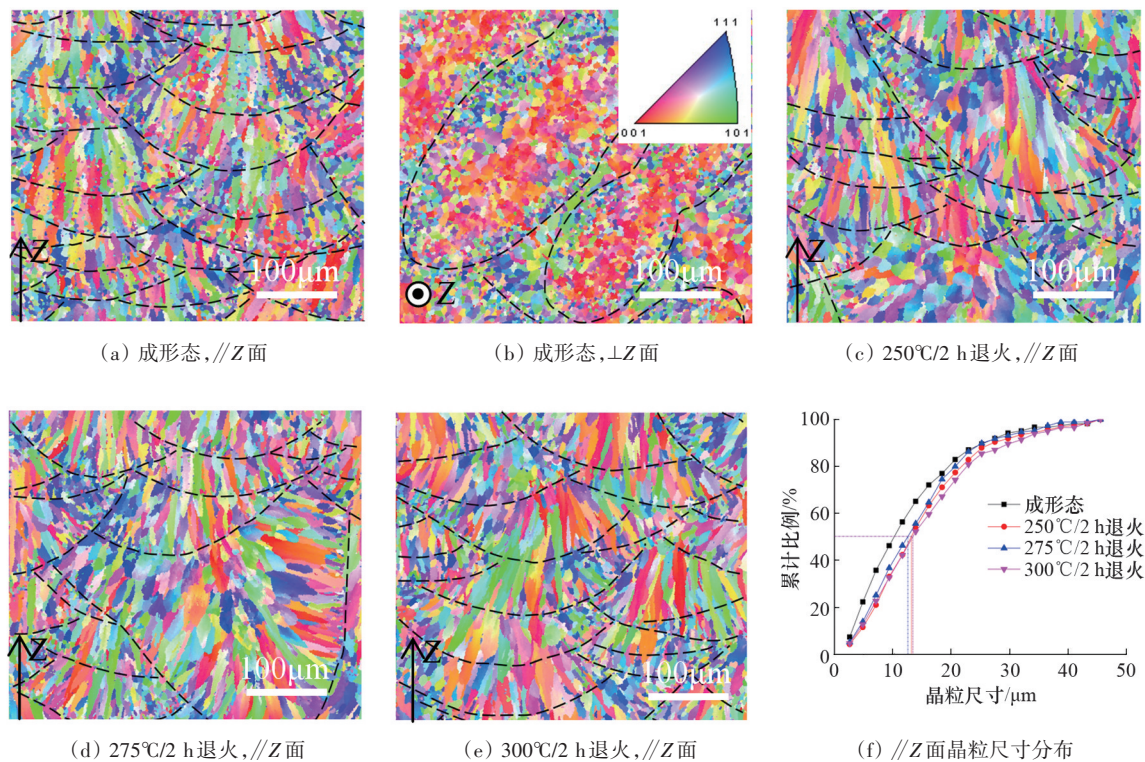


图7 成形态和退火态合金的EBSD形貌和晶粒尺寸分布

根据图7中反极图显示的晶粒取向可以看出,成形态合金//Z面的晶粒取向分布相对随机,未见明显的择优取向(图7(a))。但是,⊥Z面的晶粒取向则呈现出熔池内部的柱状晶大多沿001方向生长,而熔池边界附近的等轴晶倾向于沿101和111方向生长(图7(b))。由于沿001方向生长的柱状晶占比较高,故⊥Z面组织表现出明显的001方向织构。分析认为,导致这种晶体学织构产生的原因与凝固过程中固-液界面前沿熔融合金的晶体生长方式有关。研究表明,以柱状晶生长时,立方晶体材料易沿001晶向生长^[29]。

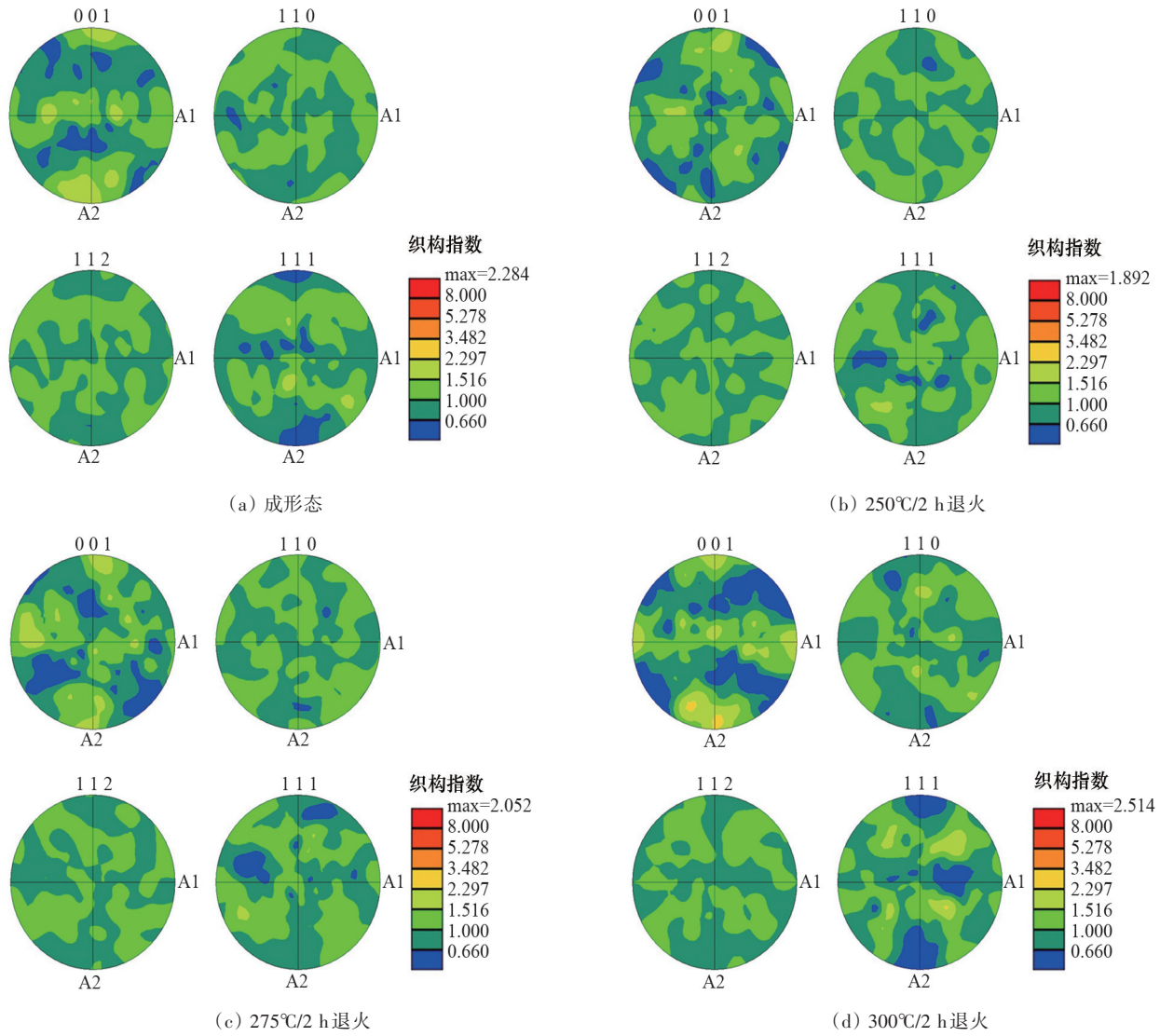
退火处理后,合金//Z面的晶粒取向与成形态的相似,难以直观地判别组织的择优取向变化情况,利用织构指数可以对成形态和退火态合金组织的织构差异进行定量计算。结果显示,成形态合金的织构指数为2.284,250、275、300°C退火后的织构指数分别为1.892、2.052、2.514,如图8所示。可以看出,在较低温度下(250、275°C)进行退火可以降低织构指数,当退火温度达到300°C时,织构指数反而升高。分析认为,增材制造AlSi10Mg合金的择

优取向主要来自于形态学织构和晶体学织构。其中,形态学织构受成形扫描策略的影响^[29],250~300°C的退火处理难以对原始组织中形态学织构产生显著影响;晶体学织构则与晶粒形态和取向有关,尽管退火处理会引起晶粒长大和诱发再结晶,但从图8的结果可以看出,退火对晶粒形态和取向的影响程度并不显著,故对晶体学织构的影响程度也十分有限。

2.3 维氏硬度分析

图9为成形态和退火态合金的维氏硬度测试结果。结果显示,成形态合金的维氏硬度最高,达到125 HV_{0.05}左右;而250、275、300°C退火后的维氏硬度分别为94.7、90.6、73.4 HV_{0.05}。可以看出,退火温度较低(250、275°C)时,合金的维氏硬度比成形态下降约24.8%~28.0%,且在该温度范围内维氏硬度的下降幅度较小;当退火温度达到300°C时,合金的维氏硬度快速下降,与成形态相比降低了41.6%。

表1汇总了不同热处理状态下增材制造Al-Si10Mg合金的维氏硬度。结果显示,经退火或固溶



A1、A2 分别代表选区激光熔化的水平方向和成形方向

图8 成形态和退火态合金的极图

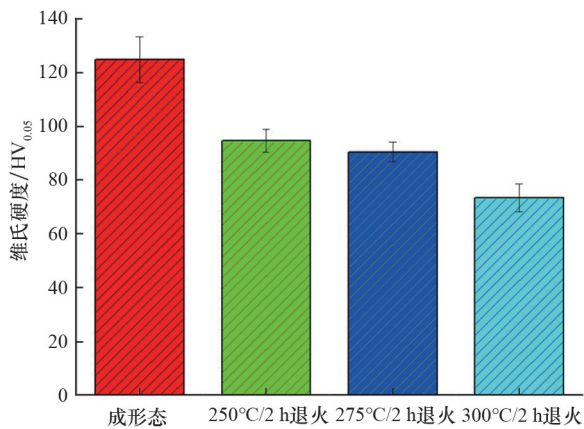


图9 成形态和退火态合金的维氏硬度

处理后合金的维氏硬度均呈现明显的下降趋势,下降幅度与采取的热处理温度或时间有关。可以看出,采用适当的固溶温度和固溶时间有助于减小性能的衰减程度;而固溶温度较高、固溶时间较长,性能的下跌幅度越大。例如,采用类似传统 Al-Si-Mg 系铝合金的固溶处理制度(530℃固溶处理 6 h)时,合金维氏硬度由成形态的 132 HV_{0.05} 下降至 60 HV_{0.05}^[30]。再进行长时间的自然时效,维氏硬度略有提高,但效果甚微。而采用适当的人工时效,促使组织中析出峰时效强化相 β",有助于维氏硬度的提升^[18]。由此可见,增材制造 AlSi10Mg 合金的

表1 增材制造 AlSi10Mg 合金不同热处理后的维氏硬度

合金状态	维氏硬度/HV	来源
成形态	125	本文
250℃/2 h 退火	94.7	本文
275℃/2 h 退火	90.6	本文
300℃/2 h 退火	73.4	本文
成形态	94.4	文献[18]
520℃/1 h 固溶	70.4	文献[18]
520℃/2 h 固溶	80.5	文献[18]
520℃/2 h 固溶+160℃/6 h 时效	101.9	文献[18]
成形态	132	文献[30]
530℃/6 h 固溶	60	文献[30]
530℃/6 h 固溶+自然时效	75	文献[30]

热处理参数以及热处理后性能的变化规律均与传统 Al-Si-Mg 系铝合金存在差异。

2.4 残余应力分析

图 10 为成形态和退火态合金 Si 相的拉曼光谱曲线。可以看出,所有状态下合金中 Si 相的拉曼峰位均相对标准峰位向左侧偏移,发生明显的蓝移现象,表明成形态和退火态合金中的 Si 相均承受残余拉应力。由于退火态合金中 Si 相拉曼峰蓝移程度均小于成形态,说明退火过程降低了合金的残余拉应力。

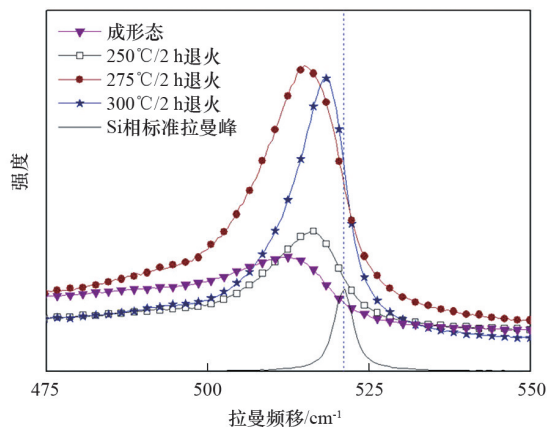


图 10 成形态和退火态合金 Si 相拉曼频移

采用 PsdVoigt1 函数拟合对上述拉曼光谱曲线进行处理,完成峰位波数统计,并计算各状态 Si 相的相对拉曼频移,结果如表 2。其中,成形态合金中 Si 相的相对拉曼频移为 -15.5 cm^{-1} ,退火处理后

表2 成形态和退火态合金的 Si 相拉曼峰位波数及 Si 相拉曼峰位

合金状态	Si 相拉曼峰位 / cm^{-1}	相对拉曼频移 / cm^{-1}
成形态	504.5	-15.5
250℃/2 h 退火	514.5	-5.5
275℃/2 h 退火	513.9	-6.1
300℃/2 h 退火	517.0	-3.0

合金中 Si 相的相对拉曼频移为 $-6.1 \sim -3.0 \text{ cm}^{-1}$ 。由于相对拉曼频移 (Δw) 与残余应力 (σ) 之间存在如下关系: $\sigma = -425\Delta w$ ^[24], 因此,与成形态合金中的残余应力相比,退火后合金的残余应力下降 60%~80%。

3 讨论

通过对成形态合金的组成相分析发现,该状态下合金由 Al 和 Si 相组成,大部分 Si、Mg 合金元素固溶于 Al 基体中形成过饱和固溶体。因此,成形态合金的组成相状态与传统铝合金固溶处理后类似。根据 Al-Si-Mg 三元铝合金的固态相变规律,热处理过程通常发生如下相变^[31]: 过饱和固溶体 \rightarrow 原子团簇 \rightarrow G.P 区 $\rightarrow \beta'' \rightarrow \beta', U1, U2, B' \rightarrow \text{Mg}_2\text{Si}, \text{Si}$ 。其中, β'' 相的强化效果最佳,为峰时效强化相。对于铸造 Al-Si-Mg 合金, β'' 相的析出温度为 $160 \sim 175^\circ\text{C}$; 而增材制造 Al-Si-Mg 合金的 DSC 分析结果显示, β'' 相的析出温度约为 250°C ^[26,32]。因此, 250°C 退火处理 2 h 后, AlSi10Mg 合金的 XRD 图谱中出现了 Mg_2Si 的衍射峰。但是,由于增材制造时的冷却速率远高于传统铝合金固溶处理时的冷却速率,故前者的过饱和程度更大、晶格畸变能更高,空位浓度更高、位错密度更大,致使合金元素析出的驱动力更大,原子扩散更快,从而导致增材制造 Al-Si-Mg 合金析出 β'' 相的温度低于 250°C 。结果显示,将增材制造 AlSi10Mg 合金于 175°C 时效处理 6 h 可提高维氏硬度 11.8%^[16], 这可能得益于组织中析出了 β'' 相。故当退火温度达到 250°C 时,促使平衡相 Mg_2Si 和 Si 相的析出。同时,网状共晶硅开始出现断点,发生球化和粗化; 纳米颗粒相逐渐长大,且数

量明显减少;组织发生再结晶和晶粒长大。这些组织变化使成形态合金中的细晶强化、固溶强化和弥散强化效果减弱,从而导致合金性能下降。

类似的,固溶处理过程中的温度更高,导致组织粗化程度更严重,成形态合金的细晶强化和弥散强化减弱程度更大。此外,由于淬火的冷却速率低于增材制造过程,致使固溶强化效果不及成形态合金。因此,固溶处理也会导致增材制造 AlSi10Mg 合金的性能下降。

然而,通过研究不同状态合金中 Si 相的相对拉曼频移发现,增材制造 AlSi10Mg 合金成形态存在较大的残余拉应力。由于残余拉应力会导致材料可承受的外加拉载荷降低、抗应力腐蚀性能下降。因此,除了确保增材制造 AlSi10Mg 合金的性能满足要求外,还需要结合材料的服役条件对残余应力予以控制甚至消除。研究结果显示,在 250~300℃退火处理 2 h,可以使成形态组织中的残余应力降低 60%~80%;而且随着退火温度升高,残余应力呈现降低的趋势。因此,采用更高温度进行热处理(如固溶处理),具有更大程度降低甚至消除成形态组织中残余应力的潜力。

4 结论

通过对比增材制造 AlSi10Mg 合金成形态和退火态的显微组织、维氏硬度及残余应力,分析了 250~300℃退火处理对合金组织性能及残余应力的影响规律。

1) 退火处理促使合金元素从过饱和 Al 固溶体中析出并形成 Mg_2Si 和 Si 相。退火温度越高,合金元素析出越彻底;退火温度达到 275℃时,合金元素基本全部析出。

2) 退火处理导致组织粗化,主要表现为共晶硅 Ostwald 熟化和纳米硅颗粒长大;同时还引起再结晶和晶粒长大,但对晶粒取向影响不显著。

3) 退火处理导致合金维氏硬度下降。退火温度越高,下降程度越大。主要由于成形态合金所具有的细晶强化、固溶强化和弥散强化效果减弱所致。

4) 退火处理有效降低了成形态合金中的残余

应力,下降幅度达到 60%~80%。

综上所述,增材制造 AlSi10Mg 合金的性能与残余应力之间呈现出相互对立的关系。通常情况下,成形态合金的性能最高,但残余应力最大;热处理会导致性能衰减,却可有效降低残余应力。增材制造 AlSi10Mg 合金热处理的出发点更倾向于消除残余应力,同时兼顾性能;而传统 Al-Si-Mg 系铝合金的热处理则着重于改善性能。因此,应针对增材制造 AlSi10Mg 合金的组织性能特点及材料服役要求,结合热处理对增材制造 AlSi10Mg 合金组织性能和残余应力的影响规律,选择适当的热处理来实现性能与残余应力的调控和匹配。

参考文献 (References)

- [1] 张学军, 唐思熠, 肇恒跃, 等. 3D 打印技术研究现状和关键技术[J]. 材料工程, 2016, 44(2): 122-128.
- [2] Orme M E, Gschweilt M, Ferrari M, et al. A holistic process-flow from concept to validation for additive manufacturing of light-weight, optimized, metallic components suitable for space flight[C]//58th AIAA/ASCE/AHS/ASC Structures, Structural Dynamics, and Materials Conference. Texas, USA: AIAA SciTech Forum, 2017: 1540.
- [3] Orme M E, Gschweilt M, Ferrari M, et al. Designing for additive manufacturing: Lightweight through topology optimization enabled lunar spacecraft[J]. Journal of Mechanical Design, 2017, 139: 100905-1-100905-6.
- [4] Gobetz Z. Utilization of additive manufacturing for aerospace heat exchangers[D]. Pennsylvania: Pennsylvania State University, 2016.
- [5] Maamoun A H, Elbestawi M, Dosbaeva G K, et al. Thermal post-processing of AlSi10Mg parts produced by selective laser melting using recycle powder[J]. Addictive Manufacturing, 2018, 21: 234-247.
- [6] 王华明. 高性能大型金属构件激光增材制造: 若干材料基础问题[J]. 航空学报, 2014, 35(10): 2690-2698.
- [7] Buchbinder D, Schleifenbaum H, Heidrich S, et al. High power selective laser melting (HP SLM) of aluminum parts[J]. Physics Procedia, 2011, 12: 271-278.
- [8] Wei P, Wei Z Y, Chen Z, et al. The AlSi10Mg samples produced by selective laser melting: single track, densification, microstructure and mechanical behavior[J]. Applied Surface Science, 2017, 408: 38-50.

- [9] Delroisse P, Jacques P J, Maire E, et al. Effect of strut orientation on the microstructure heterogeneities in Al-Si10Mg lattices processed by selective laser melting[J]. *Scripta Materialia*, 2017, 141: 32–35.
- [10] 余开斌, 刘允中, 杨长毅. 热处理对选区激光熔化成形 AlSi10Mg 合金显微组织及力学性能的影响[J]. *粉末冶金材料科学与工程*, 2018, 23(3): 298–305.
- [11] Li W, Li S, Liu J, et al. Effect of heat treatment on Al-Si10Mg alloy fabricated by selective laser melting: Microstructure evolution, mechanical properties and fracture mechanism[J]. *Materials Science & Engineering A*, 2016, 663: 116–125.
- [12] Aboulkhair N T, Maskery I, Tuck C, et al. The microstructure and mechanical properties of selectively laser melted AlSi10Mg: The effect of a conventional T6-like heat treatment[J]. *Materials Science & Engineering A*, 2016, 667: 139–146.
- [13] Girelli L, Tocci M, Gelfi M, et al. Study of heat treatment parameters for additively manufactured AlSi10Mg in comparison with corresponding cast alloy[J]. *Materials Science & Engineering A*, 2019, 739: 317–328.
- [14] Uzan N E, Shneck R, Yeheskel O, et al. Fatigue of Al-Si10Mg specimens fabricated by additive manufacturing selective laser melting (AM-SLM)[J]. *Materials Science & Engineering A*, 2017, 704: 229–237.
- [15] Zhang C, Zhu H, Liao H, et al. Effect of heat treatments on fatigue property of selective laser melting AlSi10Mg [J]. *International Journal of Fatigue*, 2018, 116: 513–522.
- [16] Kempen K, Thijs L, Humbeeck J V, et al. Processing Al-Si10Mg by selective laser melting: Parameter optimisation and material characterisation[J]. *Materials Science & Technology*, 2015, 31(8): 917–923.
- [17] Rosenthal I, Shneck R, Stern A. Heat treatment effect on the mechanical properties and fracture mechanism in AlSi10Mg fabricated by additive manufacturing selective laser melting process[J]. *Materials Science & Engineering A*, 2018, 729: 310–322.
- [18] Zhou L, Mehta A, Schulz E, et al. Microstructure, precipitates and hardness of selectively laser melted AlSi10Mg alloy before and after heat treatment[J]. *Materials Characterization*, 2018, 143: 5–17.
- [19] Rafieazad M, Mohammadi M, Nasiri A M. On microstructure and early stage corrosion performance of heat treated direct metal laser sintered AlSi10Mg[J]. *Additive Manufacturing*, 2019, 28: 107–119.
- [20] Zakay A, Aghion E. Effect of post-heat treatment on the corrosion behavior of AlSi10Mg alloy produced by additive manufacturing[J]. *The Journal of the Minerals, Metals & Materials Society*, 2019, 71: 1150–1157.
- [21] Rubben T, Revilla R I, De Graeve I. Influence of heat treatments on the corrosion mechanism of additive manufactured AlSi10Mg[J]. *Corrosion Science*, 2019, 147: 406–415.
- [22] Gu X, Zhang J, Fan X, et al. Abnormal corrosion behavior of selective laser melted AlSi10Mg alloy induced by heat treatment at 300 °C[J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2019, 803: 314–324.
- [23] 雷振坤, 仇巍, 亢一澜. 微尺度拉曼光谱实验力学[M]. 北京: 科学出版社, 2015: 217–222.
- [24] Wang M, Song B, Wei Q, et al. Effects of annealing on the microstructure and mechanical properties of selective laser melted AlSi7Mg alloy[J]. *Materials Science & Engineering A*, 2019, 739: 463–472.
- [25] 唐鹏钧, 何晓磊, 杨斌, 等. 激光选区熔化用 AlSi10Mg 粉末显微组织与性能[J]. *航空材料学报*, 2018, 38(1): 47–53.
- [26] Fiocchi J, Tuissi A, Bassani P, et al. Low temperature annealing dedicated to AlSi10Mg selective laser melting products[J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2017, 695: 3402–3409.
- [27] 胡汉起. 金属凝固原理[M]. 2版. 北京: 机械工业出版社, 2000: 190–193.
- [28] Gomes R M, Sato T, Kamio A. Microstructures and coarsening behavior of silicon particles in P/M Al-Si-Cu-Mg alloys containing Fe and Ni[J]. *Journal of Japan Institute of Light Metals*, 1997, 47(2): 90–97.
- [29] Thijs L, Kempen K, Kruth J P, et al. Fine-structured aluminium products with controllable texture by selective laser melting of pre-alloyed AlSi10Mg powder[J]. *Acta Materialia*, 2013, 61(5): 1809–1819.
- [30] Takata N, Kodaira H, Sekizawa K, et al. Change in microstructure of selectively laser melted AlSi10Mg alloy with heat treatments[J]. *Materials Science & Engineering A*, 2017, 704: 218–228.
- [31] Kolobnev N I, Ber L B, Khokhlatova L B, et al. Structure, properties and application of alloys of the Al-Mg-Si-(Cu) system[J]. *Metal Science and Heat Treatment*, 2012, 53(9–10): 440–444.
- [32] Riccardo C, Maurizio V. Aging response of an A357 Al alloy processed by selective laser melting[J]. *Advanced Engineering Materials*, 2018, 21(4): 1800406.

Effects of heat treatment on microstructure, properties, and residual stress of additive manufactured AlSi10Mg alloy

TANG Pengjun^{1,2,3}, CHEN Bingqing^{2*}, YAN Taiqi², CHU Ruikun⁴, GUO Shaoqing², LI Peiyong^{1,2,3}

1. Institute of Aluminum Alloys, AECC Beijing Institute of Aeronautical Materials, Beijing 100095, China
2. 3D Printing Research and Engineering Technology Center, AECC Beijing Institute of Aeronautical Materials, Beijing 100095, China
3. Beijing Engineering Research Center of Advanced Aluminum Alloys and Applications, Beijing 100095, China
4. Falcon Fast Manufacturing Technology Co., Ltd., Wuxi 214145, China

Abstract Residual stress, always existing in additive manufactured AlSi10Mg alloy, has negative effects on its application. Therefore, it is needed to be controlled or even eliminated by heat treatment. The microstructure, properties and residual stress of as built and annealed alloys are investigated using X ray diffraction, optical microscope, field emission scanning electron microscope, transmission electron microscope, electron backscattered diffraction, microhardness and Raman spectrum tests. The results show that as built alloy consists of supersaturated Al solid solution and Si phase. Additionally, the Si phase exists in the forms of cellular eutectic silicon and dispersed silicon nanoparticles. Meanwhile, the grain size of as built alloy is relatively fine, and the d_{50} value of grain size distribution is about 10.4 μm . Annealing treatments lead to the depositions of alloying elements from supersaturated Al solid solution, and formations of equilibrium phase Mg_2Si and Si phase as the annealing temperature ranging from 250°C to 300°C. With the increase of annealing temperature, the alloying elements precipitate out more thoroughly. Furthermore, the coarsening of cellular eutectic silicon and silicon nanoparticles, grain growth and recrystallization also occur owing to annealing treatment. Because of the decline of fine grain strengthening, solid solution strengthening and dispersion strengthening after annealing treatment, the microhardness decreases. The residual stress, however, can be significantly reduced by annealing process with a reduction of 60%~80%. Consequently, it is necessary to develop new heat treatment system according to the characteristic of additive manufactured aluminum alloy, in order to regulate and control the microstructure and properties.

Keywords additive manufacturing; AlSi10Mg alloy; heat treatment; microstructure; residual stress ●



(责任编辑 王丽娜)