

# Effetto combinato di una deformazione plastica severa e dispersoidi di Zr e Sc+Zr sul processo di affinamento microstrutturale di una lega Al-Mg-Si

M. Cabibbo, E. Evangelista

*Il presente lavoro illustra gli studi microstrutturali effettuati mediante microscopia elettronica in trasmissione su due leghe Al-Mg-Si-Zr, con e senza aggiunta di 0.117Sc (%in peso). Le due leghe sono state sottoposte a severa deformazione plastica mediante equal-channel angular pressing usando la route Bc e fino ad una deformazione pari a ~12. In particolare, lo studio microstrutturale è stato focalizzato sul ruolo dei dispersoidi  $Al_3(Sc_{1-x}Zr_x)$ , nel caso della lega Al-Mg-Si-Zr-Sc, e di quelli  $Al_3Zr$ , nel caso della lega Al-Mg-Si-Zr. Il confronto con i processi di deformazione plastica nella lega base Al-Mg-Si, e soggetta allo stesso tipo di processo, mostra una generazione di bordi ad alto angolo maggiore nel caso di presenza di dispersoidi, mentre la formazione dei sottograni ne è influenzata in modo minore.*

*Nello specifico, tale effetto è più accentuato in presenza dei dispersoidi complessi  $Al_3(Sc_{1-x}Zr_x)$ . La disorientazione media dei bordi ad alto angolo aumenta più velocemente in presenza di  $Al_3(Sc_{1-x}Zr_x)$ , raggiungendo un plateau dopo 8 passate. La disorientazione dei bordi a basso angolo aumenta progressivamente fino ad un valore medio di ~8° e ~5° rispettivamente per la lega Al-Mg-Si-Zr-Sc e la Al-Mg-Si-Zr. Inoltre, è stato possibile determinare l'effetto dei due tipi di dispersoidi nel processo di taglio dei precipitati  $Mg_2Si$  e di riduzione in volume dei Si, già documentato in un lavoro precedente.*

**Parole chiave:** alluminio e leghe, affinazione, caratterizzazione materiali, microscopia elettronica, prove meccaniche

## INTRODUZIONE

L'interesse industriale per le leghe leggere a grano fine ed ultrafine è andato sempre più crescendo, negli ultimi trent'anni. Una riduzione consistente nelle dimensioni medie del grano è in grado di incrementare sostanzialmente la resistenza e tenacità delle leghe leggere a temperatura ambiente. Inoltre, se la dimensione del grano si mantiene bassa successivamente ad esposizione ad alte temperature, il materiale ha buone potenzialità di formabilità profonda e comportamento superplastico. Tuttavia, ad oggi, è piuttosto difficile processare materiali massivi per renderli a grano ultrafine (ovvero al disotto del micron), in quanto i comuni processi termo-meccanici si spingono a dimensioni medie che al più raggiungono valori di ~15–20  $\mu m$  [1-4]. Uno dei metodi di punta è sicuramente l'uso di deformazioni plastiche severe quali torsione ad alta pressione (HPT), co-laminazione, estrusione alternata, e l'equal-channel angular pressing. [1,5-7]. Quest'ultimo è stato introdotto per la prima volta da Segal [8] e prevede il passaggio ripetuto del materiale su uno stampo al cui interno sono presenti due canali di pari sezione che si incontrano a formare un angolo di curvatura che può variare da stampo a stampo. In letteratura sono stati testati vari tipi di stampi con diversi raggi di curvatura tra i due canali ai quali, si è visto, corrispondono livelli di deformazione per passata che variano da 0.55 a 1.08 di deformazione vera, da angoli di qualche grado al valore massimo di 90° [5-12]. Inoltre, sono state studiate diverse leghe leggere, ed in particolare leghe di alluminio, per le quali si sono raggiunti valori delle dimensioni medie dei grani al disotto del

micron dopo 8-12 passate, a seconda dello stampo utilizzato [7-12]. La particolarità di maggior pregio di tale tecnica consiste nel mantenere la sezione del materiale invariata, durante i ripetuti passaggi attraverso i due canali dello stampo. La deformazione plastica indotta sul materiale è di puro taglio [8] e la possibilità di ruotare, ad ogni passaggio, il campione, rende i livelli di deformazione imposti più o meno omogenei [7-14].

Recentemente, sono stati sperimentati con successo due importanti applicazioni di carattere industriale. Il primo consiste nell'utilizzo di uno stampo ECAP in cascata, alla fine delle gabbie di laminazione e si è visto che in tal modo si possono produrre laminati a grano ultrafine. Un'altra applicazione innovativa consiste nella realizzazione di un processo che prevede l'utilizzo di uno stampo ECAP rotativo in grado di deformare il pezzo fino ad una deformazione pari a 4 senza dover estrarre mai il materiale dallo stampo [9-14].

L'interesse industriale per l'ECAP è affiancato da studi dettagliati sui fenomeni microstrutturali indotti dalla severa deformazione plastica indotta sul materiale. In particolare, l'attenzione di gran parte degli esperti nel campo, è stata rivolta ai fenomeni di generazione ed evoluzione dei bordi ad alto angolo (essenzialmente bordi di grano) e a basso angolo (celle all'interno dei grani). A prescindere dalla particolare route scelta per deformare il materiale, la generazione dei bordi e la loro successiva evoluzione con l'aumentare della deformazione è governata dal principio di minima energia di configurazione per le dislocazioni, secondo i meccanismi microstrutturali descritti diffusamente, nell'arco della sua attività scientifica, dalla D. Kuhlmann-Wilsdorff [18,19]. Le differenti configurazioni che possono assumere le dislocazioni, una volta introdotte, ed indotte a muoversi dalle successive deformazioni, assolvono la funzione di equilibrare la forza esterna che agisce sul materiale, ovvero la deformazione, generando uno stato di deformazione interno in grado di

M. Cabibbo, E. Evangelista

CNR (INFM) / Dipartimento di Meccanica, Università Politecnica delle Marche,  
Via Breccia Bianche, 60131- Ancona, Italy

controbilanciarla. Secondo il modello della D. Kuhlmann-Wilsdorff (LEDS: low-energy dislocation system) l'incremento della disorientazione dei bordi ad alto angolo con la deformazione, è uno dei meccanismi per i quali si minimizza l'energia associate ai bordi stessi. Inoltre, l'energia interna per unità di lunghezza delle dislocazioni che formano il bordo ad alto angolo può efficacemente essere minimizzata, all'aumentare della deformazione, aumentandone la disorientazione [19]. Parametri microstrutturali, quali densità delle dislocazioni e la spaziatura dei bordi (sia ad alto che basso angolo) sono generalmente presi in considerazione per descrivere i meccanismi di deformazione. Durante deformazione plastica severa (DPS), le dislocazioni tendono a formare una rete regolare di bordi (sia essi ad alto o basso angolo di disorientazione) all'interno dei grani originari. Questi bordi possono essere divisi in due categorie: una categoria di bordi ad alto angolo (BAA), generalmente chiamati *block-walls* (BWs), ed una categoria di bordi a basso angolo (BBA), denominati *cells* [20-28]. La morfologia delle due categorie di bordi appare simile per livelli di deformazione bassi, ma si differenzia per alte deformazioni [20,21,25,26].

Tra le leghe di alluminio per deformazione plastica, quelle della serie 6000 (Al-Mg-Si) hanno mostrato eccellenti attitudini per la formazione di grano ultrafine mediante ECAP [14-29]. Inoltre, la spiccata attitudine al rafforzamento per precipitazione, di queste leghe, è garantita dalla formazione per precipitazione delle seconde fasi indurenti Mg<sub>2</sub>Si, e, in forma minore, di Si. La sequenza di precipitazione della fase Mg<sub>2</sub>Si può essere sintetizzata nel seguente modo: i) soluzione sovrasatura di alluminio (SSS); ii) agglomerati di atomi di Si e Mg; iii) dissoluzione degli agglomerati di Mg e formazione di co-agglomerati di Mg / Si (zone I di Guinier-Preston: GP-I); iv) formazione di bacchette fini allungate di β'' (GP-II), precipitati coerenti con la matrice; v) precipitati semi-coerenti in forma di bacchette (β'); vi) formazione della fase stabile β-Mg<sub>2</sub>Si, costituita da precipitati di forma allungata completamente non-coerenti con la matrice [30-35]. I processi di rafforzamento che negli ultimi anni sono stati applicati su leghe di alluminio, quali le Al-Mg-Si, possono essere raggruppati in due grossi campi. Uno riguarda l'uso di affinanti microstrutturali quali le terre rare, Li, Zr, Sc, Ag; il secondo, l'uso di processi meccanici e termo-meccanici [36-38]. In genere, la struttura a grano ultrafine viene mantenuta alle alte temperatura, in quelle leghe che contengono dispersoidi formati da uno o più elementi, elencati precedentemente, con l'alluminio. Questi dispersoidi sono in grado di bloccare efficacemente il moto di dislocazioni e, soprattutto, dei bordi di grano che altrimenti tenderebbero a muoversi per effetto dell'energia fornita alla microstruttura durante l'esposizione alle alte temperature [38]. In particolare, leghe di alluminio con aggiunte di piccole frazioni di scandio o zirconio, hanno eccellenti proprietà meccaniche a temperatura ambiente e questo dovuto proprio alla presenza di coerenti e nanometrici dispersoidi Al<sub>3</sub>Sc, o Al<sub>3</sub>Zr, in grado di stabilizzare la microstruttura a grano ultrafine [38,39]. Tali dispersoidi sono stabili alle temperature tipiche del comportamento superplastico delle leghe Al-Mg-Si (0.5-0.6 T<sub>m</sub>, dove con T<sub>m</sub> si indica la temperatura di fusione della lega, il che corrisponde a ca. 330-360°C). Le leghe Al-Mg-Si-(Zr) e Al-Mg-Si-(Sc) sono pertanto altamente colabili, induribili per precipitazione, e possono essere utilizzate a temperature abbastanza alte e, comunque, più alte di quelle accettabili per leghe equivalenti ma senza Sc o Zr [37-39]. L'aggiunta combinata di Zr e Sc conferisce una ancor maggiore stabilità microstrutturale alla lega [37-41]. I dispersoidi che si formano sono del tipo: Al<sub>3</sub>(Sc<sub>1-x</sub>Zr<sub>x</sub>), dell'ordine di 20-40 nm di dimensione e a forma arrotondata [39-42]. Il presente lavoro ha come obiettivo quello di descrivere gli

(% in peso)	Mg	Si	Fe	Mn	Zr	Sc
Lega 1	0.34	0.51	0.16	0.014	0.10	-
Lega 2	0.33	0.52	0.17	0.014	0.10	0.117

Tabella 1 – Composizione chimica della lega 1 (Al-Mg-Si-(Zr)) e della lega 2 (Al-Mg-Si-(Sc,Zr)).

Table 1 – Chemical composition (wt.%) of Al-Mg-Si-(Zr), alloy 1, and Al-Mg-Si-(Sc-Zr), alloy 2.

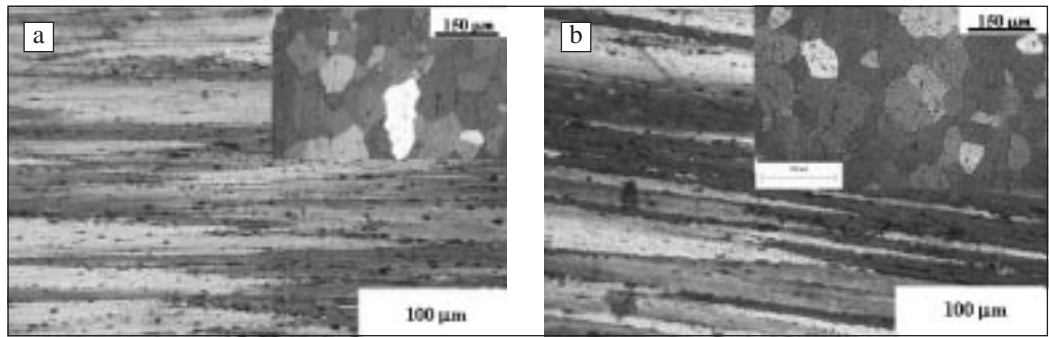
studi microstrutturali effettuati mediante microscopia elettronica in trasmissione sul ruolo dei dispersoidi Al<sub>3</sub>Zr e Al<sub>3</sub>(Sc<sub>1-x</sub>Zr<sub>x</sub>) in due differenti leghe Al-Mg-Si – T8, sottoposte a deformazione plastica severa mediante ECAP. L'evoluzione microstrutturale indotta dall'ECAP, per un totale di 12 passate mediante la route Bc, è qui descritta e discussa sulla base dei meccanismi di formazione dei bordi a basso ed alto angolo in presenza dei dispersoidi.

#### PROCEDURE SPERIMENTALI E METODOLOGIE DI INDAGINE

Le due leghe (Al-Mg-Si-(Zr) e Al-Mg-Si-(Zr,Sc), nel seguito indicate rispettivamente con lega 1 e lega 2) sono state prodotte dalla Hydro-Norsk (Trondheim, Norvegia) in forma di barre cilindriche estruse di diametro pari a 10 mm. La composizione chimica delle due leghe è riportata nella Tabella 1. Gli studi microstrutturali sono stati condotti sul materiale nelle condizioni T8 (solubilizzazione a 530°C / 4h, raffreddamento in acqua e sovra-invecchiamento a 190°C / 8h), seguite da deformazione severa mediante ECAP fino a deformazione vera pari a ~12 (ovvero fino a 12 passate). Il trattamento termico T8 garantisce una completa precipitazione delle seconde fasi indurenti, rendendo stabile la struttura del materiale che è successivamente sottoposto a deformazione plastica. Per le deformazioni attraverso lo stampo ECAP, è stata scelta la route Bc (rotazione del campione di +90° ad ogni passaggio nello stampo) [9]. La scelta della route Bc è supportata da diversi studi precedenti che, mettendo a confronto le diverse possibili routes, hanno mostrato come la route Bc sia quella che, a parità di deformazione, induce un affinamento microstrutturale più omogeneo. Questo è dovuto al processo di ricostituzione di grani quasi-equiasici mantenendo alta la frazione, generata nella deformazione, di bordi ad alto angolo, ogni due passate nello stampo [10-14,29]. Lo stampo ECAP utilizzato ha i due canali che si incontrano a formare un angolo di 90° ed un arco di curvatura esterno di 45°; tale configurazione garantisce una deformazione vera per passata di 1.08 [8,10-14]. Lo stampo è un blocco di acciaio SK3 (Fe-1,1 %C) il cui progetto è ampiamente descritto in [44]. I campioni cilindrici, dopo ECAP, sono stati sezionati lungo il piano Y (secondo la nomenclatura diffusa in letteratura, si veda per esempio [9,14]), ovvero lungo il piano di estrusione, contenente la direzione di estrusione (DE) e la direzione trasversa (DT). Per le osservazioni in luce polarizzata (LP) la superficie dei campioni è stata attaccata con una soluzione di HBF<sub>4</sub> in etanolo a 0 °C ed una tensione di 12 V. Film sottili per la microscopia elettronica in trasmissione (TEM) sono stati preparati meccanicamente fino ad uno spessore di ~120 μm, da questi sono stati ritagliati dischetti di 3 mm che successivamente sono stati attaccati elettro-chimicamente per ottenere una zona sufficientemente sottile da poter essere osservata al TEM. Per la fase di preparazione elettro-chimica al doppio-getto è stata utilizzata una soluzione di 1/3 HNO<sub>3</sub> in metanolo a -35 °C ed una tensione di 18 V. Per le osservazioni TEM, è stato utilizzato un microscopio Philips™ CM20. Tutte le osservazioni sono state effettuate ad una tensione di accelerazione di 200 kV. È stato usato un porta-campioni a

Fig. 1 – Immagini in luce polarizzata (LP) della microstruttura delle due leghe come ricevute; (a) lega 1, (b) lega 2. Il riquadro in alto a destra, mostra la microstruttura della sezione normale.

Fig. 1 – POM images of the as-extruded microstructure of Al-Mg-Si-(Zr), alloy 1 (a), and Al-Mg-Si-(Sc-Zr), alloy 2 (b). The inset shows the sectional plane microstructure.



doppio tilt con il quale è stato possibile ottimizzare le osservazioni ruotando il campione in modo che la superficie di osservazione avesse l'asse normale alla direzione cristallografica [001]. Tale configurazione campione-fascio elettronico del microscopio, assicura una visione ottimale dei dispersoidi di  $Al_3(Sc_{1-x}Zr_x)$  e  $Al_3Zr$ , all'interno della matrice dei due materiali. L'identificazione delle seconde fasi indurenti e degli altri intermetallici quaternari (ricchi in Fe), ovvero delle fasi:  $Mg_2Si$ ,  $Si$  e  $Al_{15}(FeMn)_3Si_2$ , è stata fatta mediante selected area electron diffraction pattern (SAEDP), accoppiata ad energy dispersive spectrum (EDS).

La densità dei precipitati è stata calcolata determinando il numero per unità di superficie e dividendo per lo spessore del campione nella zona corrispondente. Lo spessore locale è stato determinato mediante misurazioni dirette (attraverso le zone di Laue) e con l'aiuto di un software dedicato [17]. Per ogni condizione sperimentale, sono stati presi in considerazione 3 dischetti TEM per un totale di ca. 200 confini di grano o sottogranio misurati.

Le misure di micro-durezza sono state eseguite mediante un micro-durometro manuale applicando un carico di 100 g per 15 s. I valori medi sono stati calcolati sulla base di almeno 20 misurazioni per ognuna delle condizioni sperimentali prese in considerazione. Le misure di conducibilità elettrica sono state eseguite con una sonda a 24 punti su una superficie di  $1\text{ cm}^2$ , e i valori medi sono il risultato di un massimo di 21 misurazioni indipendenti per ciascuna condizione sperimentale. L'errore associato è stato mantenuto al di sotto dell'1%, per entrambe le misure di micro-durezza e conducibilità elettrica.

## RISULTATI E DISCUSSIONE

La figura 1 (a),(b) mostra la microstruttura rispettivamente della lega 1 e 2 nella forma così come ricevuta (barre estruse). I grani appaiono molto allungati nella direzione di estrusione in entrambe le leghe, con una spaziatura laterale inferiore nel caso della lega 2 (presenza di Sc). Tale spaziatura laterale è per la lega 1 di  $\sim 45\ \mu\text{m}$ , mentre per la lega 2 è di  $\sim 38\ \mu\text{m}$ . La figura in alto a destra è stata inserita per documentare la sezione normale dei grani allungati nella condizione iniziale dopo estrusione.

La figura 2 (a),(b) mostra due immagini in LP delle due leghe dopo trattamento termico T8 lungo il piano DE-DT. Il fenomeno di bloccaggio dei bordi di grano risulta essere decisamente più efficace nel caso della lega 2, contenente i dispersoidi  $Al_3(Sc_{1-x}Zr_x)$ , in quanto, in questo caso, la distanza laterale dei grani allungati è rimasta pressoché invariata rispetto alla condizione iniziale (ovvero prima del trattamento T8). Da queste osservazioni preliminari, risulta pertanto chiaro come l'effetto combinato di Zr e Sc sia di gran lunga superiore all'effetto stabilizzante che può essere garantiti con la sola presenza di Zr (ovvero nel caso di dispersoidi  $Al_3Zr$ ). La tendenza al fenomeno di ricristallizzazione, durante trattamento di solubilizzazione del T8, è comunque inibito in entrambi i casi, in quanto siamo in presenza anco-

ra di grani essenzialmente allungati e non quasi-equiasici, come ci si aspetterebbe a seguito di una completa ricristallizzazione. La densità dei dispersoidi è stata determinata mediante una serie di sistematiche osservazioni ad alti ingrandimenti al TEM. Per la lega 1 (Al-Mg-Si-(Zr)) la densità dei dispersoidi  $Al_3Zr$  è di  $4.8 \cdot 10^{19}\ \text{m}^{-3}$ , per la lega 2 (Al-Mg-Si-(Zr,Sc)) la densità dei dispersoidi  $Al_3(Sc_{1-x}Zr_x)$  è di  $1.5 \cdot 10^{20}\ \text{m}^{-3}$ . Questa differenza nella densità dei dispersoidi (1 a 3 in favore di quelli contenenti Sc) per le due leghe, indica una spiccata affinità dello Sc a formare dispersoidi con Zr e Al il che permette a questi precipitati fini di essere diffusamente presenti in tutta la matrice della lega. Per le due leghe (1 e 2), in condizione T8, la distanza laterale media tra i grani allungati è, rispettivamente, di  $20\ \mu\text{m}$  e  $12\ \mu\text{m}$ . La figura 2 (c),(d) mostra l'effetto sulla microstruttura delle due leghe della prima passata ECAP. Le bande di deformazione di taglio inducono una deformazione periodica dei grani a formare un aspetto ondulato degli stessi. La microstruttura delle due leghe, dopo 12 passate, è mostrata in figura 2 (e),(f). Tale microstruttura consiste di fasci ravvicinati quasi paralleli di confini ad alto angolo interrotti, qua e là, da bordi ad alto (BAA) e basso angolo (BBA) intersecanti le bande ad alto angolo, il che contribuisce alla formazione di una struttura a grani ultrafini (al disotto del micron).

La differenza più significativa nella microstruttura delle due leghe consiste in un fattore di scala che risulta essere più piccolo nel caso della lega 2 dove sono presenti i dispersoidi  $Al_3(Sc_{1-x}Zr_x)$ . La microstruttura della lega 1 ha un'alta frazione di grani sub-micrometrici quasi-equiasici insieme a celle (BBA) di dimensioni simili. La microstruttura è del tutto simile a quella che lo stesso materiale assume dopo 4 passate, ma con un fattore di scala inferiore. La struttura più fine, ottenuta in presenza dei dispersoidi  $Al_3(Sc_{1-x}Zr_x)$ , nella lega 2, è chiaramente attribuita alla diffusa presenza degli stessi dispersoidi che hanno una dimensione media di  $25\ \text{nm}$  ed una distanza media di  $560\ \text{nm}$  (lungo il piano di giacenza: (100)) che risulta essere una dispersione più fitta rispetto a quella mostrata dai dispersoidi  $Al_3Zr$ , nella lega 1, con una distanza media di  $1040\ \text{nm}$  ed una dimensione media di  $20\ \text{nm}$ . La figura 3 (a),(b) mostra un'immagine rappresentativa in campo-scuro dei due tipi di dispersoidi, per le due leghe dopo 12 passate. Queste due immagini TEM mostrano chiaramente come entrambi i dispersoidi siano prevalentemente orientati lungo le originali direzioni di estrusione. La morfologia di entrambi i tipi di dispersoidi appare cubica ed in accordo con Wulff [38,42,43], consiste di 6 piani {100} cubici, 12 piani {110} dodecaedrici, 8 piani {111} ottaedrici, che corrisponde al solido regolare chiamato in geometria *Grande Ottaedro-Rombicubo* [38]. In effetti, le osservazioni TEM in campo-scuro, mostrano le proiezioni (100) degli spigoli dei dispersoidi, il che consente di visualizzare tali dispersoidi come particelle quadrate costituite da facce {010} e {001} parallele i cui angoli al vertice sono costituiti da cortissimi piani {110} (per ulteriori dettagli, si veda anche [38]).

Le misure di micro-durezza e conducibilità elettrica (figura 4) mostrano un andamento continuo in valori sempre più al-

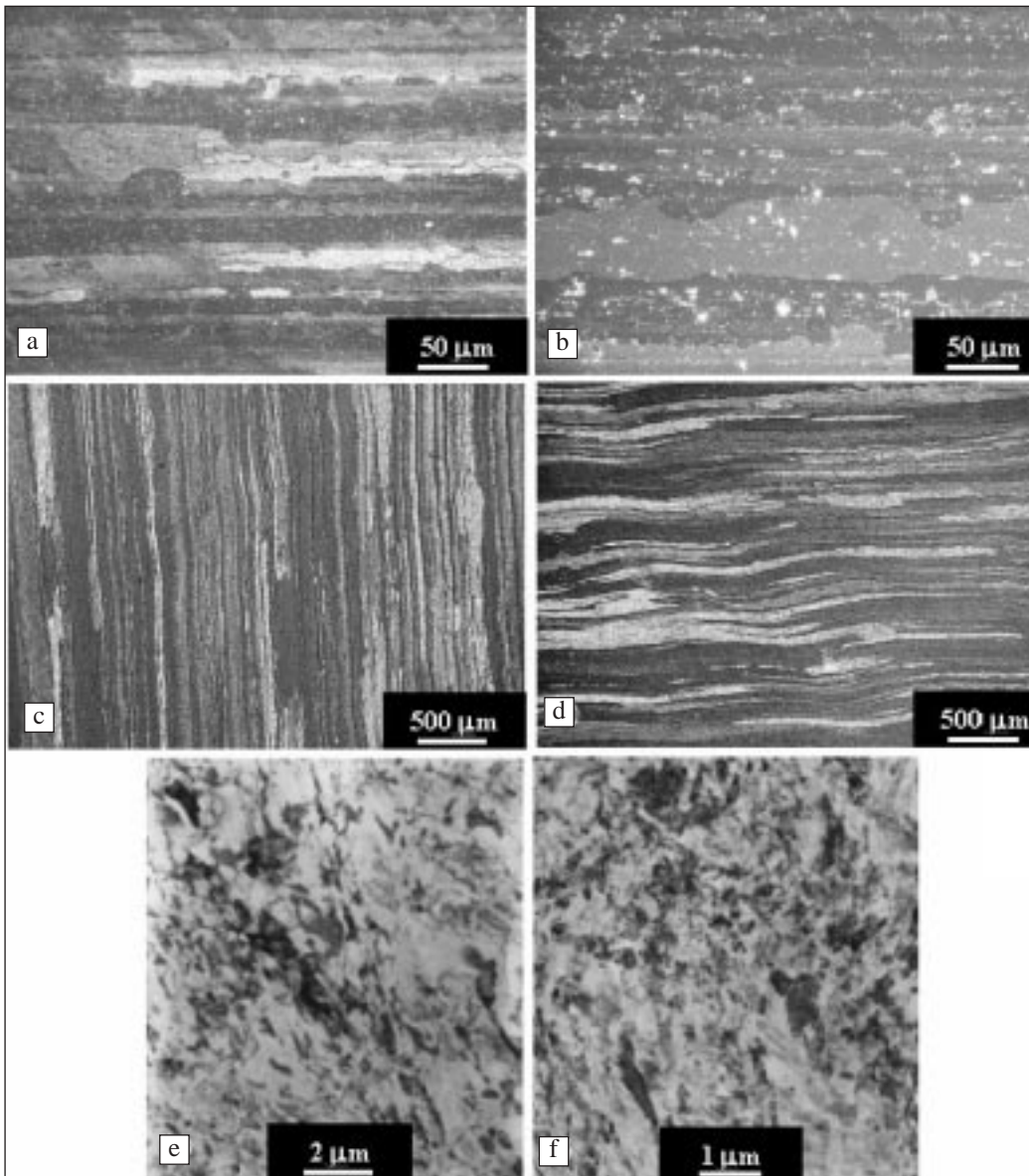


Fig. 2 – Microstruttura della lega 1, (a),(c),(e) e della lega 2, (b),(d),(f). (a), (b) sono immagini in LP delle due leghe dopo trattamento T8; (c), (d) si riferiscono alla microstruttura delle due leghe dopo la prima passata ECAP, le quali mostrano chiaramente le bande di deformazione di taglio; (e), (f) sono immagini TEM delle due leghe dopo la massima deformazione (12 passate).

Fig. 2 – Microstructure of alloy 1, (a),(c),(e) and alloy 2, (b),(d),(f). (a), (b) are polarized optical images of the as-extruded and T8 condition; (c), (d) are polarized optical images of the microstructure after the first pass and showing the shear bands; (e), (f) are low-magnification TEM images of the materials subjected to 12 passes.

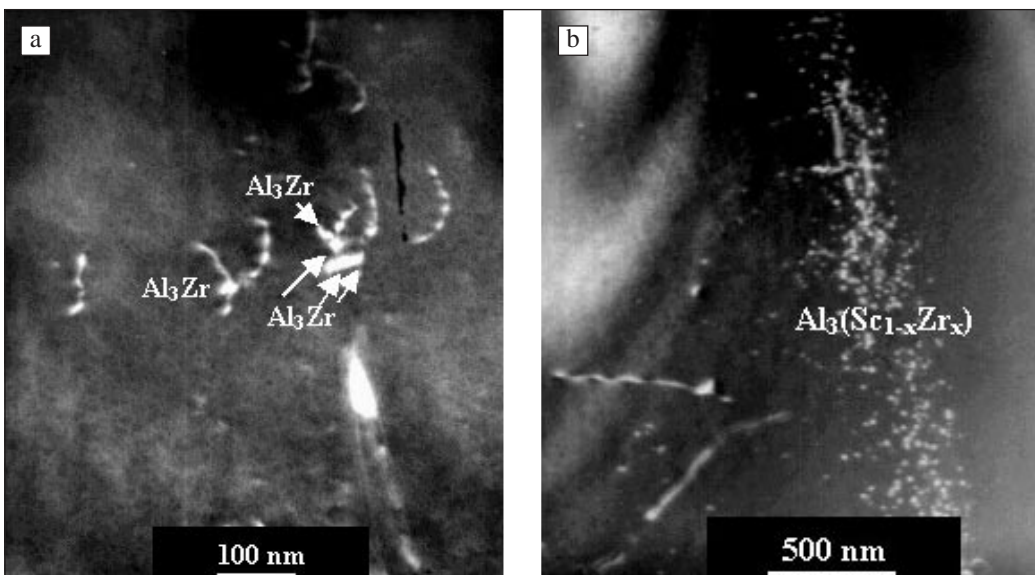


Fig. 3 – Immagine TEM in campo-scuro dei due tipi di dispersoidi  $Al_3Zr$  e  $Al_3(Sc_{1-x}Zr_x)$  corrispondenti alla lega 1 (a) e 2 (b), dopo 12 passate.

Fig. 3 – Dark-Field TEM image [001] zone axis of alloy 1 (a) and 2 (b) after 12 passes, showing  $Al_3Zr$  and  $Al_3(Sc_{1-x}Zr_x)$  dispersoids, respectively.

ti, nel primo caso, e sempre minori, nel secondo, con l'aumento della deformazione. La lega 1 mostra valori di durezza costantemente inferiori del 10-15% rispetto alla lega 2. Questo lieve incremento nei valori di durezza a favore della lega contenente lo scandio, considerati anche i corrispondenti

valori di conducibilità elettrica lievemente maggiori, può essere imputato alla maggiore presenza di dispersoidi rispetto alla lega 1. La presenza più diffusa dei  $Al_3(Sc_{1-x}Zr_x)$  è certamente responsabile della maggiore riduzione nei valori di conducibilità elettrica della lega 2, in quanto, più efficace-

Fig. 4 – Micro-durezza (a) e conducibilità elettrica (b) in funzione della deformazione, per entrambe le leghe 1 e 2.

Fig. 4 – Micro-hardness (a) and electrical conductivity (b) as a function of true strain. The two plots refer to both alloys, with and without Sc.

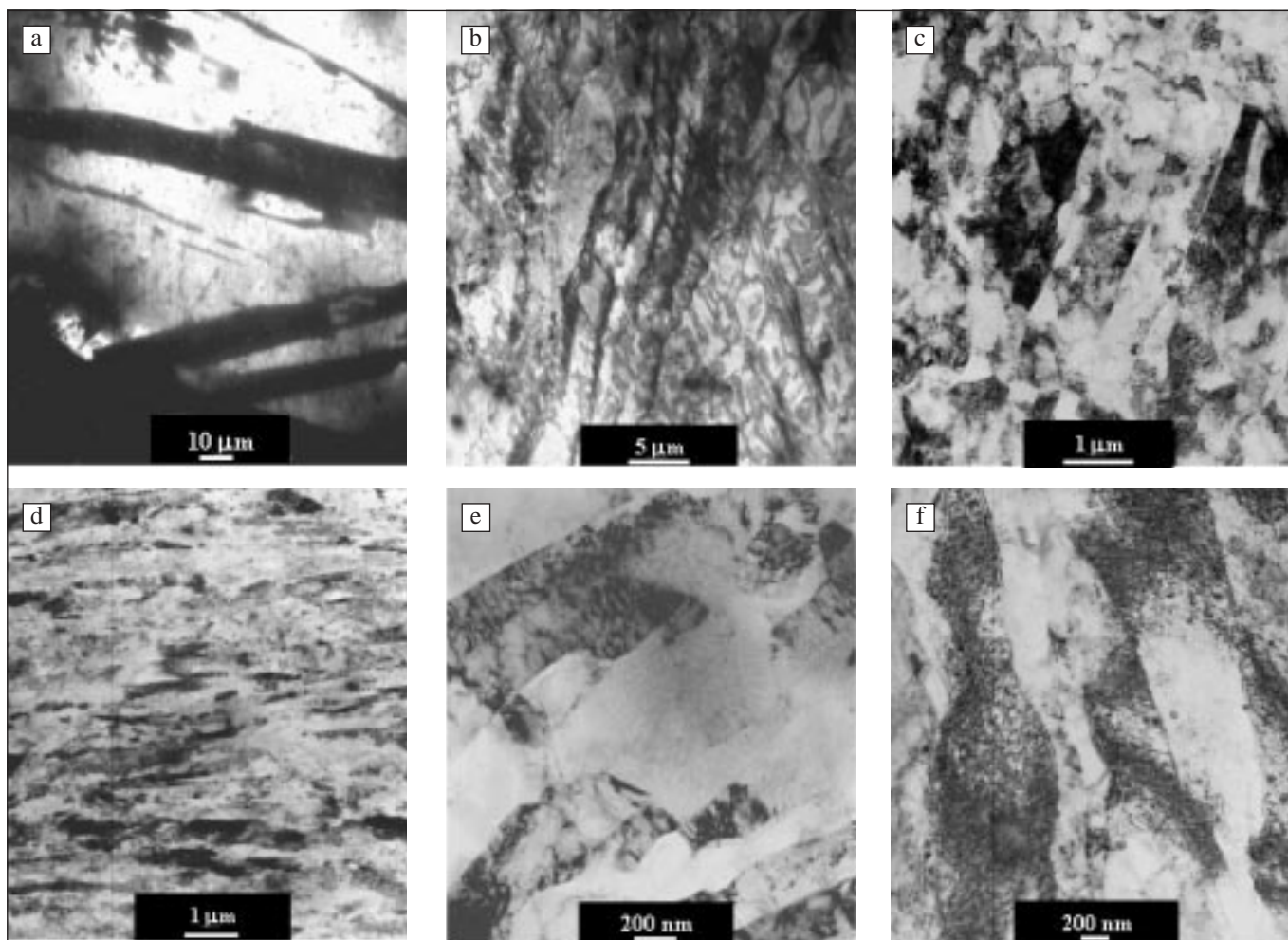
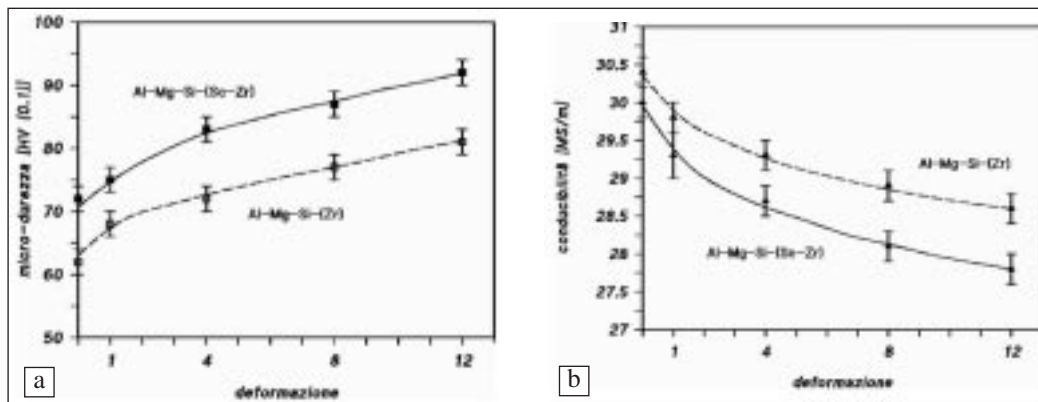


Fig. 5 – Immagini TEM della lega 1 (Al-Mg-Si-(Zr)) e 2 (Al-Mg-Si-(Zr-Sc)) nella condizione T8 e, rispettivamente, dopo 2 passate: (a) e (b), dopo 4 passate: (c) e (d), e dopo 12 passate (e) e (f).

Fig. 5 – TEM images of Al-Mg-Si-(Zr) and treated Al-Mg-Si-(Zr-Sc), after 2 passes: (a) and (b), after 4 passes: (c) and (d), and after 12 passes (e) and (f), respectively.

mente contribuisce al disturbo della periodicità reticolare della matrice.

La figura 5 (a) – (f) mostra alcune immagini TEM rappresentative della microstruttura delle due leghe dopo 1, 8 e 12 passate. L'effetto macroscopico delle bande di deformazione di taglio è chiaramente mostrato nelle due immagini TEM a bassissimi ingrandimenti (figura 5 (a),(b)). Le celle (ovvero strutture chiuse i cui bordi hanno una disorientazione inferiore a 15°), presenti all'interno delle strutture a BAA hanno una dimensione media di 5 μm e 2 μm dopo la prima passata ECAP, rispettivamente per la lega 1 e 2, la disorientazione media è, rispettivamente di 1.8° e 4.6°. Dopo l'ottava passata la dimensione media delle celle diminuisce in maniera più

efficace per la lega contenente i dispersoidi con scandio risultando essere di 720 nm e 330 nm, rispettivamente per la lega 1 e 2. A seguito della deformazione massima (pari a ~12), tale valore medio scende a 450 nm per la lega 1 e fino a 250 nm per la lega contenente scandio (lega 2). Inoltre, la disorientazione media dei BAA aumenta fino a un valore medio di 5.4° per la lega 1, e 8.2° per la lega 2.

La figura 6 (a) riporta l'andamento della disorientazione media dei BBA e BAA in funzione della deformazione. L'effetto dei dispersoidi  $Al_3(Sc_{1-x}Zr_x)$  sull'evoluzione microstrutturale dei BBA e BAA è quello di contribuire all'incremento della disorientazione con la deformazione. Tale effetto risulta essere leggermente meno pronunciato in presen-

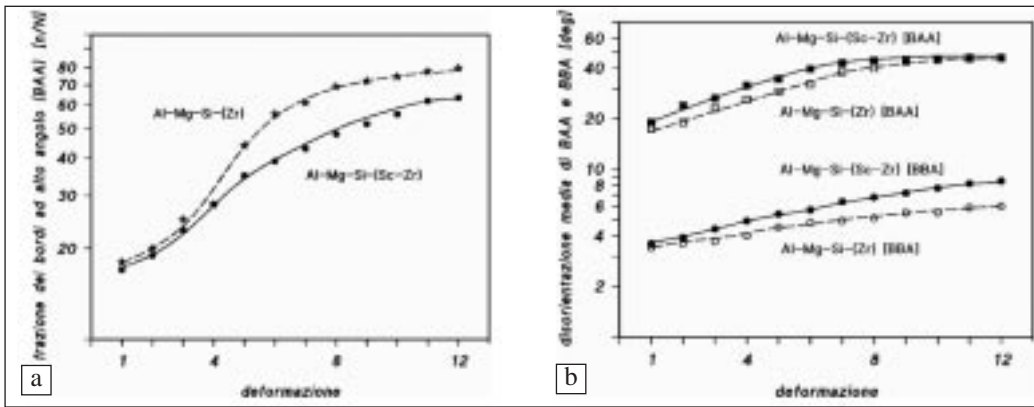


Fig. 6 – Frazione dei bordi ad alto angolo (a), e disorientazione media dei bordi ad alto e basso angolo (b), in funzione della deformazione.

Fig. 6 – Comparison of both materials on high angle boundary fraction (a), and on mean cell and block wall misorientation (b) as a function of strain.

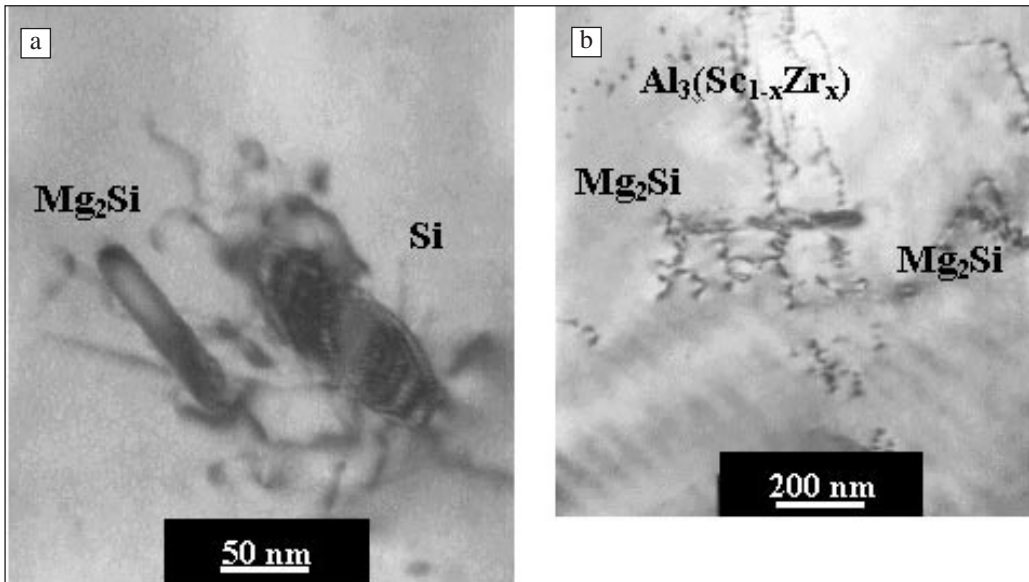


Fig. 7 – Immagine TEM rappresentativa del meccanismo di taglio delle particelle di Mg<sub>2</sub>Si e riduzione per riassorbimento parziale delle Si, indotto dall'alta concentrazione di dislocazioni introdotte durante la deformazione.

Fig. 7 – BF-TEM showing the severe plastic deformation induced Mg<sub>2</sub>Si breaking up and Si shrinking phenomenon.

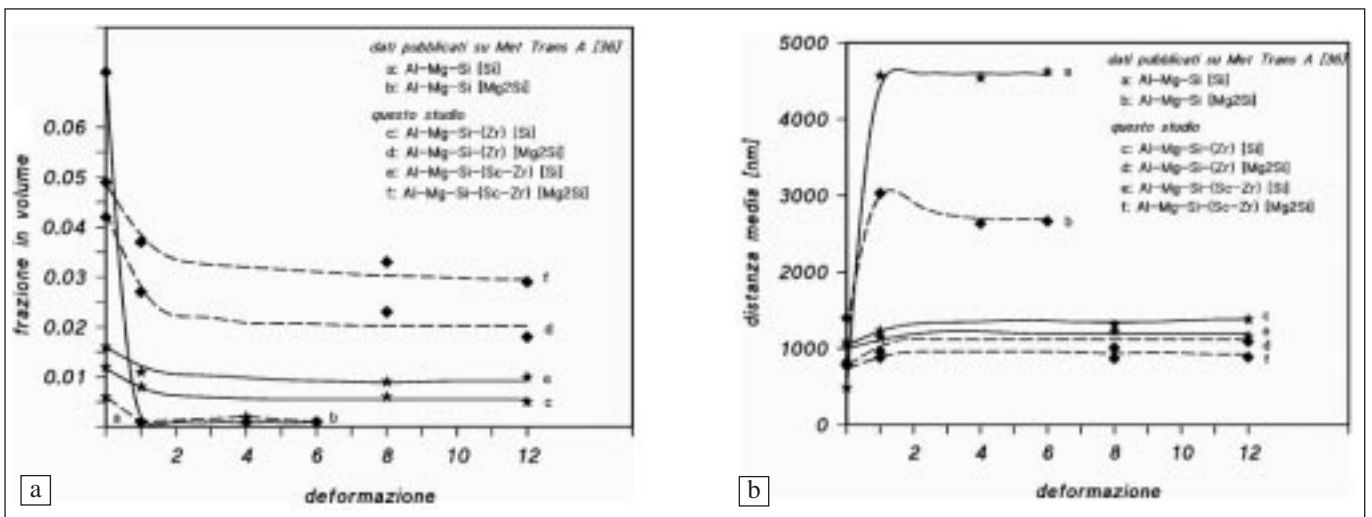


Fig. 8 – Frazione delle particelle Mg<sub>2</sub>Si e Si ( $f = \pi d_{eq}^3 N \sqrt{6}$ ) (a), loro distanza media  $\lambda$  (b), in funzione della deformazione per entrambe le leghe. Sono stati riportati i dati relativi alla lega base (Al-Mg-Si – T8), pubblicati in precedenza in [36].

Fig. 8 – Plot of the Mg<sub>2</sub>Si and Si particles fraction  $f$  ( $f = \pi d_{eq}^3 N \sqrt{6}$ ) (a), and spacing  $\lambda$  (b) vs. strain of both alloy 1 and 2; the data related to the base Al-Mg-Si T8 alloy, and published in [36], are also reported.

za dei dispersoidi Al<sub>3</sub>Zr (lega 1). Si è pertanto portati a credere che i dispersoidi, finemente dispersi nella matrice della lega 2, agiscano in modo tale da guidare la propagazione dei BBA e BAA, formati durante la deformazione, lungo le zone più densamente popolate dai dispersoidi. Come si è già avuto modo di accennare, i dispersoidi, sia Al<sub>3</sub>Zr che Al<sub>3</sub>(Sc<sub>1-x</sub>Zr<sub>x</sub>), sono localizzati preferenzialmente lungo linee parallele alla direzione di estrusione delle due leghe (si

veda la fig. 5 (a),(b)). In tal modo, a partire da un livello medio di deformazione, e più precisamente dalla quarta passata in poi, le bande di deformazione di taglio che introducono nuove dislocazioni e quindi tendono a formare nuovi confini (sia BBA che BAA), sono indotti a ripercorrere i percorsi seguiti dalle dislocazioni precedentemente introdotte, contribuendo, così, ad incrementare ulteriormente la disorientazione media dei bordi già esistenti. Tale processo di defor-

Tabella 2 – Diametro equivalente medio ( $d_{eq}$ :  $S=\pi d_{eq}^2/4$ ), numero per unità di volume ( $N_V$ ) e distanza media ( $\lambda$ ) delle particelle di seconda fase  $Mg_2Si$  e Si, nella lega 1 e 2, in funzione della deformazione.

Table 2 – Mean equivalent diameter ( $d_{eq}$ :  $S=\pi d_{eq}^2/4$ ), number per volume unit ( $N_V$ ) and centre-to-centre spacing ( $\lambda$ ) of  $Mg_2Si$  and Si secondary phase particles in alloy 1 and 2, as a function of strain.

lega 1* Al-Mg-Si-(Zr)		**	$d_{eq}$ [nm]	$N_V$ [ $10^{19}$ / m <sup>3</sup> ]	$\lambda$ [nm]
Estruso + T8	Si		130	1.05	1090
	$Mg_2Si$		185	1.30	810
ECAP 1	Si		118	0.90	1420
	$Mg_2Si$		168	0.85	1160
ECAP 8	Si		116	0.60	1530
	$Mg_2Si$		125	0.80	1220
ECAP 12	Si		102	0.45	1810
	$Mg_2Si$		115	0.50	1620

lega 2* Al-Mg-Si-(Zr,Sc)		**	$d_{eq}$ [nm]	$N_V$ [ $10^{19}$ / m <sup>3</sup> ]	$\lambda$ [nm]
Estruso + T8	Si		145	1.00	1050
	$Mg_2Si$		190	1.35	780
ECAP 1	Si		130	0.90	1140
	$Mg_2Si$		200	0.95	900
ECAP 8	Si		120	0.80	1250
	$Mg_2Si$		165	1.20	905
ECAP 12	Si		125	0.95	1160
	$Mg_2Si$		160	1.05	980

Al-Mg-Si* (AA6082) [36]		**	$d_{eq}$ [nm]	$N_V$ [ $10^{19}$ / m <sup>3</sup> ]	$\lambda$ [nm]
Estruso + T8	Si		100	1.15	490
	$Mg_2Si$		160	3.30	1390
ECAP 1	Si		120	0.65	4570
	$Mg_2Si$		150	0.75	3030
ECAP 4	Si		110	0.65	4540
	$Mg_2Si$		135	1.15	2640
ECAP 6	Si		100	0.60	4560
	$Mg_2Si$		110	1.40	2660

\*: sono considerate solo le particelle inferiori al micron.  
 \*\*: Errore associato: 5%.

mazione è tanto più diffuso, quanto più diffuse sono le particelle fini (nello specifico i dispersoidi  $Al_3(Sc_{1-x}Zr_x)$ ). Questa interpretazione è parzialmente confermata da studi condotti in precedenza, ma su leghe per deformazione plastica ed indurimento per precipitazione, ma non contenenti i dispersoidi [7,9-14,17,36]. Pertanto, i dispersoidi agiscono da zone nanometriche (tipicamente dell'ordine dei 25 nm) di bloccaggio dello scorrimento delle dislocazioni durante la deformazione. Questo si traduce in una minore frazione di confini a bassa e alta disorientazione che si formano con l'aumentare della deformazione imposta durante ECAP. Questa minore frazione di bordi generati, è stata verificata quantitativamente ed i risultati sono riportati in figura 6 (b). Inoltre, in un lavoro pubblicato in precedenza su Metall. Mater. Trans. A [36], M. Cabibbo, e co-autori, hanno documentato il processo di taglio delle particelle di  $Mg_2Si$  e di riduzione volumetrica delle particelle di Si (parziale riassorbimento), entrambi indotti dall'alta densità di dislocazioni introdotte durante ECAP in una lega Al-Mg-Si - T8. Lo stesso studio è stato esteso, nel presente caso, alle due leghe Al-Mg-Si-(Zr) e Al-Mg-Si-(Zr,Sc). I risultati, riportati in tabella 2, sono stati confrontati con quelli riportati in [36]. Il fenomeno di taglio delle  $Mg_2Si$  e di riduzione volumetrica delle Si è documentato dalla figura 7 che mostra due immagini TEM rappresentative. Il fenomeno è stato osservato in differenti zone del campione e sempre all'interno di grani o celle in presenza di un'alta concentrazione di dislocazioni, già dalla prima passata ECAP.

La figura 8 (a),(b) mostra l'andamento della frazione ( $f = 4\pi d_{eq}^3 \cdot N_V/3$ ) e distanza media ( $\lambda$ ) di  $Mg_2Si$  e Si, per entrambe le leghe 1 e 2; l'andamento della lega base Al-Mg-Si (risultati pubblicati in [36]), è riportata per confronto. Questo fenomeno risulta essere più accentuato nel caso della lega 1 in confronto alla lega 2. La riduzione volumetrica delle particelle di Si è piuttosto modesta per entrambe le leghe 1 e 2, mentre la riduzione nelle dimensione delle particelle di  $Mg_2Si$  è leggermente più accentuata. Ad ogni modo, nel caso della lega 2, si tratta di un fenomeno che risulta essere attenuato rispetto alla lega Al-Mg-Si. La lega 1 (quella contenente solo Zr) si comporta in modo simile alla lega Al-Mg-Si. Evidentemente, le dislocazioni libere che i dispersoidi  $Al_3Zr$  non riescono a bloccare, riescono ad agire sui precipitati di seconda fase  $Mg_2Si$  ed Si in modo analogo a quanto succede per la lega Al-Mg-Si. Questo aspetto della deformazione microstrutturale, si traduce in un ruolo ben definito e specifico dei dispersoidi  $Al_3(Sc_{1-x}Zr_x)$  che risulta essere prevalentemente quello di bloccare le dislocazioni libere, i BBA e BAA.

CONCLUSIONI

E' stata studiata l'evoluzione microstrutturale di due leghe Al-Mg-Si-(Zr) e Al-Mg-Si-(Zr,Sc) - T8 sottoposte a deformazione plastica severa mediante ECAP. In particolare, è stato analizzato il ruolo dei dispersoidi, stabilizzanti della

microstruttura,  $Al_3Zr$  e  $Al_3(Sc_{1-x}Zr_x)$  nel processo di deformazione delle due leghe.

I risultati possono essere sintetizzati nei seguenti tre punti:

i) Il processo di affinamento microstrutturale è più efficace in presenza dei dispersoidi  $Al_3(Sc_{1-x}Zr_x)$ , raggiungendo valori sub-micrometrici già dopo la quarta passata.

ii) I dispersoidi  $Al_3(Sc_{1-x}Zr_x)$  hanno la prerogativa di assolvere efficacemente il ruolo di siti preferenziali per la propagazione delle bande di deformazione di taglio, e quindi delle dislocazioni, bordi a basso ed alto angolo, generati durante la deformazione plastica. In tal modo, la frazione media dei bordi ad alto angolo risulta essere minore in confronto alla stessa lega senza Sc, ed ancor più rispetto ad una base Al-Mg-Si. Di conseguenza, la disorientazione media cresce molto più rapidamente.

iii) Il fenomeno di taglio delle particelle di  $Mg_2Si$  e di riduzione volumetrica delle particelle di Si (parziale riassorbimento), per effetto dell'alta densità di dislocazioni, introdotte durante la deformazione di taglio, e già documentate in un precedente lavoro su una lega Al-Mg-Si (si veda [36]) è molto meno diffuso nella lega Al-Mg-Si-(Zr,Sc) - T8 in confronto alla Al-Mg-Si-(Zr) - T8 e soprattutto alla Al-Mg-Si - T8.

#### RINGRAZIAMENTI

Il lavoro sperimentale qui presentato è parte di un progetto di ricerca finanziato dal Ministero della Ricerca (MIUR). Gli autori desiderano ringraziare la Hydro-Norsk di Trondheim (Norvegia) per la fornitura delle due leghe ed il sig. D. Ciccarelli per la preparazione superficiale dei campioni per le osservazioni al microscopio ottico in luce polarizzata.

#### BIBLIOGRAFIA

[1] M. Furukawa, Z. Horita, M. Nemoto, T.G. Langdon: Mater. Sci. Eng. A Vol. 324 (2002), p. 82

[2] H. Gleiter, in: N. Hansen, A. Horsewell, T. Leffers, H. Lilholt (Eds.), Deformation of Polycrystals: Mechanisms and Microstructures, Risø National Laboratory, Roskilde, Denmark, 1981, p. 15.

[3] P.G. Sanders, G.E. Fougere, L.J. Thompson, J.A. Eastman, J.R. Weertman: Nanostruct. Mater. 8 (1997) 243.

[4] J. Eckert, J.C. Holzer, C.E. Krill, W.L. Johnson: J. Mater. Res. 7 (1992) 1751.

[5] C.C. Koch, Nanostruct. Mater. 9 (1997) 13.

[6] A. Gholinia, F.J. Humphreys, P.B. Prangnell: Acta Mater. Vol. 50 (2002), p. 4461

[7] Z. Horita, T. Fujinami, T.G. Langdon: Mater. Sci. Eng. A Vol. 318 (2001), p. 34

[8] V.M. Segal, V.I. Reznikov, A.E. Drobyshvskiy, V.I. Kopylov: Russian Metallurgy, Vol. 1 (1981), p. 99

[9] M. Furukawa, Z. Horita, T.G. Langdon: Mater. Sci. Eng. A Vol. 332 (2002), p. 97

[10] H. Akamatsu, T. Fujinami, Z. Horita, T.G. Langdon: Scripta Mater. 44 (2001) 759.

[11] K. Nakashima, Z. Horita, M. Nemoto, T.G. Langdon: Mater. Sci. Eng. A281 (2000) 82.

[12] Y. Nishida, H. Arima, J.-C. Kim, T. Ando: J. Japan Inst. Light Metals 50 (2000) 655.

[13] S. Komura, M. Furukawa, Z. Horita, M. Nemoto, T.G. Langdon: Mater. Sci. Eng. A Vol. 297 (2001), p.111

[14] Y. Iwahashi, Z. Horita, M. Nemoto, T.G. Langdon: Ac-

ta Mater. Vol. 45 (1997), p.4733

[15] Y.T. Zhu, T.C. Lowe: Mater. Sci. Eng. A Vol. 291 (2000), p. 46

[16] M. Kamachi, M. Furukawa, Z. Horita, T.G. Langdon: Mater. Sci. Eng. A Vol. 347 (2003), p. 223

[17] M. Cabibbo, E. Evangelista and C. Scalabroni: Micron, Vol. 36 (2005), p. 401.

[18] D. Kuhlmann-Wilsdorf: Mater. Sci. Eng. A Vol. 113 (1989), p. 1

[19] D. Kuhlmann-Wilsdorf: Acta Mater. Vol. 47 (1999), p. 1697

[20] P.J. Apps, J.R. Bowen, P.B. Prangnell: Acta Mater. Vol. 51 (2003), p. 2811

[21] Q. Liu, D. Juul Jensen, N. Hansen: Acta Mater. Vol. 46 (1998), No. 16, p. 5819

[22] A. Shan, I.G. Moon, J.W. Park: J. Mater. Proc. Technology Vol. 122 (2002), p. 255

[24] A. Skalli, R. Fortunier, R. Fillit, J.H. Driver: Acta Metall. Vol. 33 (1985), p. 997

[25] A. Godfrey, D.A. Hughes: Mater. Charact. Vol. 48 (2002), p. 89

[26] N. Hansen, D. Juul Jensen: Acta Metall. Vol. 40 (1992), p. 3265

[27] M. Cabibbo, E. Evangelista: Proc. of ICAA-9, ed. IMEA, Brisbane, Australia (2004), p. 190

[28] M. Cabibbo, E. Evangelista, V. Latini: J. Mater. Sci. Vol. 39 (2004), p.5659

[29] P.L. Sun, P.W. Kao, C.P. Chang: Metall. Mater. Trans. A Vol. 35 (2004), p. 1359

[30] A.K. Gupta, D.J. Lloyd, S.A. Court: Mater. Sci. Eng. A Vol. 316 (2001), p. 11

[31] G.A. Edwards, K. Stiller, G.L. Dunlop, M.J. Couper: Acta Mater. Vol. 46 (1998), p. 3893

[32] N. Maruyama, R. Uemori, N. Hashimoto, M. Saga, M. Kikuchi: Scripta Mater. Vol. 36 (1997), p. 89

[33] S. Li, S. Zhao, M. Pan, D. Zhao, X. Chen, O.M. Barabash, R.I. Barabash: Mater. Trans. JIM. Vol. 38 (1997), p. 553

[34] K. Matsuda, H. Gamada, K. Fuji, Y. Uteni, T. Sato, A. Kamis, S. Ikeno: Metall. Mater. Trans. A Vol. 29 (1998), p. 1161

[35] M. Van Rooyen, J.A. Sinte Maartensdijk, E.J. Mittemeijer: Metall. Mater. Trans. A Vol. 19 (1988), p. 2433

[36] M. Cabibbo, E. Evangelista, M. Vedani: Metall. Mater. Trans. Vol. 36A (2005), p.1356.

[37] S. Lee, A. Utsunomiya, H. Akamatsu, K. Neishi, M. Furukawa, Z. Horita, T.G. Langdon: Acta Mater. Vol. 50 (2002), p. 553

[38] E.A. Marquis, D.N. Seidman: Acta Mater. Vol. 49 (2001), p. 1909

[39] V.G. Davydov, T.D. Rostova, V.V. Zakharov, Yu.A. Filatov, V.I. Yelagin: Mater. Sci. Eng. A280 (2000), p. 30

[40] A. Tolley, V. Radmilovic, U. Dahmen: Scripta Mater. Vol. 52 (2005), p. 621

[41] S. Iwamura, Y. Miura: Acta Mater. Vol. 52 (2004), p. 591

[42] A.P. Sutton, R.W. Balluffi, "Interfaces in Crystalline Materials", Oxford University Press, , Oxford, 1996

[43] M. Asta, S.M. Foiles, A.A. Quong: Phys. Rev. B Vol. 57 (1998), p.11265

[44] M. Vedani, P. Bassani, M. Cabibbo, V. Latini, E. Evangelista: Metall. Sci. Techn. Vol. 21 (2003), p. 3

A B S T R A C T

**COMBINED EFFECT OF SEVERE PLASTIC DEFORMATION AND (ZR), (SC+ZR)-CONTAINING DISPERSOIDS ON THE GRAIN REFINING PROCESS IN A AL-MG-SI ALLOY**

**Keywords:**

**SPD, microstructure, Al-Mg-Si alloy, Sc-Zr dispersoid, TEM**

*The microstructure evolution with strain was investigated either in a Zr-modified 6082 Al-Mg-Si alloy and in the same alloy added with 0.117wt.% Sc, subjected to equal-channel angular pressing using route B<sub>C</sub>, up to a true strain of ~12. The role of fine Al<sub>3</sub>(Sc<sub>1-x</sub>Zr<sub>x</sub>) dispersoids, pertaining Al-Mg-Si-(Sc-Zr) alloy, and Al<sub>3</sub>Zr dispersoids, pertaining Al-Mg-Si-(Zr) alloy, was investigated by transmission electron mi-*

*croscopy techniques and discussed. Compared to the commercial parent alloy, Al-Mg-Si, block wall formation and propagation were favored by the presence of Sc-Zr containing dispersoids, while cell boundary evolution was less affected, Al<sub>3</sub>Zr dispersoids affected the microstructure in a similar way, but in a lesser extent. Mean misorientation across block walls increased with strain much more in the Sc-Zr containing alloy, reaching a plateau, starting from a true strain of ~8. Misorientation across cell boundaries continuously increased to ~8° and ~5° for the Sc-Zr and Zr containing alloy, respectively.*

*The effect of presence of Al<sub>3</sub>(Sc<sub>1-x</sub>Zr<sub>x</sub>) and Al<sub>3</sub>Zr in the matrix, on the Mg<sub>2</sub>Si cutting-up and Si shrinking phenomenon with strain, was also addressed and documented.*