

放电等离子烧结新技术新材料 研究现状与发展趋势*

韩翠柳^{1,2}, 沈学峰^{1,2}, 王 衍^{1,2}, 杨新宇^{1,2}, 潘亚飞^{1,2}, 张久兴^{1,2}

(1. 合肥工业大学高性能铜合金及其加工技术教育部工程研究中心, 合肥 230009;

2. 合肥工业大学材料科学与工程学院, 合肥 230009)

[摘要] 放电等离子烧结(SPS)是一种低温、短时、高效的新型粉末冶金技术。详细介绍了 SPS 技术的烧结机理、工艺优势以及设备发展,综述了 SPS 在轻金属、高温合金、难熔金属、硬质合金、陶瓷材料、高导热材料等领域的国内外最新研究成果,并对 SPS 技术的发展趋势和前景进行了展望。

关键词: 粉末冶金; 放电等离子烧结(SPS); 新材料; 设备; 近净成形

DOI:10.16080/j.issn1671-833x.2019.22.043



韩翠柳

博士研究生,主要研究方向为难熔金属的 SPS 制备。

粉末冶金技术具有短流程、节能降耗、低成本、少加工等一系列技术优势,可自由组装材料结构从而精确调控材料性能,同时实现近净成形,是材料绿色制造技术的重要发展方向。随着科技创新和工业技术的不断发展进步,航空航天、新能源、汽车制造、精密仪器等领域对粉末冶金材料与器件的制备、加工及性能的要求越发严苛。与传统粉末冶金技术相比,放电等离子烧结(Spark Plasma Sintering, SPS)具备快速、低温、节能、环保、操作简便、产品性能优异且稳定等优势,在金属、陶瓷、硬质合金、梯度功能材料等方面得到广泛应用,是目前关注度最高的新型制备技术和工艺之一,国内外学者对于 SPS 制备新材料展开了大量的研究工作^[1]。

SPS 技术与设备简介

1 SPS 技术及其特殊效应

SPS 是在模具和粉末颗粒间或

块体样品中通入脉冲电流进行烧结或连接的一种快速新型材料制备方法,又称等离子活化烧结(Plasma Activated Sintering, PAS)或脉冲电流电压烧结(pulse current pressure sintering),是 20 世纪 90 年代以来开始研究的一种快速烧结新工艺^[2]。SPS 集等离子体活化、热压、电阻加热为一体,具有加热均匀、升温速率高、烧结温度低、烧结时间短、生产效率高等优势,能够实现表面净化效果且能抑制晶粒长大,使产品组织均匀可控。同时,与传统烧结方法相比,SPS 操作简单,成本较低,是新型环境友好型材料制备技术。

SPS 与传统热压烧结相比,除通电产生的焦耳热与加压产生的塑性变形促进烧结之外,还在压实粉末样品上施加了由特殊电源产生的直流脉冲电压,因此产生了如图 1 所示的特有的促进烧结的现象^[3]。SPS 烧结过程中,电流流经模具和粉末产

* 基金项目: 国家重点研发计划(2018YFC1901703)。

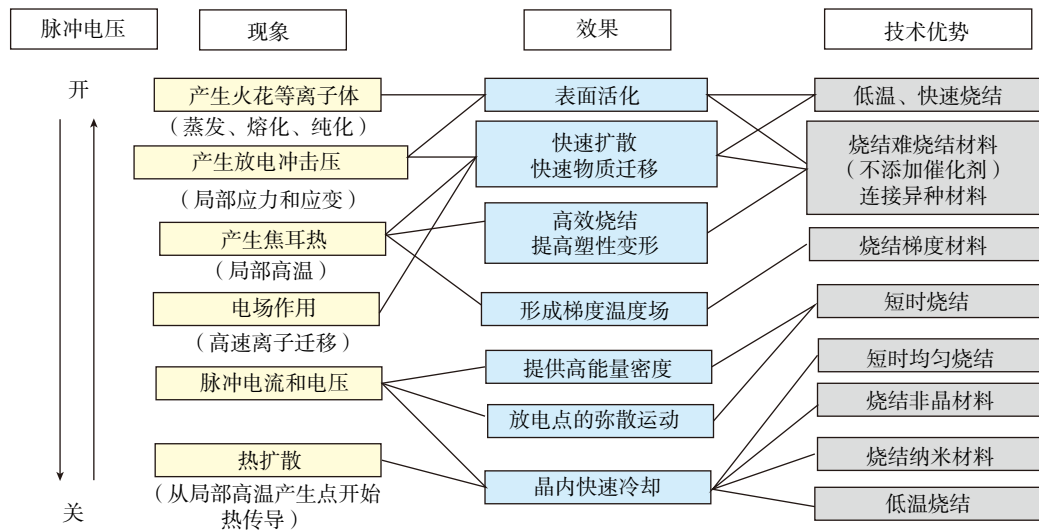


图1 脉冲开关的作用
Fig.1 Effects of on-off DC

生大量的焦耳热用于加热升温,经过待烧结粉末的电流,因初期粉末颗粒之间存在间隙,相邻颗粒之间将产生火花放电,一些气体分子被电离,产生的正离子和电子分别向阴极和阳极移动,在颗粒之间放电形成等离子体,随着等离子体的密度不断增大,高速反向运动的粒子流对颗粒表面产生较大的电火花冲击力,不仅可去除吸附的气体或破碎的氧化膜,而且能净化和活化表面颗粒,同时可促进物质的迁移速率,使其快速扩散,可降低烧结温度和缩短烧结时间^[4-6]。粉末颗粒边缘在脉冲电场作用下产生焦耳热瞬间形成高温场,在压力的作用下,实现了粉末颗粒塑性变形的提高,使SPS可制备传统烧结方法难烧结的材料且可以连接不相容的材料。烧结所施加的脉冲电流电压给烧结提供了高密度的能量且形成了放电点的弥散运动,使样品可在短时间内烧结完成,同时,独特的加热方式使材料晶内快速冷却,因此SPS也用于制备高质量非晶材料和纳米材料。

2 SPS 设备及其发展

SPS 装置主要包括压力系统、真空系统、水冷系统、测温系统、电源及

控制系统,其结构如图 2 所示。

由于 SPS 独特的技术和明显的工艺优势,自 1990 年日本推出可用于新材料研究开发和工业生产的 SPS 设备以来,SPS 技术和设备突飞猛进,开拓了制造业的新领域^[7]。目前,作为日本首个 SPS 加工中心, SINTER LAND 公司的设备可分为研发用的小型台式和中型 LABOX 系列以及工业生产用 JPX 系列。其中小型台式 SPS 设备最大输出电流为 1000~2500A,最大加压力为 10kN,小型化及轻量型设计更适合于新材料开发。中型 SPS 设备最大输出电流为 1500~20000A,最大加压力为 30~600kN,设备通用性强,满足从研发阶段到产品试制阶段的使用要求。合肥工业大学拥有 LABOX-6020K 大型 SPS 设备,如图 3 所示,最大烧结电流为 20000A,最大烧结压力为 6000kN,已开展了包括金属及合金材料、难熔金属及合金、陶瓷材料、硬质合金、高导热材料、梯度复合材料、异种金属的扩散连接以及异形材料的研究与制备,并首次进行了大尺寸一模多腔的样品制备,取得了重要成果。该设备可制备高温烧结试样尺寸最大

可达 $\phi 150\text{mm}$,低温烧结最大可达 $\phi 200\text{mm}$,可满足产品研发及小型批量化生产。同时,合肥工业大学还配套引进型号为 LABOX-350 放电等离子烧结系统,满足小尺寸材料的开发与制备以及产品的前期工艺探索需求。

JPX 系列生产系统最大加压力为 1.2~6MN,输出最大脉冲电流为 15000~40000A,工作台尺寸 $\phi 300\sim 900\text{mm}$ 。目前世界最大的 SPS 设备为三烧结腔式隧道型 SPS 生产系统,如图 4 所示。采用模块化设计理念,三烧结腔依次为预热腔、SPS 烧结腔、冷却腔,其最大烧结压力为 600MN,输出最大脉冲电流为

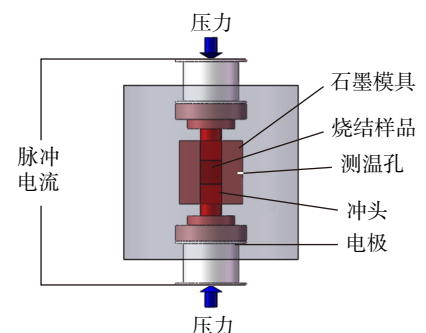


图2 SPS基本结构示意图
Fig.2 Schematic representation of spark plasma sintering system

40000A。该设备大大缩短了烧结时间,提高了烧结效率,使SPS真正实现了产业化。

SPS技术在材料研发中的应用

SPS技术可制备材料包括金属及金属间化合物、难熔金属、硬质合金、高熵合金、纳米材料、非晶材料、陶瓷材料、多孔材料、金属玻璃材料、梯度功能材料、尖端复合材料、多元素材料以及生物体使用材料等。同时,SPS可实现块体之间的固相扩散连接,产品强度高,气密性好。这里主要从轻金属合金、高温合金、陶瓷材料、难熔金属、硬质合金以及高导热材料等几个方面,对SPS技术的最新研究成果进行介绍。

1 SPS技术在轻金属合金中的应用

轻金属中的Al、Mg、Ti及其合金相对密度较小,强度较高,抗蚀性较强,广泛用于航空航天和地面交通等领域。高强轻金属合金中合金元素含量多、合金化程度高,采用传统的铸锭合金易发生合金成分偏析、铸锭开裂等问题,严重影响合金的强韧性、可加工性等性能,限制了工业化应用的进一步发展。而SPS具有成形压力低、烧结时间短、颗粒表面活化与净化的特点,因此采用SPS制备高强轻金属合金组织晶粒细小,基本消除成分偏析的问题^[8]。

王伟等^[9]采用放电等离子烧结(SPS)法在1200°C制备含有不同质量分数TiB₂的Ti₂AlNb基复合材料,结果表明,采用SPS制备的复合材料组织均匀,当复合材料中TiB₂质量分数达到10%时,复合材料的摩擦磨损性能最优,摩擦系数达到0.554,磨损率为 $3.363 \times 10^{-4} \text{ mm}^3 \cdot \text{N}^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$ 。Guan等^[10]采用SPS原位合成制备Mg48.7Zn51.3合金,测试结果显示,该方法显著减少了加工引起的缺陷,并获得了优异的延展性。黄兰萍等^[11]采用SPS烧结Zr质量分数0.25%的7056铝合金粉末,研究

烧结温度对合金致密性、微观组织和力学性能的影响,结果表明SPS制备的铝合金接近全致密,随着烧结温度升高,合金的压缩屈服强度先增大后减小,在烧结温度为480°C时,强度最高,为284.7MPa;烧结温度为420°C时效处理后,强度达到575.9MPa。Queudet等^[12]通过SPS制备了超细Al-Mg-Zn合金,其综合

性能优异,平均晶粒尺寸为150nm,屈服强度比商用AA7020-T651材料高出65%,粗晶材料、超细晶材料以及商用AA7020-T651材料的真实应力应变曲线如图5所示。

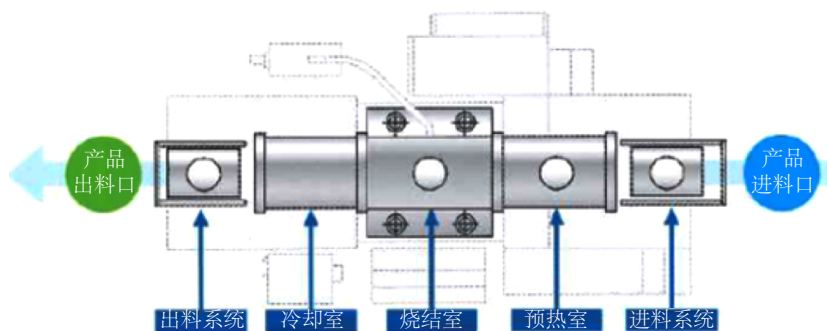
2 SPS技术在高温合金中的应用

以Fe、Ni、Co为基的高温合金具有优异的高温强度,以及良好的抗氧化、抗热腐蚀、疲劳性能、断裂

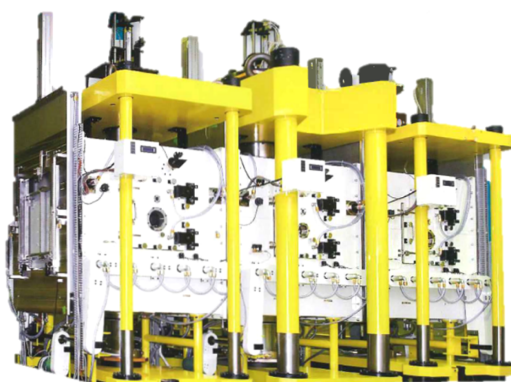


图3 放电等离子烧结系统LABOX-350、LABOX-6020K

Fig.3 Spark plasma sintering system LABOX-350 and LABOX-6020K



(a)三腔体式隧道型SPS生产系统示意图(俯瞰)



(b)三腔体式隧道型SPS生产系统

图4 连续式SPS设备

Fig.4 Continuous spark plasma sintering equipment

韧性等综合性能,又被称为超合金,主要应用于航空航天领域和能源领域。对于高温合金的传统制备方法为热等静压+热处理,但复杂的合金元素构成及热加工过程导致高温合金内出现热诱导孔洞、非金属夹杂物以及原始颗粒边界等问题。而SPS具有升温速度快、烧结时间短、烧结效率高的优势,可在一定程度上避免以上缺陷的产生。

Khouzani等^[13]研究了SPS工艺对钴基Stellite[®]-6高温合金的微观组织和力学性能的影响,结果表明当烧结温度为1050℃时,得到的合金具有最低的孔隙率和最高的致密度,与其他粉末冶金制备方法相比,SPS制备的该合金具有最高的力学性能。秦子珺等^[14]以雾化法的镍基高温合金FGH96粉末为原料,研究了SPS烧结工艺对合金性能的影响,结果表明,当烧结温度为1070℃时,合金由细小的胞晶和枝晶组织组成,碳化物主要分布在原始组织内部,未发现明显的原始颗粒边界(Previous Particle Boundaries, PPBs),其微观组织如图6所示,当烧结温度为1170℃时,合金由均匀的等轴晶组成,碳化物析出相沿着原始颗粒边界分布,观察到明显的PPBs,SPS工艺能在一定程度上消除原始颗粒边界。Kang等^[15]采用SPS在950℃下制备了Ni46Co22Al12Cr8Fe8Ti3Mo1(HESA1)成分的富Ni高熵高温合金(HESA),并在1200℃下进行了热处理,最终得到的合金拉伸屈服强度达到1355MPa,延展性达到8.7%,性能远高于其他粉末冶金法制备的HESA合金。

3 SPS技术在陶瓷材料中的应用

陶瓷材料因其优异的力学、热学性能而被广泛应用于航空航天各个领域。超高温陶瓷、颗粒增强超高温陶瓷基复合材料因具有高熔点、高硬度、高热导率、优异的高温强度、韧性以及抗氧化性能而被广

泛应用于高超音速飞行器的鼻锥、翼前缘等关键部位^[16]。但难烧结是碳化物、氮化物等高性能陶瓷的制备难点之一,添加烧结助剂可以促进烧结,但是往往会损害其性能。SPS烧结过程中,在粉末颗粒之间产生放电生成焦耳热,基本不需要传统烧结方法所需要的传热过程,因此烧结时间缩短,烧结温度降低,且不需要添加烧结助剂,这对于烧结高温陶瓷、细晶陶瓷来说具有独特的优势。

自伟等^[17]采用SPS与无压烧

结法烧结纳米ZrO₂粉末,对比两种烧结方法及烧结温度对样品纤维结构及力学性能的影响,结果表明,虽然SPS法不能改善材料的切削性能,但与无压烧结法相比,能显著抑制晶粒长大且提高其力学性能,当SPS烧结温度为1500℃时,抗弯强度达到1483MPa。Kobayashi等^[18]采用SPS制备添加烧结助剂的AlN陶瓷,当烧结温度1450℃、烧结压力100MPa、保温时间30min时,样品致密度达99%。Sayyadi-Shahraki等^[19]通过SPS研究了不

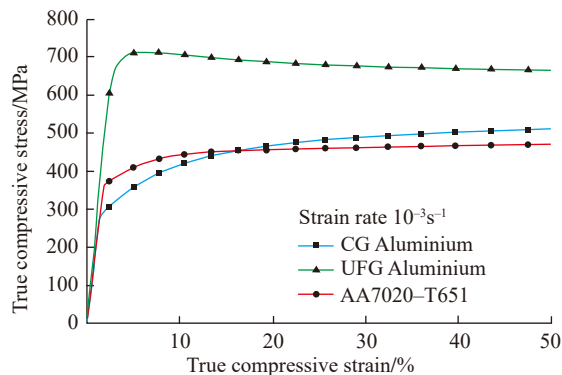


图5 CG Al-Zn-Mg合金、UFG Al-Zn-Mg合金和商用AA7020-T651材料在准静态条件下的压缩真应变-应力曲线

Fig.5 Compressive true strain-stress curves in quasistatic conditions for consolidated CG Al-Zn-Mg alloy, UFG Al-Zn-Mg alloy and the reference AA7020-T651

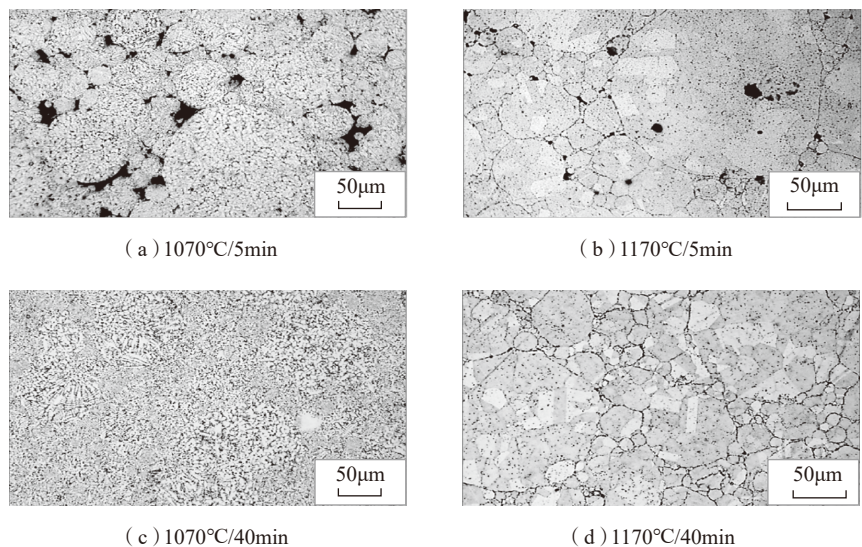


图6 不同条件下放电等离子烧结的FGH96合金的金相组织

Fig.6 Metallographic structures of FGH96 superalloys sintered by SPS under different conditions

同YSZ含量 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{ZrO}_2$ 纳米复合材料的影响,当YSZ含量由0提高到30%时,烧结温度从 1600°C 降低至 1420°C ,硬度有所降低,但断裂韧性从 $5.8\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ 增加至 $7.1\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$,且表现出良好的摩擦磨损性能。周身林等^[20]采用SPS技术以 LaH_2 粉末和B粉为原料,原位合成 LaB_6 块体,纯度达到99.8%,样品平均晶粒尺寸为 120nm ,TEM图及衍射花样如图7所示。

4 SPS技术在难熔金属材料中的应用

难熔金属指熔点在 2000°C 以上的金属,包括W、Mo、Ta、Nb、V、Re共6种,其使用温度范围为 $1100\sim 3320^\circ\text{C}$,远高于高温合金。难熔金属具有熔点高、高温强度高、耐液态金属腐蚀、导电性及冷加工性能良好等优异性能,广泛应用于原子能、电子、化工、机械、航空航天和军工各领域。目前制备难熔金属及其合金最常用的方法是电弧熔炼法,但该方法会导致晶粒粗大及成分偏析,作为辅助工序的后期轧制会导致材料的各向异性明显。近年来,SPS独特的烧结机理和技术优势使其在难熔金属领域的研究逐渐展开,并取得了重要进展。

Ding等^[21]采用SPS制备W-2Mo-6Ni-2.5Fe-1.5Co合金,研究了烧结温度对合金组织和力学性能的影响,结果表明,当烧结温度达到

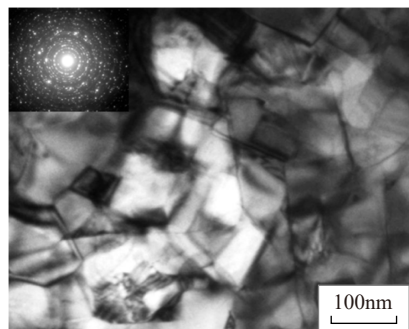


图7 LaB_6 试样TEM照片及选区电子衍射花样
Fig.7 TEM images of LaB_6 specimen

1250°C 时,合金处于液相烧结,致密度接近全致密,硬度和弯曲强度同时提高,表现出良好的综合力学性能。谢明等^[22]通过SPS方法制备了W-30Re合金,当烧结温度为 1800°C 时,合金晶粒细小,组织均匀,密度较高,且具有良好的力学性能。宁夏东方钽业股份有限公司^[23]利用SPS将高纯钽粉制备成组织细小均匀、致密度高、无择优取向的钽块,经少量加工即可作为钽靶使用。Hu等^[24]分别通过SPS和传统液相烧结制备了93W-5.6Ni-1.4Fe合金(93WHA),研究了不同烧结方式下合金的微观组织对机械性能的影响,结果表明与传统液相烧结相比,SPS制备的93WHA因基体晶粒尺寸细小且晶界数量多而表现出高度屈服强度和流动应力,其不同烧结方式所得93WHA晶粒尺寸统计如图8所示,可见SPS制备的93WHA平均晶粒尺寸远低于传统液相烧结,进一步

证明了SPS在难熔金属制备过程中可控制晶粒长大,提高其机械性能。韩杰胜等^[25]采用SPS工艺制备了具有单一bcc相的MoNbTaW难熔高熵合金,当烧结温度为 2000°C 时,致密度为99.8%,晶粒尺寸为 $32.4\mu\text{m}$,屈服强度为 $(1314\pm 14)\text{MPa}$,与电弧熔炼相比,SPS工艺制备的高熵合金表现了更高的化学无序度,具有更高的混合熵。

5 SPS技术在异种材料连接中的应用

随着工业技术的发展,航空航天以及先进工业开始以低成本和功能结构一体化为发展目标,因此,构建不同材料组成的复合材料成为新的发展趋势,如铜/铝、金属/陶瓷、钨/钼等异种材料的连接件得到了广泛的应用^[26]。目前,异种材料连接件主要采用钎焊、熔焊、瞬间液相连接以及固相扩散焊来制备,但容易出现裂纹、有害相、材料再结晶等缺陷,且

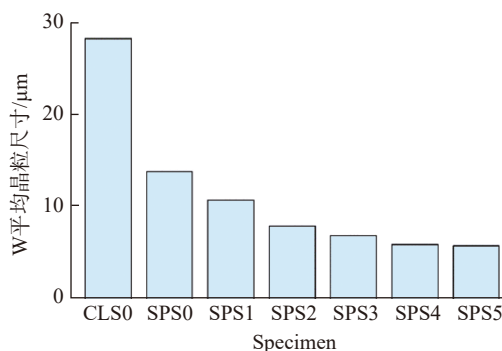
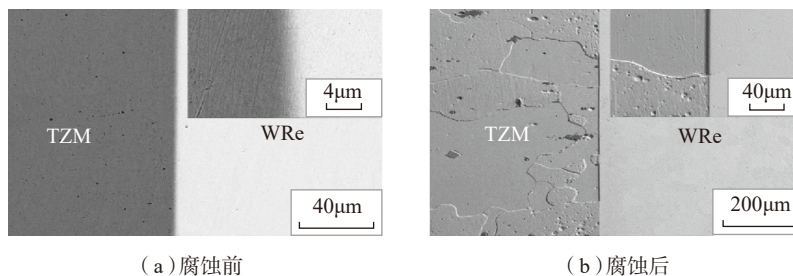


图8 不同烧结方法制备的93WHA中W平均晶粒尺寸
Fig.8 W mean matrix size of the prepared 93WHA



(a) 腐蚀前

(b) 腐蚀后

图9 1500°C 下TZM/WRe焊接微观形貌
Fig.9 Microstructures of TZM/WRe joints bonded at temperatures of 1500°C

强度较低。而SPS固相扩散连接是在传统固相扩散焊接所需的温度场和应力场的基础上引入了电场,在电场的作用下,电迁移效应可加速物质的扩散^[27-28]。

Yang等^[29]利用SPS扩散连接技术在1500℃、保温30min的条件下制备了TZM/WRe连接件,该连接件界面无金属间化合物,不存在微裂纹及孔隙,其腐蚀前后的焊缝微观形貌如图9所示,焊缝机械性能优异,且1500次热冲击后仍保持高强度,性能与普通扩散焊相比得到明显提升。张久兴等^[30]采用SPS技术制备CT机X射线管用W/Mo/石墨复合阳极靶材,实现了金属与金属、金属与石墨之间的SPS扩散连接,界面平整且性能优异,满足阳极靶材使用要求。汤迁等^[31]采用SPS制备了添加镍中间层的铜/304不锈钢连接件,在焊接压力10MPa、焊接温度900℃、保温时间15min时,连接件剪切强度最佳,可达到98MPa。

6 SPS技术在硬质合金材料中的应用

硬质合金是由难熔金属的硬质化合物和粘结金属通过粉末冶金工艺制成的一种合金材料。硬质合金具有硬度高、耐磨、强度和韧性较好、耐热、耐腐蚀等一系列优良性能,广泛用于切削工具、刀具、钻具和耐磨零部件的制备,被誉为“工业牙齿”。硬质合金获得优异性能的关键是烧结过程中控制晶粒的长大,而SPS的快速低温烧结在控制晶粒尺寸上有独特的优势,因此,近年来,关于SPS制备硬质合金的研究得到了广泛的关注。

金亚琴等^[32]采用SPS工艺制备双晶WC硬质合金,结果表明当烧结温度为1900℃,烧结压力为40MPa时,超粗/超细晶WC比例为3:1的双晶WC硬质合金致密度高、力学性能优异,其硬度、断裂韧性、抗弯强度分别达到了1655HV1、14.61MPa·m^{1/2}、

653MPa。文彦等^[33]研究了SPS烧结工艺对平均为30μm、壁厚为1.8μm的空心球结构WC-6Co复合粉末烧结的影响,结果表明当烧结温度1250℃、保温时间5min、烧结压力50MPa时,制备的WC-6Co合金密度达到14.69g/cm³,断裂韧性达到12.23MPa·m^{1/2},组织细小均匀。Huang等^[34]采用SPS制备无粘结相WC硬质合金,当烧结温度达到1500℃、保温时间4min、烧结压力60MPa时,致密度达到99.6%,维氏硬度超过2600HV,致密度高于97%的WC断裂韧性为9~15MPa·m^{1/2}。Wang等^[35]采用3种不同方法制备了WC-8Co粉末,结果表明经过超声振动法混合的WC-8Co粉末经SPS后得到的合金显微组织均匀,致密度高达99.1%,平均晶粒尺寸为280nm,且力学性能优异(维氏硬度为18.8GPa,断裂韧性为11.4MPa·m^{1/2})。

7 SPS技术在高导热材料中的应用

通常,人们将热导率在200W/(m·K)以上的材料称为高导热材料。随着工业的发展,高导热材料受到越来越高的重视,以航空领域为例,随着航天器功能的日益复杂化、电子器件集成度及功率逐步提高,亟

待解决高功率密度电子芯片的散热问题。同时,在增强封装材料本身导热性能外,还需考虑芯片与封装材料之间的热膨胀系数匹配问题,而碳增强金属基复合材料作为高功率芯片封装材料可以满足高导热、低膨胀的需求,因此受到广泛的关注^[36]。因碳材料与金属的密度差较大,传统粉末冶金制备碳增强金属基复合材料时会出现组织成分不均匀、致密度较低的情况,因此人们开始尝试采用与传统烧结方法不同的SPS技术进行碳增强金属基复合材料的制备。

刘依卓子等^[37]采用球磨和SPS制备了片状石墨/铝复合材料,当烧结温度为580℃,烧结压力为40MPa时,复合材料致密度达到99.7%,且烧结过程中没有产生有害相,当石墨体积分数为60%时,复合材料热导率达到440W/(m·K),满足工业上封装材料的散热要求。Yang等^[38]通过SPS研究了不同Ti含量对Cu-Ti/金刚石复合材料热导率的影响,结果表明,烧结温度为925℃时,采用SPS制备的9Cu-0.2Ti/金刚石复合材料热导率高达529W/(m·K),与Cu/金刚石复合材料相比提高了195%,不同Ti含量的复合材料的热

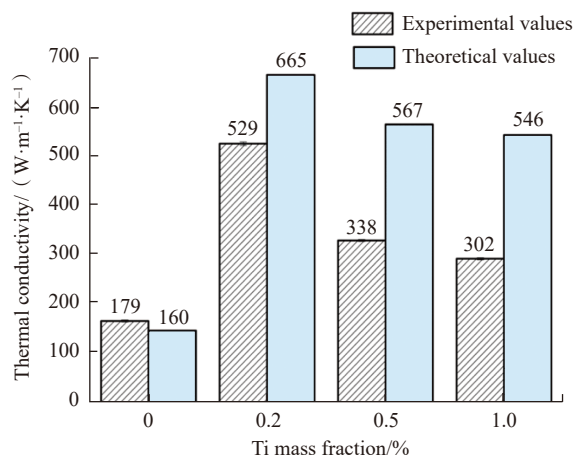


图10 不同Ti含量的复合材料的热导率试验值与理论值
Fig.10 Experimental and theoretical thermal conductivity of the sample as a function of Ti content

导率理论值如图 10 所示,可见,该材料热导率试验值达到了理论值的 79.5%。段国杰^[39]通过 SPS 制备金刚石增强铜基复合材料,最高热导率达到 361W/mK,与常压烧结相比,其致密度与导热性能均明显提高。

SPS 技术发展趋势

1 产业化

与传统烧结方法相比,SPS 技术在节约能源和时间、提高生产效率、产品性能可控等诸多方面具有明显的优势,目前日本已实现 SPS 的产业化应用,主要用于生产磁性材料、硬质合金、梯度功能材料等。如日本太田精器已经实现了 100% WC 超硬材料的 SPS 量产,产品提供给日本国内外 40 多家电机、电子零部件、工具、模具等厂家。然而国内对于 SPS 技术仍处于实验室研究阶段,多用于新材料的制备和工艺的研究。陕西斯瑞新材料股份有限公司与合肥工业大学^[40]联合设计开发的一模多腔石墨模具,采用 LABOX-6020K 放电等离子烧结系统,一次成形多个 CuCr30 触头材料,其组织均匀、性能优异,实现了 SPS 的批量化生产,为 SPS 产业化起到了推动性的作用。该模具同样可用于其他材料的制备。同时,SINTER LAND 公司推出 JPX 放电等离子烧结系列,该系列采用三模腔设计,分为预热、烧结、冷却 3 个模腔,大大提高了设备使用效率,可满足工业化的使用要求。

2 烧结体形状多样化

因烧结机理与石墨模具的限制,目前 SPS 制备的样品主要为简单的圆柱体,难以制备复杂形状的工件,不能满足实际工程需要。合肥工业大学通过深入研究烧结机理,合理设计石墨模具,成功制备出了方形、凸台形、碗形、带斜面圆柱体等形状较为复杂的样品,致密度高且组织均匀,进一步节约了制备成

本,少量机加工后即可作为成品使用,可应用于航空航天、精密器械、靶材等相关领域。

3 烧结模具的性能优化

石墨因其耐高温性、优良的导电导热性、化学稳定性、抗热震性以及良好的润滑和抗磨性而被作为 SPS 常用模具材料。然而,石墨材料强度低、寿命短且容易对烧结材料造成污染。目前已报道的有硬质合金模具、导电陶瓷模具、碳纤维石墨模具等,但存在高温易变形、价格昂贵等问题,因此,为了更好地利用 SPS 技术,需进一步开发强度更高、重复使用率高、无污染的新型模具材料。

4 结合有限元模拟的进一步发展

因 SPS 特殊工作环境,一般方法无法对烧结过程、成形机理、影响因素等方面进行准确的分析,获取烧结过程中的温度、位移等参数变化也存在一定的误差,因此有限元模拟成为了 SPS 新的研究手段之一。目前已有报道通过 ABAQUS、MATLAB 以及 MSC.MARC 等软件对烧结过程进行模拟,可获得烧结过程中的温度场分布及电场分布,分析各烧结参数对烧结过程的具体影响,对于 SPS 烧结机理的进一步研究、试验结果的前期预测、生产的理论指导具有重要的意义^[41]。

结论

放电等离子烧结技术自出现以来,因其低温、短时、高效的特点得到了快速的发展。在难熔金属、硬质合金、陶瓷材料、高导热材料等领域的材料制备方面取得了重要研究成果。但其中间过程的烧结机理目前仍存在争议,仍需大量的试验、理论研究来完善,在模具、工艺等方面还需要进一步探索。与传统烧结方法相比,SPS 具备明显的优势,因此将其引入到航空航天、军工装备材料的研发

上,必将发挥重要的作用,对促进我国高尖端产品器件的研发将起到积极的推动作用。

参考文献

- [1] 闫秋实. 放电等离子烧结的研究进展[J]. 科技创新导报, 2016, 31(13): 36-37.
- [2] YAN Qiushi. Research progress in spark plasma sintering[J]. Science and Technology Innovation Herald, 2016, 31(13): 36-37.
- [3] 张久兴, 岳明, 宋晓艳, 等. 放电等离子烧结制备功能材料的最新进展[J]. 功能材料信息, 2010, 7(4): 15-24.
- [4] ZHANG Jiuxing, YUE Ming, SONG Xiaoyan, et al. Recent advances in the preparation of functional materials by spark plasma sintering[J]. Functional Materials Information, 2010, 7(4): 15-24.
- [5] 高濂, 宫本大树. 放电等离子烧结技术[J]. 无机材料学报, 1997, 12(2): 129-133.
- [6] GAO Lian, GONGBEN Dashu. Spark plasma sintering technology[J]. Journal of Inorganic Materials, 1997, 12(2): 129-133.
- [7] 王庆福, 张彦敏, 国秀花, 等. 放电等离子烧结技术的研究现状及进展[J]. 稀有金属与硬质合金, 2014, 42(3): 44-47.
- [8] WANG Qingfu, ZHANG Yanmin, GUO Xiuhua, et al. Research status and development of discharge plasma sintering technology[J]. Rare Metals and Cemented Carbides, 2014, 42(3): 44-47.
- [9] SADEGHI B, CAVALIERE P. Spark plasma sintering: process fundamentals[M]. Berlin: Springer, 2019.
- [10] 陈振华. 现代粉末冶金技术[M]. 北京: 化学工业出版社, 2007.
- [11] CHEN Zhenhua. Modern powder metallurgy technology[M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2007.
- [12] 孟晔, 强文江, 贾成厂. 日本放电等离子体烧结的现状[J]. 粉末冶金技术, 2014, 32(4): 296-305.
- [13] MENG Ye, QIANG Wenjiang, JIA Chengchang. Current status of spark plasma sintering in Japan[J]. Powder Metallurgy Technology, 2014, 32(4): 296-305.
- [14] MAMORU O. Sintering,

consolidation, reaction and crystal growth by the spark plasma system (SPS)[J]. *Materials Science & Engineering A*, 2000, 287(2): 296–305.

[9] 王伟, 韩子茹, 王庆娟, 等. TiB_2 增强 Ti_2AlNb 基复合材料的放电等离子烧结制备及其摩擦学性能研究 [J/OL]. *稀有金属*, 2015–05–24, <http://kns.cnki.net/kcms/detail/11.2111.TF.2015.524.0648.001.html>.

WANG Wei, HAN Zirui, WANG Qingjuan, et al. Preparation and tribological properties of TiB_2 reinforced Ti_2AlNb matrix composites by spark plasma sintering[J/OL]. *Chinese Journal of Rare Metals*, 2015–05–24, <http://kns.cnki.net/kcms/detail/11.2111.TF.2015.524.0648.001.html>.

[10] GUAN D K, GAO J H, SHAR P J, et al. Enhancing ductility and strength of nanostructured Mg alloy by in-situ powder casting during spark plasma sintering[J/OL]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2018–07–23, <http://doi:10.1016/j.jallcom.2018.07.247>.

[11] 黄兰萍, 何军, 李松, 等. 放电等离子烧结制备 7056 铝合金的组织与性能 [J]. *粉末冶金材料科学与工程*, 2019, 24(2): 112–119.

HUANG Lanping, HE Jun, LI Song, et al. Microstructure and mechanical property of 7056 aluminum alloy produced by spark plasma sintering[J]. *Materials Science and Engineering of Powder Metallurgy*, 2019, 24(2): 112–119.

[12] QUEUDE T H, LEMONNIE R S, BARRAU D E, et al. One-step consolidation and precipitation hardening of an ultrafine-grained Al-Zn-Mg alloy powder by spark plasma sintering[J]. *Materials Science & Engineering A*, 2017, 685: 227–234.

[13] KHOUZANI M K, BAHRAMI A, MEHR M Y. Spark plasma sintering of Stellite®-6 superalloy[J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2019, 82: 461–468.

[14] 秦子瑁, 刘锋, 江亮. SPS 工艺制备镍基高温合金的微观组织 [J]. *粉末冶金材料科学与工程*, 2018, 23(5): 488–494.

QIN Zijun, LIU Feng, JIANG Liang. Microstructure of nickel-based superalloys prepared by spark plasma sintering[J]. *Materials Science and Engineering of Powder Metallurgy*, 2018, 23(5): 488–494.

[15] KANG B, KONG T, RYU H J, et al. The outstanding tensile strength of Ni-rich

high entropy superalloy fabricated by powder metallurgical process, *Materials Chemistry and Physics*[J]. 2019–06–02, <https://doi.org/10.1016/j.matchemphys.2019.121749>.

[16] 王如转. 陶瓷材料高温强度与抗热冲击性能及其表征方法研究 [D]. 重庆: 重庆大学, 2015.

WANG Ruzhuan. Study on high temperature strength performances and thermal shock resistance of ceramics and their characterization methods[D]. Chongqing: Chongqing University, 2015.

[17] 自伟, 林元华, 卫彦, 等. 放电等离子烧结制备氧化锆陶瓷及其力学性能 [J]. *稀有金属材料与工程*, 2011, 40(S1): 492–495.

ZI Wei, LIN Yuanhua, WEI Yan, et al. Preparation of zirconia ceramics by spark plasma sintering technique and their mechanical properties[J]. *Rare Metal Materials and Engineering*, 2011, 40(S1): 492–495.

[18] KOBAYASHI R, NAKAJIMA Y, MOCHIZUK I K, et al. Densification of AlN ceramics by spark plasma sintering under 1550°C[J]. *Advanced Powder Technology*, 2016, 27(3): 860–863.

[19] SAYYADI S H A H R A K I A, RAFIAEIS M, GHADAMI S, et al. Densification and mechanical properties of spark plasma sintered Si_3N_4/ZrO_2 nano-composites[J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2019, 776: 798–806.

[20] 周身林, 刘丹敏, 张久兴, 等. 放电等离子烧结原位制备 LaB_6 多晶纳米块体阴极材料 [J]. *稀有金属材料与工程*, 2009, 38(2): 313–317.

ZHOU Shenlin, LIU Danmin, ZHANG Jiuxing, et al. Nanostructured bulk polycrystal LaB_6 cathode prepared by in-situ spark plasma sintering[J]. *Rare Metal Materials and Engineering*, 2009, 38(2): 313–317.

[21] DING L, XIANG D P, PAN Y L, et al. Mechanical properties and microstructural evolution of Mo–Co–co-strengthened W–Ni–Fe alloys by spark plasma sintering[J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2017, 712: 593–598.

[22] 谢明, 王松, 张吉明, 等. 放电等离子烧结温度对 W-30Re 合金组织性能的影响 [J]. *稀有金属材料与工程*, 2012, 41(12): 2195–2198.

XIE Ming, WANG Song, ZHANG Jiming, et al. Effect of sintering temperature on microstructure and properties of W-30Re heavy alloy by spark plasma sintering[J]. *Rare Metal Materials and Engineering*, 2012, 41(12): 2195–2198.

[23] 宁夏东方铝业股份有限公司, 国家钨钼特种金属材料工程技术研究中心. 一种用粉末冶金法制备高性能钨钼靶材的方法: CN201510228169.7[P]. 2015–12–23.

National Ta/Nb Special Metal Materials Engineering Technology Research Center, Ningxia Oriental Industry Co., Ltd. Method for preparing high performance bismuth target by powder metallurgy method: CN201510228169.7[P]. 2015–12–23.

[24] HU K, LI X Q, GUAN M, et al. Dynamic deformation behavior of 93W-5.6Ni-1.4Fe heavy alloy prepared by spark plasma sintering[J]. *International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*, 2016, 58: 118–132.

[25] 韩杰胜, 吴有智, 孟军虎, 等. 放电等离子烧结制备 MoNbTaW 难熔高熵合金 [J]. *稀有金属材料与工程*, 2019, 48(6): 2021–2026.

HAN Jiesheng, WU Youzhi, MENG Junhu, et al. Preparation of MoNbTaW refractory high-entropy alloys by spark plasma sintering[J]. *Rare Metal Materials and Engineering*, 2019, 48(6): 2021–2026.

[26] 林丽恒, 刁晓刚, 罗海波. 国内外异种材料钎焊的研究现状及发展趋势 [J]. *焊接技术*, 2016, 45(8): 1–5.

LIN Liheng, DIAO Xiaogang, LUO Haibo. Research status and development trend of brazing of dissimilar materials at home and abroad[J]. *Welding Technology*, 2016, 45(8): 1–5.

[27] ZHANG G D, XIAO Y D, LIU N, et al. Welding of Fe-Al intermetallic compound and steel by SPS technology[J]. *Advanced Materials Research*, 2012, 581–582(1): 582–585.

[28] LIU N, ZHANG G, CHEN Y, et al. Optimization of SPS welding parameters based on grey theory[J]. *Journal of Grey System*, 2011, 23(3): 243–250.

[29] YANG Z, HU K, HU D W, et al.

- Diffusion bonding between TZM alloy and WRe alloy by spark plasma sintering[J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2018, 764: 582–590.
- [30] 张久兴, 韩翠柳, 王正红, 等. 一种CT机X射线管用W/Mo/石墨复合阳极靶材的制造方法: CN108907630A[P]. 2018–11–30.
- ZHANG Jiuxing, HAN Cuiliu, WANG Zhengong, et al. Method for manufacturing W/Mo/graphite composite anode target for CT machine X-ray tube: CN108907630A[P]. 2018–11–30.
- [31] 汤迁, 武世文, 赵炜康, 等. SPS温度对铜/镍粉/304不锈钢接头组织与剪切强度的影响[J]. *航空制造技术*, 2017, 60(12): 38–42, 56.
- TANG Qian, WU Shiwen, ZHAO Weikang, et al. Influence of SPS temperature on microstructure and shear strength of copper/nickel powder/304 stainless steel joints[J]. *Aeronautical Manufacturing Technology*, 2017, 60(12): 38–42, 56.
- [32] 金亚琴, 潘亚飞, 张久兴. 双晶WC硬质合金的放电等离子烧结制备与性能研究[J]. *硬质合金*, 2019, 36(2): 99–108.
- JIN Yaqin, PAN Yafei, ZHANG Jiuxing, et al. Mechanical properties of WC cemented carbides with dual grain structure prepared by spark plasma sintering[J]. *Cemented Carbide*, 2019, 36(2): 99–108.
- [33] 文彦, 张钦英, 郭圣达, 等. WC-6Co硬质合金SPS烧结工艺[J]. *有色金属科学与工程*, 2017, 8(3): 74–78.
- WEN Yan, ZHANG Qinying, GUO Shengda, et al. SPS sintering process of WC-6Co cemented carbide[J]. *Nonferrous Metals Science and Engineering*, 2017, 8(3): 74–78.
- [34] HUANG B, CHEN L D, BAI S Q. Bulk ultrafine binderless WC prepared by spark plasma sintering[J]. *Scripta Materialia*, 2005, 54(3): 441–445.
- [35] WANG B X, WANG Z H, YIN Z B, et al. Effects of powder preparation and sintering temperature on consolidation of ultrafine WC-8Co tool material produced by spark plasma sintering[J]. *Ceramics International*, 2019, 45: 19737–19746.
- [36] 雷智博, 曹建光, 董丽宁, 等. 航天器热管理高导热材料应用研究[J]. *中国材料进展*, 2018, 37(12): 1039–1047.
- LEI Zhibo, CAO Jianguang, DONG Lining, et al. Study on application of high thermal conductivity materials in aerospace thermal management[J]. *Materials China*, 2018, 37(12): 1039–1047.
- [37] 刘依卓子, 郭宏, 韩媛媛, 等. 放电等离子烧结法制备高导热片状石墨/铝复合材料[J]. *稀有金属*, 2018, 42(3): 259–264.
- LIU Yizhuozi, GUO Hong, HAN Yuanyuan, et al. Preparation of high thermal-conductivity flake graphite /Al by spark plasma sintering[J]. *Chinese Journal of Rare Metals*, 2018, 42(3): 259–264.
- [38] YANG L, SUN L, BAI W W, et al. Thermal conductivity of Cu-Ti/diamond composites via spark plasma sintering[J]. *Diamond & Related Materials*, 2019, 94: 37–42.
- [39] 段国杰. 金刚石/铜高导热复合材料的制备与研究[D]. 天津: 天津大学, 2018.
- DUAN Guojie. Preparation and study of diamond/copper composite with high thermal conductivity[D]. Tianjin: Tianjin University, 2018.
- [40] 王文斌, 张久兴, 韩翠柳, 等. 一种高致密度高均匀性的CuCr合金的批量制造方法: CN107502776A[P]. 2017–12–22.
- WANG Wenbin, ZHANG Jiuxing, HAN Cuiliu, et al. Batch manufacturing method of Cu Cr alloy with high density and high uniformity: CN107502776A[P]. 2017–12–22.
- [41] TIWARI D, BASU B, BISWAS K. Simulation of thermal and electric field evolution during spark plasma sintering[J]. *Ceramics International*, 2008, 35(2): 699–708.

通讯作者: 张久兴, 教授, 博士生导师, 长期从事新型功能材料和金属纳米材料及其制备新技术研究与开发, E-mail: zjiuxing@hfut.edu.cn.

Current Situation and Development Trend of Spark Plasma Sintering

HAN Cuiliu^{1,2}, SHEN Xuefeng^{1,2}, WANG Yan^{1,2}, YANG Xinyu^{1,2},
PAN Yafei^{1,2}, ZHANG Jiuxing^{1,2}

(1. Engineering Research Center of High Performance Copper Alloy Materials and Processing,
Ministry of Education, Hefei University of Technology, Hefei 230009, China;

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

[ABSTRACT] Spark plasma sintering (SPS) is a new type of powder metallurgy technology with the advantages of low temperature, short time and high efficiency. In this paper, the sintering mechanism, process advantages and equipment development of SPS technology are introduced in detail. The latest research results of SPS in light metal, superalloy, refractory metal, cemented carbide, ceramic material and high thermal conductivity material are reviewed. The development trend and prospects of SPS technology are prospected.

Keywords: Powder metallurgy; Spark Plasma Sintering; New materials; Equipment; Near net shape forming

(责编 大漠)