

引文格式: 计天宇, 赵清亮, 郭兵, 等. 镁铝尖晶石高温环境加工性能研究 [J]. 航空制造技术, 2022, 65(5): 87-92.

Ji Tianyu, ZHAO Qingliang, GUO Bing, et al. Processing property of magnesium aluminum spinel in high temperature[J]. Aeronautical Manufacturing Technology, 2022, 65(5): 87-92.

镁铝尖晶石高温环境加工性能研究

计天宇, 赵清亮, 郭兵, 石卓奇, 邹文鹏

(哈尔滨工业大学机电工程学院, 哈尔滨 150001)

[摘要] 镁铝尖晶石是一种硬脆透明陶瓷材料,为解决其难加工问题,超精密激光辅助车削加工技术被应用于精密加工中。因此,采用高温维氏压痕试验以及高温刻划试验,对镁铝尖晶石高温环境下加工性能的研究具有重要意义。当加工环境温度从 23℃ 上升至 283℃ 时,维氏显微硬度值从 15.85GPa 降低至 7.66GPa,脆塑转变临界深度平均值从 0.51μm 增加至 0.80μm。探究了高温环境下材料脆性域及塑性域的材料去除方式。通过对划痕表面形貌的观测,确定其亚表层裂纹深度随温度上升而减小,为超精密激光辅助车削加工技术提供了一定的技术基础。

关键词: 尖晶石; 高温; 维氏硬度; 脆塑转变; 破坏机制

Processing Property of Magnesium Aluminum Spinel in High Temperature

Ji Tianyu, ZHAO Qingliang, GUO Bing, SHI Zhuoqi, ZOU Wenpeng

(School of Mechatronics Engineers, Harbin Institute of Technology, Harbin 150001, China)

[ABSTRACT] Magnesium aluminum spinel is a hard, brittle and transparent ceramic material. In order to solve its difficult machining problem, ultra-precision laser-assisted turning technology is used in precision machining. Therefore, Vickers indentation experiments and scratch experiments at high temperature is of great significance for the study of the processing property of magnesium aluminum spinel at high temperature. When the processing environment temperature increased from 23℃ to 283℃, the Vickers microhardness decreased from 15.85GPa to 7.66GPa, and ductile-to-brittle transition depth increased from 0.51μm to 0.80μm. The method of material removal in the brittle mode and plastic mode at high temperature was explored. By observing the surface morphology of the scratches, the depth of the subsurface cracks decreased with increasing temperature, which provided a certain technical basis for ultra-precision laser-assisted turning technology.

Keywords: Spinel; High temperature; Vickers hardness; Ductile-to-brittle transition; Damage mechanism

DOI: 10.16080/j.issn1671-833x.2022.05.087

镁铝尖晶石硬度高、强度大,具有良好的耐高温、耐腐蚀、耐磨损和抗冲击等特性,且在从紫外、可见光到中红外及毫米波段均具有良好的透光率^[1],使其在透明陶瓷中脱颖而出,在红外光学元件、耐高温的无线电装备、透明护甲、天线窗口和保形整流罩等领域体现出较大的应用潜力^[2]。但是镁铝尖晶石具有极高的加工难度,限制了其广泛使用的可能性。镁铝尖晶石制备起步较晚,制备方法未标准化,造成样品材料性质差异较大,加工参数不易确定。在加工过程中,镁铝尖晶

石较高的硬度容易造成刀具磨损,较高的脆性使其很容易造成加工损伤^[3],因此难以实现高表面质量与高效率加工要求。

目前,针对此类高硬脆性材料的加工方式主要是磨削加工,但是磨削加工往往会造成亚表层损伤,后续需要通过长时间的研磨抛光来去除亚表层损伤。在这一过程中,研磨会带来磨痕,从而给表面质量带来较大的影响,并且抛光工艺对于具有复杂结构的零件,尤其是具有较大深宽比的腔体零件来说,加工难度较大。而使

用切削工艺对镁铝尖晶石进行精密加工时,镁铝尖晶石的脆塑转变临界切削深度低至亚微米级甚至纳米级^[4-5]的特性,给刀具锋利度及机床精度带来了极大地挑战。即使使用单晶金刚石刀具进行切削加工,镁铝尖晶石材料的高硬脆性也会对刀具造成严重的磨损,这种磨损严重影响了加工表面质量及加工精度。为解决这一问题并提高加工效率,超精密激光辅助车削技术作为一种高效率、高精度、高表面质量的加工硬脆陶瓷材料的加工方法^[6],被应用于硬脆陶瓷的精密加工。激光束具有能量密度高、相干性好等特点,能够将激光光能集中在极小区域的光斑中,可以实现局部区域的瞬时加热,从而改变材料表层的机械加工特性^[6]。因此,激光辅助加工镁铝尖晶石具有较大的研究价值。

镁铝尖晶石在高温环境下自身力学性能发生改变,这使激光辅助加工尖晶石具备了一定的理论基础。Kirby^[7]和 Veyssièrè^[8]等研究表明 $MgO \cdot 1.1Al_2O_3$ 镁铝尖晶石晶体在低于 800℃ 时, {110}<110> 滑移系临界剪切应力最低,滑移系最易被激活从而产生塑性形变。Askarpour 等^[9]采用布里渊散射法对 200~1400℃ 范围内镁铝尖晶石弹性模量随温度变化趋势进行了测量。尽管有学者对尖晶石高温材料特性进行了基础研究,但对于镁铝尖晶石高温环境下材料去除机制的研究仍存在不足,有待完善。

基于上述情况,本文主要针对镁铝尖晶石材料在高温环境下的表面力学性能以及材料去除机制展开研究。通过高温环境下的压痕试验及刻划试验,研究镁铝尖晶石的硬度、断裂韧性、脆塑转变深度等加工性能参数随温度变化趋势。通过高温刻划表面形貌分析镁铝尖晶石材料在高温环境中的材料去除机理以及损伤机理。

1 试验及方法

在陶瓷材料力学性能的测试过程中,压痕试验能够有效地对材料的表面硬度、断裂韧性以及裂纹形成与扩展机理进行表征。硬度定义为在压痕试验中施加压力与压痕投影面积的比值,能够有效表征固体材料的力学性能^[10]。而刻划试验能够有效反映材料的去除机理、脆塑转变临界刻划深度以及裂纹等损伤特性。

本试验中镁铝尖晶石材料通过热压烧结加热等静压法制备,烧结压力约为 100MPa,烧结温度大于 1000℃。烧结过程中未添加 LiF 烧结剂,因此尖晶石样品杂质较少,其晶界处相对纯净,不易产生沿晶断裂及晶粒剥落现象,提高了样品的整体强度,尖晶石材料性质参数如表 1 所示^[11]。

本试验搭建了高温力学性能测试平台,主要包括三

轴联动精密磨床、恒温加热平台、测力仪传感器、维氏压头与镁铝尖晶石试件夹具,测试平台模型图如图 1 所示。精密磨床是杭州机床厂的三轴数控超精密坐标磨床 MUGK7120X5,主轴系统采用动静压轴承,最大转速为 4000r/min,径向跳动度小于 0.5μm, X 轴、Y 轴和 Z 轴最大行程分别为 500mm、250mm 和 200mm,直线定位精度是 0.2μm,其中 Y 轴可实现 0.1μm 的微量进给。恒温加热平台采用易拓公司 ET-100FTG 型号恒温加热平台,可以实现 20~600℃ 的温度控制。测力仪采用 Kistler 9256C2 力传感器,该测力仪测量范围为 0~250N。

在高温压痕试验及刻划试验中,压头采用维氏压头,型号为 HV-6。压头几何形状是顶部为对面夹角 136° 的正四棱锥,压头材料采用高度抛光的金刚石。

表 1 镁铝尖晶石物理性能^[11]

Table 1 Physical properties of magnesium aluminum spinel^[11]

性能	数值
熔点 /℃	2105~2135
杨氏模量 /GPa	260~310
剪切模量 /GPa	192
泊松比	0.26
维氏强度 /GPa	1.4~2.0
断裂强度 /MPa	190~400
折射率	1.70@1080nm
1080nm 波长理论透射率 /%	87
热导率 / (W · m ⁻¹ · K ⁻¹)	14.7

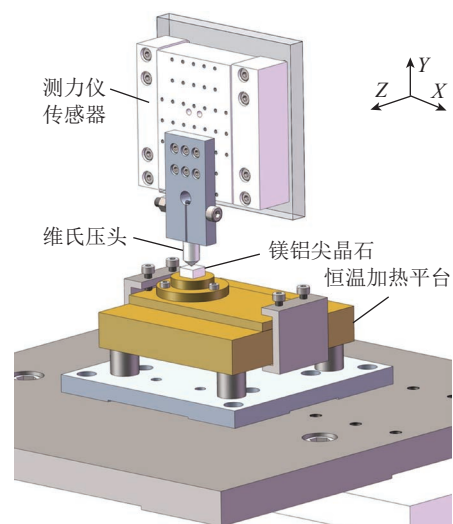


图 1 高温压痕试验及刻划试验平台模型

Fig.1 Schematic of high temperature indentation test and scratching test

镁铝尖晶石块状样件尺寸为 $10\text{mm} \times 10\text{mm} \times 5\text{mm}$ 的方片,样件表面通过研磨抛光,保证表面粗糙度低于 10nm ,且无明显划痕损伤,满足小负荷维氏硬度测试的要求。

通过高温压痕试验可以计算得到材料在不同温度下的显微维氏硬度值。材料显微维氏硬度 HV 计算公式为

$$\text{HV} = \frac{2P \sin\left(\frac{\theta}{2}\right)}{d^2} = 1.854 \frac{P}{d^2} \quad (1)$$

式中, HV 为维氏硬度, N/mm^2 ; P 为试验载荷, N; θ 为四棱锥面夹角, ($^\circ$), 本试验中取 136° ; d 为压痕对角线平均长度, mm。

根据不同温度下压痕造成的径向裂纹长度以及材料显微维氏硬度值可以求得断裂韧性,计算公式为

$$K_{\text{IC}} \propto \left(\frac{E}{H}\right)^{\frac{1}{2}} \frac{P}{C^{\frac{3}{2}}} \quad (2)$$

式中, K_{IC} 为断裂韧性, $\text{MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$; E 为杨氏模量, GPa; H 为维氏硬度, GPa; P 为试验载荷, N; C 为压痕裂痕扩展长度, μm 。

Bifano 等^[12] 根据 Griffith 断裂纹拓展准则,提出了静态条件下的脆塑转变临界深度计算关系式

$$d_c \propto \left(\frac{E}{H}\right) \left(\frac{K_{\text{IC}}}{H}\right)^2 \quad (3)$$

式中, d_c 为脆塑转变临界深度, mm; E 为杨氏模量, GPa; H 为维氏硬度, GPa; K_{IC} 为断裂韧性, $\text{MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ 。

基于上述公式,高温压痕试验可以对脆塑转变临界深度进行预估,从而合理选择高温刻划试验参数。

本试验中测试平台主要依靠三轴联动精密磨床控制压头运动轨迹完成。因此不同于标准维氏硬度计控制载荷的方式,本试验采用了控制位移的方式。根据 ASTM E384—11^{e1} 材料的努式和维氏硬度标准试验方法^[13],对于小力维氏压痕试验以及显微维氏压痕试验,其加载速率应当低于 $70\mu\text{m}/\text{s}$,并且加载过程时间不应超过 10s,保压时间应根据试样选取,范围为 10~15s。因此本压痕试验中在加载阶段以 $0.5\mu\text{m}/\text{s}$ 的加载速率使维氏压头沿 Y 轴负方向运动,而后在压入深度 $2\mu\text{m}$ 处保压 10s,随即以 $0.5\mu\text{m}/\text{s}$ 的卸载速率沿 Y 轴正方向卸载。

压痕试验进行 4 组试验,分别设置测试温度为 23°C 、 91°C 、 187°C 以及 283°C ,每次试验重复 4 次。刻划试验采用刻划速率为 $400\text{mm}/\text{min}$,在 XY 平面进行直线进给。在刻划过程中,控制刻划深度变化率为 $3\mu\text{m}/\text{min}$,最大刻划深度为 $5\mu\text{m}$ 。刻划试验进行 4 组试验,测试过

程中试件表面温度分别控制在 23°C 、 91°C 、 187°C 以及 283°C ,每组试验重复 3 次。压痕试验及刻划试验材料为 MgAl_2O_4 ,制备方式为热压烧结-热等静压,具体试验参数如表 2 所示。

采用日立 S4300 扫描电子显微镜及 OLS3000 激光共聚焦显微镜对压痕形貌及刻划表面形貌进行观测,并获取其表面三维坐标数据。

2 高温环境压痕试验

高温环境下压痕形貌的测试数据如表 3 所示,在测试温度为 23°C 、 91°C 、 187°C 、 283°C 时,镁铝尖晶石的维氏显微硬度平均值分别为 15.85GPa 、 13.74GPa 、 13.40GPa 和 7.66GPa ,其维氏硬度平均值随温度上升总体呈下降趋势。根据 Souza 等^[14] 的研究表明,测试温度在 300°C 以下时,镁铝尖晶石的弹性模量随着温度上升变化幅度不大。根据式(2)和(3)计算公式,材料脆塑性转变深度随温度上升而增大。从材料去除角度上考虑,镁铝尖晶石材料塑性域切削深度随温度上升而增大。

在不同温度下维氏压痕形貌如图 2 所示。压痕产生了径向裂纹,特别是在对角线延长线方向。压痕压力越大时径向裂纹长度越长,并逐渐产生横向裂纹,即图 2 中贝壳状的反光区域。压痕载荷越大,横向裂纹延展区域越大。随着温度的上升,横向裂纹的延展区域在亚表层扩散区域相对变大。

在维氏压痕试验过程中对正压力值进行了实时测量,对不同温度下的压力加载、保压以及卸载过程中压力的变化值进行记录,如表 3 所示。在加载过程中,压力随着时间基本呈线性上升趋势。随着测试温度的上升,压力上升斜率降低,同时当达到理论压深 $2\mu\text{m}$ 时,峰值压力随温度上升而下降。保压阶段,由于保证压入

表 2 试验参数

Table 2 Experimental parameters

试验	参数	值
压痕试验	测试温度 / $^\circ\text{C}$	23、91、187、283
	加载速率 / ($\mu\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$)	0.5
	保压时间 /s	10
	卸载速率 / ($\mu\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$)	0.5
	理论压深 / μm	2
刻划试验	测试温度 / $^\circ\text{C}$	23、91、187、283
	刻划速率 / ($\text{mm} \cdot \text{min}^{-1}$)	400
	刻划深度变化率 / ($\mu\text{m} \cdot \text{mm}^{-1}$)	3
	最大刻划深度 / μm	5

表3 高温维氏压痕试验测试数据汇总

Table 3 Summary of Vickers indentation test data at high temperatures

温度 /℃	压力 /N	压痕对角线长度 / μm	维氏硬度值 /GPa
23	1.17	11.51	16.38
	2.40	18.25	13.36
	1.29	12.34	15.70
	1.04	10.36	17.96
91	1.76	15.68	13.27
	1.68	14.87	14.10
	1.35	13.05	14.70
	2.85	20.25	12.89
187	1.75	15.61	13.32
	1.14	12.02	14.64
	0.76	10.50	12.80
	0.52	8.67	12.84
283	3.23	24.53	9.95
	1.25	16.86	8.16
	1.54	21.62	6.11
	1.62	21.62	6.43

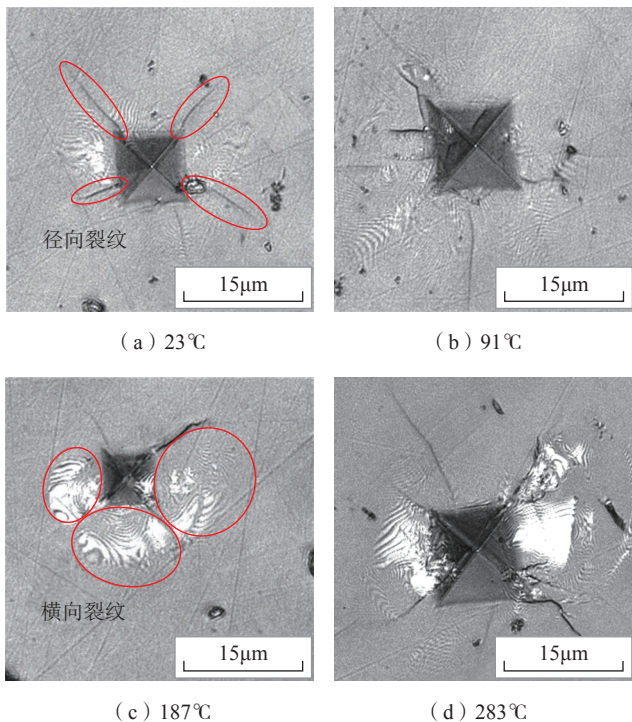


图2 不同温度下维氏压痕形貌

Fig.2 Vickers indentation test data at different temperatures

深度不变,在整个阶段中,压力总体呈缓慢下降趋势,主要是由于保压阶段,压痕中心材料存在弹性变形,随着时间的推移,材料塑性变形造成的回弹力逐渐降低。在卸载阶段由于控制位移进行卸载,压力迅速得到释放,压力曲线呈迅速下降趋势。

3 高温环境刻划试验

镁铝尖晶石材料脆塑转变临界刻划深度随着温度变化的曲线如图3所示。在23~283℃之间,镁铝尖晶石脆塑转变深度随着温度上升而上升。判别镁铝尖晶石由塑性去除方式转变为脆性去除方式的方式为刻划沟槽两侧连续出现横向裂纹或者径向裂纹。在测试温度为23℃、91℃、187℃和283℃时,镁铝尖晶石材料的脆塑转变深度平均值分别为0.51 μm 、0.63 μm 、0.74 μm 和0.80 μm 。尖晶石材料的脆塑转变深度变化趋势与根据式(3)计算预测的变化趋势一致。

不同温度下刻划试验试件表面划痕脆塑转变区域形貌如图4所示。测试温度在23~283℃之间,材料从塑性去除状态开始转变为脆性去除状态阶段,在沟槽的两侧出现横向裂纹,从裂纹的分布情况推测材料在产生中位裂纹后,向两侧延展,优先出现横向裂纹并逐渐向表层延展。当刻划深度进一步加深时,材料在沟槽两侧同时出现径向裂纹及横向裂纹,并且裂纹出现的频率逐渐增高。当刻划轨迹位于材料晶界处时,在划痕两侧呈现片状的剥落趋势,引起晶粒沿晶界处断裂^[15],材料易出现整个晶粒的剥落现象。随着温度上升,在脆塑转变阶段,横向裂纹产生时的刻划深度逐渐增大。同时,在材料去除过程中,通过激光共聚焦显微镜可以观测到材料亚表层裂纹深度降低。亚表层裂纹的产生方向主要沿材料的去除方向向两侧呈扇形区域扩展。

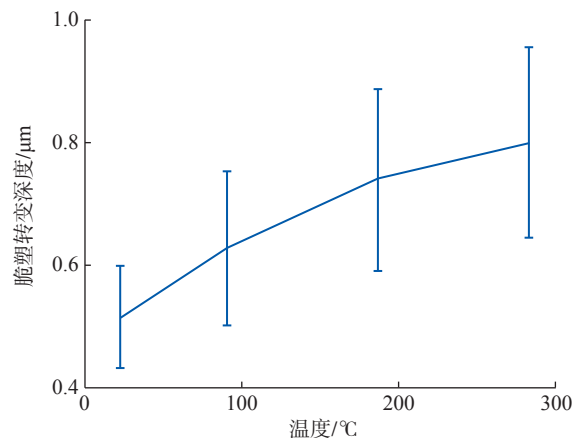


图3 镁铝尖晶石脆塑转变深度随温度变化

Fig.3 Variations of ductile-to-brittle transition depth of magnesium aluminum spinel varied with temperature

通过对刻划沟槽表面脆塑转变区域及裂纹损伤形貌观测以及分析发现,材料在塑性去除阶段,划痕沟槽表面基本呈光滑状态,无显著裂纹,同时塑性去除材料在沟槽的两侧呈现明显的堆积现象。随着刻划深度的增大,亚表层裂纹开始产生,并随着刻划深度增大逐渐延展至表层,从而在表面引起表面崩碎现象。在脆塑转变过程中,材料表面脆性材料去除模式如图5所示。在开始阶段,材料在晶界处出现倾斜的径向裂纹,继而引起整个晶粒从材料表面的剥落。由于表面各个晶粒取向不同,其临界应力值也存在差异,导致材料在脆塑转变区域中会断续地产生脆性崩碎现象。

综上所述,在 23~283℃ 的高温环境下,镁铝尖晶石

塑性域及脆性域材料去除形式基本一致。随着刻划环境温度的上升,径向裂纹及横向裂纹起始刻划深度增大,有利于材料塑性域加工深度增大。

4 结论

(1) 镁铝尖晶石材料的硬度随着温度升高而下降。测试温度从 23℃ 上升至 283℃ 时,维氏显微硬度从 15.85GPa 降低至 7.66GPa。

(2) 镁铝尖晶石材料的脆塑转变深度随着温度上升而上升,测试温度从 23℃ 上升至 283℃ 时,脆塑转变深度平均值从 0.51μm 增加至 0.80μm。因此在后续激光辅助车削加工中合理控制激光烧蚀区域温度

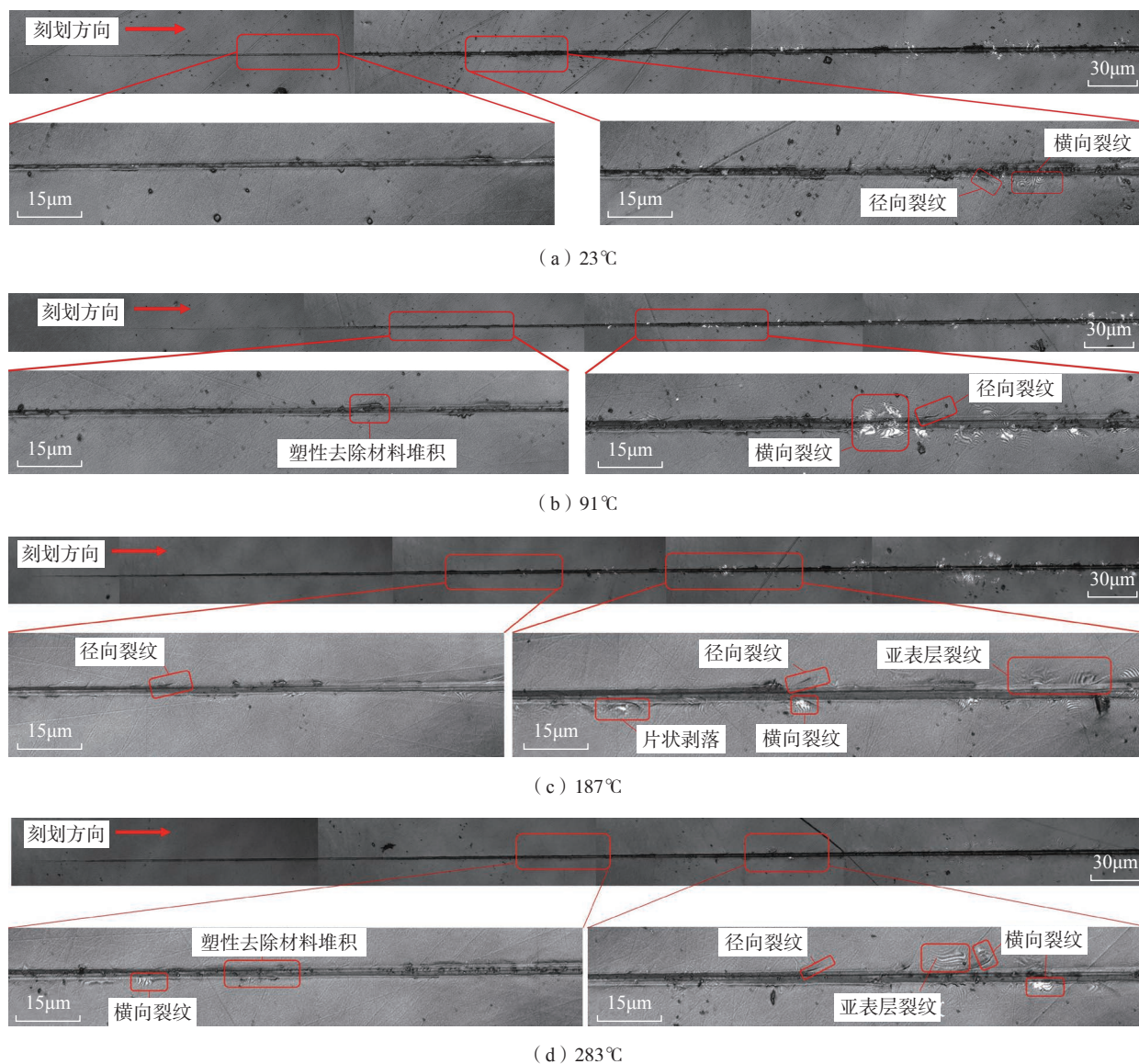


图4 不同温度下变切深试验表面形貌

Fig.4 Surface morphology of variable cutting depth experiment at different temperatures

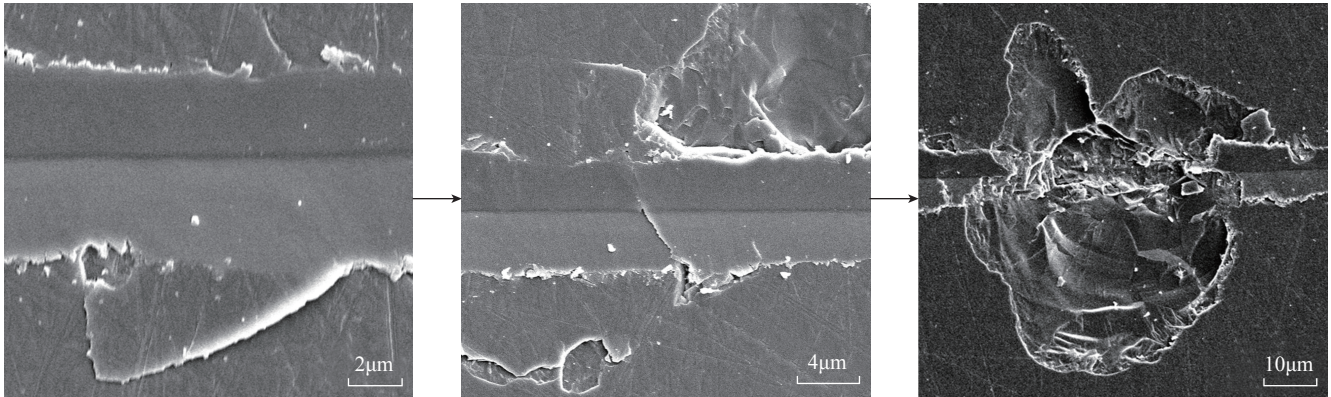


图5 283°C刻划脆塑转变区域图
Fig.5 Ductile-to-brittle transition zone of scratch at 283°C

能够有效增加尖晶石材料塑性域加工临界切削厚度，提高加工效率。

(3) 当刻划温度上升，径向裂纹开始出现刻划深度增大，同时引起的横向裂纹更易在表层浮现，从而引起晶粒剥落现象，有利于亚表层损伤深度的降低。

参考文献

- [1] RUBAT DU MERAC M, KLEEBE H J, MÜLLER M M, et al. Fifty years of research and development coming to fruition; Unraveling the complex interactions during processing of transparent magnesium aluminate ($MgAl_2O_4$) spinel[J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 2013, 96(11): 3341–3365.
- [2] WANG S F, ZHANG J, LUO D W, et al. Transparent ceramics: Processing, materials and applications[J]. *Progress in Solid State Chemistry*, 2013, 41(1–2): 20–54.
- [3] SHAHINIAN H, NAVARE J, ZAYTSEV D, et al. Microlaser assisted diamond turning of precision silicon optics[J]. *Optical Engineering*, 2019, 58(9): 1–8.
- [4] SHI Z Q, GUO B, ZHAO Q L, et al. A study on micro-machining spinel by applying ordinary cutting and ultra-sonic elliptical vibration cutting[J]. *The International Journal of Advanced Manufacturing Technology*, 2019, 104(5–8): 1677–1692.
- [5] SHI Z Q, ZHAO Q L, WANG H, et al. On the effect of grain structure in micro-cutting of polycrystalline aluminate magnesium spinel (PAMS) crystals[J]. *International Journal of Mechanical Sciences*, 2019, 160: 372–385.
- [6] FORTUNATO A, GUERRINI G, MELKOTE S N, et al. A laser assisted hybrid process chain for high removal rate machining of sintered silicon nitride[J]. *CIRP Annals*, 2015, 64(1): 189–192.
- [7] KIRBY S H, VEYSSIÈRE P. Plastic deformation of MgO (Al_2O_3) \cdot 1 spinel at 0.28TM preliminary results[J]. *Philosophical Magazine A*, 1980, 41(1): 129–136.
- [8] VEYSSIÈRE P, KIRBY S H, RABIER J. Plastic deformation of MgO : n Al_2O_3 spinels at temperatures below 1000°C (0.5TM)[J]. *Le Journal De Physique Colloques*, 1980, 41(C6): 175–178.
- [9] ASKARPOUR V, MANGHNANI M H, FASSBENDER S, et al. Elasticity of single-crystal $MgAl_2O_4$ spinel up to 1273K by Brillouin spectroscopy[J]. *Physics and Chemistry of Minerals*, 1993, 19(8): 511–519.
- [10] 余怀之. 红外光学材料[M]. 北京: 国防工业出版社, 2007. YU Huaizhi. *Infrared optical materials*[M]. Beijing: National Defense Industry Press, 2007.
- [11] 韩丹. 镁铝尖晶石透明陶瓷的制备与性能研究[D]. 北京: 中国科学院大学, 2018. HAN Dan. *Preparation and properties of transparent spinel ceramics*[D]. Beijing: University of Chinese Academy of Sciences, 2018.
- [12] BIFANO T G, DOW T A, SCATTERGOOD R O. Ductile-regime grinding: A new technology for machining brittle materials[J]. *Journal of Engineering for Industry*, 1991, 113(2): 184–189.
- [13] American Society of Testing Materials. ASTM E384—2011^{e1} standard test method for Knoop and Vickers hardness of materials[S]. American Society of Testing Materials, 2011.
- [14] SOUZA T M, LUZ A P, BRITO M A M, et al. In situ elastic modulus evaluation of Al_2O_3 - MgO refractory castables[J]. *Ceramics International*, 2014, 40(1): 1699–1707.
- [15] SHI Z Q, WANG H, ZHAO Q L, et al. Damage mechanisms of polycrystalline aluminate magnesium spinel (PAMS) under different loading conditions of indentation and micro-cutting tests[J]. *Ceramics International*, 2020, 46(6): 7235–7252.

通讯作者: 计天宇, 工程师, 硕士, 研究方向为镁铝尖晶石激光辅助车削加工技术。

(责编 阳光)