

复合挤压对 Mg-4Sn-2Al-1Zn 合金组织及力学性能的影响

谭昊天¹, 石凤健¹, 刘 昂², 周 虎¹, 郭宇航¹, 王雷刚³, 朴南瑛¹, 张 伟¹

(1. 江苏科技大学, 江苏 镇江 212003)

(2. 江苏立万精密制管有限公司, 江苏 张家港 215632)

(3. 江苏大学, 江苏 镇江 212013)

摘 要: 针对镁合金室温强度低、塑性差的问题, 采用复合挤压工艺在 250 °C 对 Mg-4Sn-2Al-1Zn 合金进行了挤压, 研究了复合挤压对合金的组织演变、组织及力学性能的影响。结果表明, 复合挤压能将 Mg-4Sn-2Al-1Zn 合金的晶粒尺寸由 45.2 μm 细化至 3.1 μm, 组织均匀。挤压后的合金硬度提升, 均匀性改善, 屈服强度、抗拉强度和断后伸长率分别为 204 MPa、287 MPa 和 21.0%, 较匀质态分别提高了 140.0%、91.3% 和 156.1%。动态再结晶是晶粒细化的主要机制, 晶粒细化以及挤压后基面织构增强、织构向挤压方向均匀扩展使合金强度、塑性提高, 挤压过程中 Mg₂Sn 相破碎进一步提高了合金的力学性能。上述研究表明复合挤压是一种能有效提高镁合金综合性能的工艺。

关键词: 复合挤压; 镁合金; 晶粒细化; 织构

中图分类号: TG146.22

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2023)06-2176-06

由于密度低、比强度高、铸造性能好、生物相容性好等优点, 镁合金在汽车、航空航天等领域具有广泛的应用前景^[1-4]。作为密排六方晶体结构的镁合金常温下能够开动的滑移系有限, 使其机械性能较差, 限制了镁合金的工业化应用^[5-6]。塑性变形可以通过细化镁合金组织从而有效提高其性能^[7-8]。经过大塑性变形的镁合金综合力学性能优异, 在工业化应用的潜力较大^[9]。近年来, 越来越多的学者致力于研究采用大塑性变形技术加工超细晶材料。在诸多大塑性变形技术中, 等通道转角挤压 (equal-channel angular pressing, ECAP) 是目前研究最多的制备超细晶 (ultrafine grains, UFG) 金属材料的方法之一^[10]。Martynenko 等人^[11]研究了 WE43 镁合金经过 12 道次 ECAP 后的显微组织和力学性能, 结果表明 ECAP 使得 WE43 合金平均晶粒尺寸细化至 0.7~1 μm, 同时织构由基面织构向棱柱形织构转变, 强度和塑性都得到提高。Huang 等人^[12]采用多道次 ECAP 制备出抗拉强度为 372 MPa, 延伸率为 8% 的 Mg-Al-Ca-Mn 合金, 认为强度提升是由于细小的动态再结晶晶粒和析出物。Yuan 等人^[13]将热处理和 ECAP 应用于 ZK60 镁合金, 细晶强化及沉淀硬化使得合金具有优异的综合力学性能。Lu 等人^[14]通过固溶处理和多次 ECAP 使得 Mg-1.8Gd-

1Zn-0.1Zr 合金综合力学性能显著改善, 16 次 ECAP 后合金屈服强度为 334.4 MPa, 断后延伸率为 22.5%, 并且有效地提高了合金的轧制性能。

然而, 等通道转角挤压由于加工效率低、单道次晶粒细化有限等不足, 难以进行大规模应用。研究表明, 结合正挤压和 2 道次等通道转角挤压的复合挤压技术 (如图 1a 所示), 具有应变量大、晶粒细化效果好等优势^[15], 被广泛研究。Orlov 等人^[16]采用复合挤压工艺有效地提高了 ZK60 镁合金耐蚀性, 这归因于组织细化及溶质原子的重新分布。Hu 等人^[17]研究发现, 具有 2 道次 ECAP 的复合挤压工艺, 在细化合金晶粒尺寸的同时能够弱化基面织构, 得到综合力学性能优异的镁合金。Mg-Al-Zn 系合金应用广泛, 为进一步提高其性能, Sn 因价格低廉作为合金化元素强化镁合金的研究受到越来越多的重视^[18-20], 本研究以自行开发的 Mg-4Sn-2Al-1Zn (TAZ421, wt%) 为对象, 研究复合挤压对其组织及性能的影响。

1 实 验

试验用 Mg-4Sn-2Al-1Zn (TAZ421) 合金采用 SG2-5-12 坩埚电阻炉进行熔炼, 原材料为高纯 Mg (99.99%)、纯 Sn (99.95%)、纯 Al (99.95%) 和纯

收稿日期: 2022-06-15

基金项目: 国家自然科学基金 (51775249); 江苏省研究生科研与实践创新计划 (SJCX21_1766、KYCX22_3798); 江苏科技大学大学生创新创业训练计划 (BKCX20210215)

作者简介: 谭昊天, 男, 1997 年生, 硕士生, 江苏科技大学材料科学与工程学院, 江苏 镇江 212003, E-mail: tanhaotian0000@163.com

Zn (99.90%)。熔炼前先对电阻炉进行预热，预热温度及时间分别为 720 °C 和 30 min。预热完毕后将原材料置于不锈钢坩埚后放入电阻炉中，待原材料全部熔化后在 720 °C 下保温 20 min，随后对其进行 2 min 机械搅拌确保组织更为均匀。最后将液态合金倒入已经预热至 150 °C 的模具中自然冷却，得到一个尺寸为 $\Phi 90 \text{ mm} \times 220 \text{ mm}$ 的铸锭。整个试验过程在 SF_6 和 $\text{CO}_2(2:98)$ 保护气氛下进行。铸态合金经 400 °C、24 h 均匀化处理得到匀质态合金，然后将匀质态合金线切割成直径 20 mm、长度 40 mm 的样品。复合挤压模具和样品均在 250 °C 保温 10 min，随后在型号为 YA32-315F 的液压机上复合挤压试验，凸模挤压速度为 2 mm/s，采用高温润滑油和石墨的混合物进行润滑。挤压模具如图 1b 所示，挤压凹模通道正挤压部分锥角 $\alpha=90^\circ$ ，入口通道直径 $D_0=20 \text{ mm}$ ，出口通道直径 $D_1=10 \text{ mm}$ ，等径角挤压部分通道夹角 $\Phi=105^\circ$ ，通道内侧圆角 $r=1 \text{ mm}$ ，外侧圆角 $R=3 \text{ mm}$ 。

复合挤压后得到的试样总长度约为 110 mm，在距

离挤出端尾部 20 mm 处沿挤压棒料轴线和分模面切割试样，使用含 3 g 苦味酸、10 mL 乙酸、10 mL 水、50 mL 乙醇混合溶液腐蚀的试样，用于显微组织观察，并用截线法测量晶粒尺寸。采用日本 KEYENCE VHX-900 超景深三维显微分析系统对试样进行金相观察，采用德国 ZEISS Merlin Compact 扫描电子显微镜进行 SEM 观察。X 射线衍射在日本岛津 XRD-6000 衍射仪上进行分析，测试方向为垂直于挤压方向即横截面，使用 Cu 靶材，扫描角度 2θ 为 $20^\circ \sim 90^\circ$ ；步长为 $5^\circ/\text{min}$ 。制备出 50 μm 厚、直径 3 mm 的 TEM 样品，在 GATAN691 离子减薄仪中进行减薄，采用日本电子 JEOL JEM-2100F 透射电子显微镜分析。宏观结构分析采用 PANalytical 衍射分析仪对镁合金的{0002}极图进行测试，测试后将数据导入 Jtex 软件中分析。硬度测试在 KB-30S-FA 全自动维氏硬度计上进行，测试位置为纵截面，加载力为 1 N，加载保持时间为 20 s。拉伸试样沿坯料挤压方向取样，标距部分 $d_0=5 \text{ mm}$ ，原始标距 $L_0=25 \text{ mm}$ ，在 SANS CMT 5105 万能试验机上进行，拉伸速度为 1 mm/min。

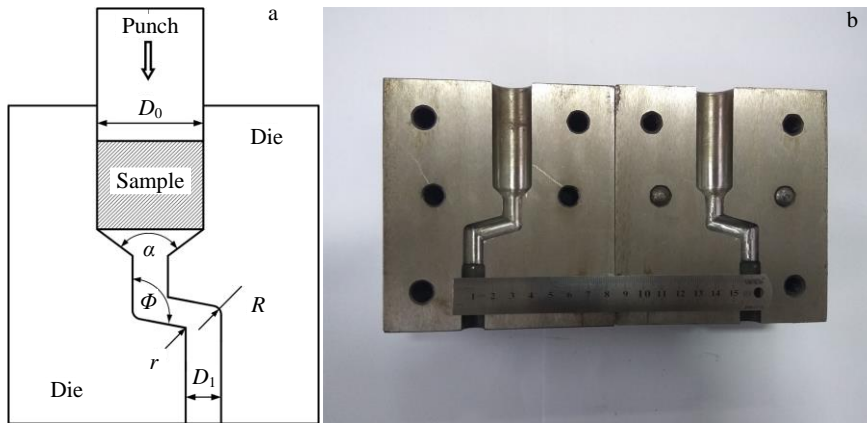


图 1 复合挤压工艺示意图及模具实物图

Fig.1 Schematic diagram of compound extrusion process (a) and photograph of compound extrusion mold (b)

2 结果与分析

2.1 显微组织分析

图 2 为匀质态及挤压态 TAZ421 合金的 XRD 图谱。可以看出，匀质态及挤压态 TAZ421 的相均由 $\alpha\text{-Mg}$ 基体与 Mg_2Sn 组成^[21]， $\alpha\text{-Mg}$ 基体衍射峰差别不大，合金中的 Mg_2Sn 相衍射峰在经过挤压后稍有增强，这表明在挤压过程中重新生成了 Mg_2Sn 相。由于 TAZ421 合金中 Al、Zn 含量较少，没有发现 Mg-Zn、Mg-Al 等相。

图 3 为匀质态及挤压态 TAZ421 镁合金的显微组织。从图 3a 可以看出，匀质态 TAZ421 合金的微观组织由 $\alpha\text{-Mg}$ 基体和沿晶界分布的带状、球状 Mg_2Sn 相组成，

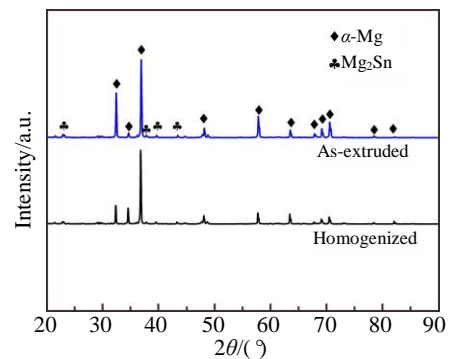


图 2 匀质态及挤压态 TAZ421 合金 XRD 图谱

Fig.2 XRD patterns of homogenized and extruded TAZ421 alloy

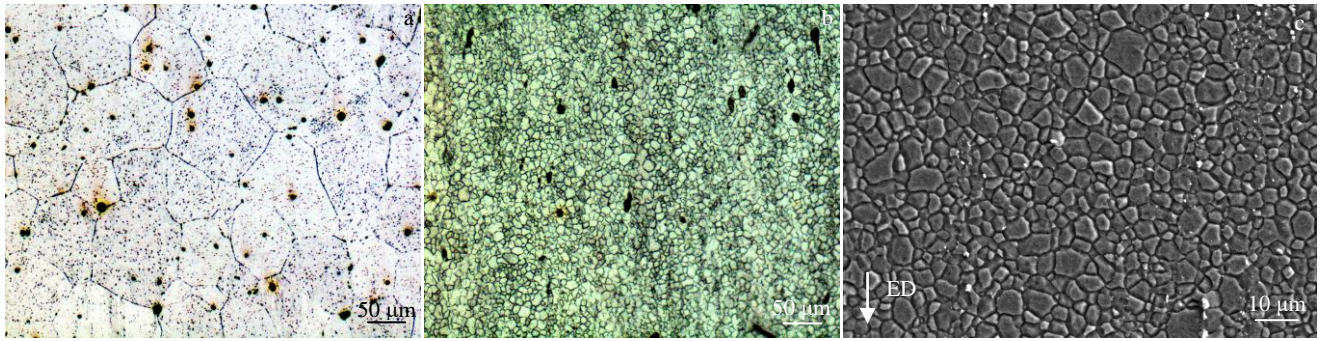


图 3 匀质态及挤压态 TAZ421 镁合金的显微组织

Fig.3 OM microstructures of homogeneous (a) and as-extruded (b) TAZ421 magnesium alloy; SEM microstructures of as-extruded TAZ421 magnesium alloy (c)

平均晶粒尺寸约为 45.2 μm。复合挤压后，合金呈现典型的动态再结晶组织，晶粒明显细化，如图 3b 所示。图 3c 为挤压态合金 SEM 组织。可以看出，等轴的再结晶晶粒细小，平均晶粒尺寸约为 3.1 μm，亮白色 Mg₂Sn 相受复合挤压剪切破碎作用，沿挤压方向分布，晶粒细小。

图 4 为 TAZ421 合金的 TEM 照片。由图 4a 可以看出匀质态合金中的动态析出相尺寸约为 2 μm。经复合挤压后，合金受到大塑性变形，许多析出相发生破碎并分布在晶界附近，如图 4b 所示。由图 4c 的 SAED 花样进一步表明这些细小的球状第二相为面心立方结构的 Mg₂Sn，大小约为 100 nm。Mg₂Sn 相能够有效阻碍位错运动和晶界滑动，这些动态析出相还能够抑制动态再结晶晶核的生长，进而增强合金的沉淀强化效应^[22-23]。另外，在大塑性变形的作用下，挤压态合金内部残留大量位错，这些高密度的位错相互缠结形成亚晶，亚晶通过不断吸收位错变成具有大角度晶界的晶粒^[24-25]，而高密度的位错可以缠结形成位错网格和位错胞结构，促进亚晶的形成和动态再结晶晶粒的细化^[26]。

2.2 组织分析

图 5 为 TAZ421 合金{0002}宏观织构。从图 5a 中可以看出，匀质态合金{0002}极图最大极密度分布于极图两侧，存在多个极密度区域，织构分散。合金经过挤压

后，宏观织构呈现出常见的基面织构，晶粒{0002}面平行于挤压方向，最大极密度位于 TD 方向，值为 5.43，明显高于匀质态合金基面织构强度，同时织构向挤压方向沿伸。一般来说，热挤压过程中的动态再结晶行为能够在细化晶粒的同时促进织构弱化。然而，本研究中的 TAZ421 合金经过挤压后织构增强，这是因为合金中的取向强于再结晶晶粒的变形晶粒增加，合金基面织构得以加强。另一方面，合金基面织构的增强还与挤压时的应变条件有关，Chen 等人^[27]发现，轧制过程使滑移面向轧面旋转的应变条件适用于挤压工艺。在复合挤压过程中，合金组织发生连续动态再结晶，原始晶粒和再结晶晶粒的基面朝着平行挤压方向转动，使得挤压态合金织构有所增强，而基面织构向挤压方向均匀扩展是由于随机取向的再结晶晶粒产生。

2.3 显微硬度分析

图 6 为匀质态及挤压态 TAZ421 镁合金的纵截面显微硬度分布。可以看出，匀质态 TAZ421 合金硬度分布较为均匀，HV 平均值约为 (607.6±29.4) MPa。复合挤压后，合金的硬度明显提高，平均值达到 (789.88±25.48) MPa，提高了 30%，而且硬度沿试样径向分布均匀，这与组织观察时试样截面各处组织较为均匀一致，说明复合挤压相较于常规挤压能获得更为均匀的组织 and 性能。

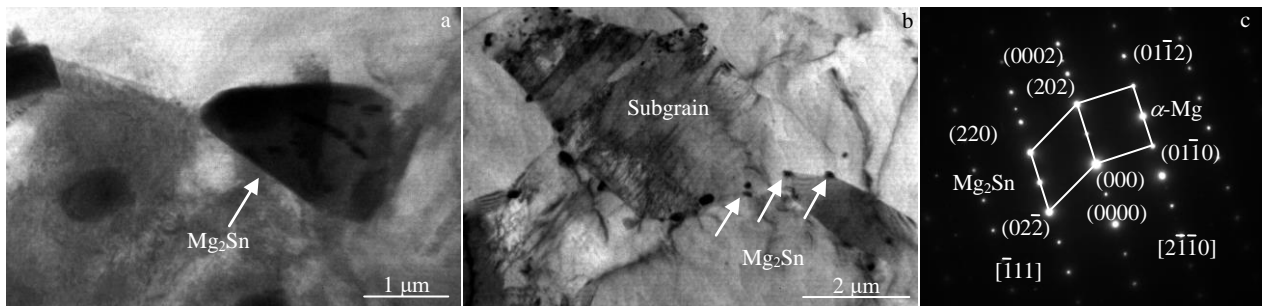


图 4 TAZ421 合金 TEM 照片及 SAED 花样

Fig.4 TEM images of homogenized (a) and as-extruded (b) TAZ421 alloy; SAED pattern of Mg₂Sn and α-Mg (c)

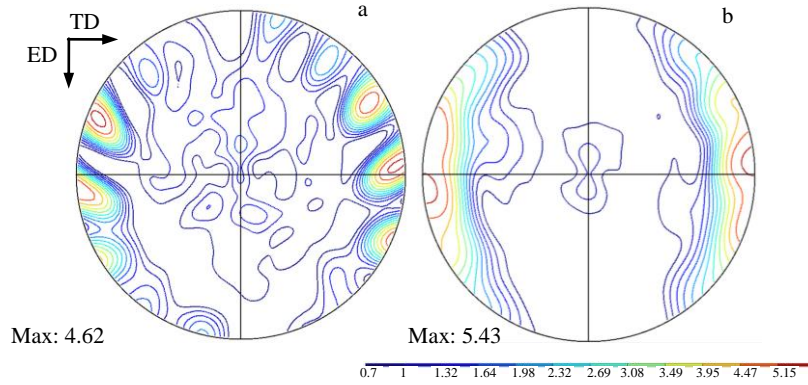


图 5 TAZ421 合金{0002}宏观织构

Fig.5 {0002} macrotextures of homogenized (a) and as-extruded (b) TAZ421 alloy

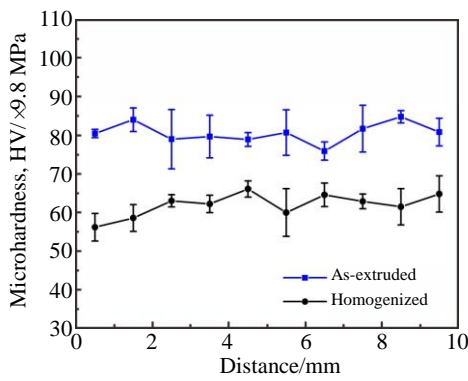


图 6 TAZ421 合金的纵截面显微硬度分布

Fig.6 Longitudinal section microhardness distributions of TAZ421 alloy

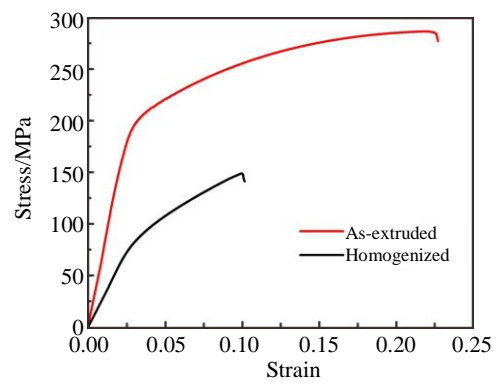


图 7 TAZ421 合金拉伸性能

Fig.7 Tensile properties of TAZ421 alloy

2.4 拉伸性能分析

匀质态及挤压态 TAZ421 合金拉伸性能如图 7 所示。匀质态合金屈服强度与抗拉强度分别为 85 MPa、150 MPa，断后伸长率为 8.2%。挤压态合金的屈服强度和抗拉强度分别为 204、287 MPa，比匀质态合金分别提高 140.0%、91.3%，断后伸长率提高到 21.0%。匀质态合金晶粒粗大，沿晶界有较大的共晶相，在拉伸时易引

起应力集中，产生断裂，因而强度和伸长率较低。根据 Hall-Petch 方程，复合挤压后合金平均晶粒尺寸减小，强度提高。挤压态合金具有细小晶粒及纳米级析出物，能够有效地阻碍位错运动，提升合金综合力学性能^[28]。同时，挤压态合金基面织构强，有利于合金提高屈服强度，而整体织构的随机性增加使得合金易于适应变形，能够有效改善塑性。

图 8 为 TAZ421 合金拉伸断口形貌，对于匀质态合

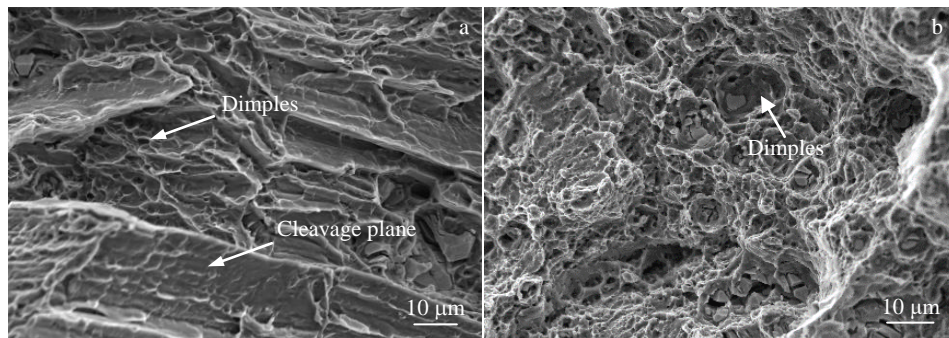


图 8 TAZ421 合金拉伸断口形貌

Fig.8 Tensile fracture morphologies of homogenized (a) and as-extruded (b) TAZ421 alloy

金, 断口存在大面积解理面和浅的韧窝, 属于解理断裂, 这种脆性和韧性相结合的断裂模式在镁合金室温拉伸断裂中很常见^[29]。挤压态合金断口则没有明显的解理面, 有许多细小韧窝, 也存在较深韧窝, 表明在拉伸断裂过程中韧窝不断产生、生长和聚集^[30], 具有明显的韧性断裂特征, 因而挤压态 TAZ421 合金延伸率显著提高。

3 结 论

1) 基于正挤压和 2 道次等径角挤压的复合挤压工艺可显著细化合金组织, 晶粒尺寸由匀质态的 45.2 μm 细化至 3.1 μm , 晶粒大小较为均匀, 动态再结晶是晶粒细化的主要机制。

2) 复合挤压过程中 Mg_2Sn 相发生破碎, 产生的纳米级颗粒能有效地阻碍晶界及位错迁移, 有利于提高镁合金的强度。

3) 复合挤压使得合金原始的多峰基面织构转变为强基面织构, 热挤压产生的再结晶晶粒使织构沿挤压方向均匀扩展, 合金协调应变能力增强, 有助于塑性提高。

4) 挤压态 Mg-4Sn-2Al-1Zn 合金由于组织及第二相颗粒细小和基面织构强化, 合金显微硬度提高, 均匀性改善, 屈服强度由 85 MPa 提升至 204 MPa, 抗拉强度由 150 MPa 提升至 287 MPa。晶粒细化和基面织构的随机取向增加则使合金塑性改善, 断后伸长率由 8.2% 提升至 21.0%, 合金的拉伸断裂机制由匀质态试样的脆性解理断裂转变为韧性断裂。

参考文献 References

- [1] Alaneme K K, Okotete E A. *Journal of Magnesium and Alloys*[J], 2017, 5(4): 460
- [2] Majd A M, Farzinfar M, Pashakhanlou M *et al.* *Journal of Magnesium and Alloys*[J], 2018, 6(3): 309
- [3] Wang X J, Xu D K, Wu R Z *et al.* *Journal of Materials Science & Technology*[J], 2018, 34(2): 245
- [4] Zhang C, Wu L, Liu H *et al.* *Corrosion Science*[J], 2020, 174: 108 831
- [5] Gui Z Z, Wang F, Zhang J Y *et al.* *Journal of Magnesium and Alloys*[J], 2021, 10(1): 239
- [6] Xu J, Wang X W, Shirooyeh M *et al.* *Journal of Materials Science*[J], 2015, 50(22): 7424
- [7] Bryła K, Krystian M, Horoky J *et al.* *Materials Science and Engineering A*[J], 2018, 737: 318
- [8] Ciemiorek M, Lewandowska M, Olejnik L. *Materials & Design*[J], 2020, 196: 109 125
- [9] Mansoor P, Dasharath S M. *Materials Today: Proceedings*[J], 2020, 20: 145
- [10] Harsha R N, Mithun K V, Satish B B. *Materials Today: Proceedings*[J], 2018, 5(10): 22 340
- [11] Martynenko N S, Lukyanova E A, Serebryany V N *et al.* *Materials Science and Engineering A*[J], 2018, 712: 625
- [12] Huang H, Liu H, Wang C *et al.* *Journal of Magnesium and Alloys*[J], 2019, 7(4): 617
- [13] Yuan Y C, Ma A, Gou X F *et al.* *Materials Science and Engineering A*[J], 2016, 677: 125
- [14] Lu F M, Ma A, Jiang J H *et al.* *Journal of Alloys and Compounds*[J], 2015, 643: 28
- [15] Chen Q, Zhao Z X, Shu D Y *et al.* *Materials Science and Engineering A*[J], 2011, 528(10-11): 3930
- [16] Orlov D, Ralston K D, Birbilis N *et al.* *Acta Materialia*[J], 2011, 59(15): 6176
- [17] Hu H J, Ying Y L, Ou Z W *et al.* *Materials Science and Engineering A*[J], 2017, 695: 360
- [18] Jiang L Y, Huang W J, Zhang D F *et al.* *Journal of Alloys and Compounds*[J], 2017, 727: 205
- [19] Jiang Y, Chen Y A, Liu H *et al.* *Journal of Alloys and Compounds*[J], 2016, 657: 68
- [20] Zhou Y Z, Wu P, Yang Y W *et al.* *Journal of Alloys and Compounds*[J], 2016, 687: 109
- [21] Zhong L P, Wang Y J, Dou Y C. *Journal of Magnesium and Alloys*[J], 2019, 7(4): 637
- [22] Wang B, Chen X H, Pan F S *et al.* *Progress in Natural Science: Materials International*[J], 2017, 27(6): 695
- [23] Wu K C, Chang S Y, Yeh J W. *Materials Science & Engineering A*[J], 2015, 646: 201
- [24] Shi Fengjian(石凤健), Zhang Jianwei(张健伟), Wang Leigang(王雷刚) *et al.* *Rare Metal Materials and Engineering (稀有金属材料与工程)*[J], 2020, 49(9): 3170
- [25] Guo Y H, He X C, Dai Y B *et al.* *Materials Science and Engineering A*[J], 2020, 858: 144 136
- [26] Yue J H, Feng Y, Wu H *et al.* *Materials Research Express*[J], 2019, 6(11)
- [27] Chen W Z, Ma J F, Cui C *et al.* *Materials Science and Engineering A*[J], 2022, 831: 142 185
- [28] Li Z G, Miao Y, Liu F N *et al.* *Materialia*[J], 2021, 19: 101 185
- [29] Orlov D, Raab G, Lamark T T *et al.* *Acta Materialia*[J], 2011, 59(1): 375
- [30] Zhang J Y, Kang Z X, Zhou L L. *Materials Science and Engineering A*[J], 2015, 647: 184

Effect of Compound Extrusion on Microstructure and Mechanical Properties of Mg-4Sn-2Al-1Zn Alloy

Tan Haotian¹, Shi Fengjian¹, Liu Ang², Zhou Hu¹, Guo Yuhang¹, Wang Leigang³, Piao Nanying¹, Zhang Wei¹

(1. Jiangsu University of Science and Technology, Zhenjiang 212003, China)

(2. Jiangsu Liwan Precision Tube Manufacturing Co., Ltd, Zhangjiagang 215632, China)

(3. Jiangsu University, Zhenjiang 212013, China)

Abstract: Due to low strength and poor plasticity of magnesium alloys at room temperature, Mg-4Sn-2Al-1Zn alloys were extruded at 250 °C by compound extrusion process, and the microstructure evolution, texture and mechanical properties of the alloys after extrusion were studied. The results show that the grain size of Mg-4Sn-2Al-1Zn alloy can be refined from 45.2 μm to 3.1 μm by one-step compound extrusion, and the structure is uniform. The hardness and uniformity of the extruded alloy increase, and the yield strength, tensile strength and elongation after fracture are 204 MPa, 287 MPa and 21.0%, which are 140.0%, 91.3% and 156.1% higher than those of the homogeneous state, respectively. Dynamic recrystallization is the main mechanism of grain refinement. Grain refinement and basal plane texture enhancement after extrusion, and the uniform texture expansion in the extrusion direction improve the strength and plasticity of the alloy, and the Mg₂Sn phase breakage further improves the mechanical properties of the alloy during extrusion. The above studies show that compound extrusion can effectively improve the comprehensive properties of magnesium alloys.

Key words: compound extrusion; magnesium alloys; grain refinement; texture

Corresponding author: Shi Fengjian, Ph. D., Associate Professor, School of Material Science and Engineering, Jiangsu University of Science and Technology, Zhenjiang 212003, P. R. China, E-mail: shifengjian@126.com