

等通道转角挤压对 Mg-1Gd、Mg-2Zn 二元合金组织及力学性能的影响

许金良¹, 宋宜帆¹, 丁睿智¹, 闫宏¹, 陈荣石²

(1. 山东科技大学 材料科学与工程学院, 山东 青岛 266400)

(2. 中国科学院金属研究所 师昌绪先进材料创新中心, 辽宁 沈阳 110016)

摘要: 使用 OM、EBSD 等手段研究了等通道转角挤压 (ECAE) 对 Mg-1Gd、Mg-2Zn 2 种二元合金组织和力学性能的影响。结果表明, 在相同挤压条件下, Mg-2Zn 合金发生完全再结晶, 晶粒长大粗化, 且强度塑性不随着挤压道次变化; Mg-1Gd 合金则只发生了部分动态再结晶, 组织为细小的动态再结晶晶粒和变形晶粒, 伴随挤压道次的增加, 再结晶程度提升, 合金的抗拉强度与塑性增加了 1 倍。这与溶质原子 Gd 比 Zn 更能抑制再结晶和晶粒长大有关。Mg-1Gd 合金的再结晶晶粒的取向分散, 而未再结晶的晶粒 c 轴取向由 ED 向 TD 偏转 45° , 这与宏观组织的检测相互印证, 晶粒内部产生大量的小角度晶界, 小角度晶界两侧发生围绕 c 轴的转动。

关键词: 等通道转角挤压 (ECAE); Mg-1Gd 合金; Mg-2Zn 合金; 再结晶; 组织; 力学性能

中图分类号: TG146.22

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2024)06-1735-06

镁合金作为密度最小的轻量化金属结构材料, 在汽车、飞机、高铁和 3C 电子产品产业中具有广阔的应用前景^[1]。但室温下密排六方晶格滑移系少, 塑性变形能力有限, 且在塑性加工过程中往往会形成较强的基面组织, 进一步阻碍了塑性变形^[2]。

为改善镁合金在机械加工中产生基面组织, 前人进行了广泛的研究。采用如异步轧制、十字交叉轧制等特殊的加工方式能够使取向随机化, 有效弱化组织^[3]。等通道转角挤压 (equal-channel angular extrusion, ECAE) 工艺由于坯料在挤压前后截面形状不变, 可进行重复挤压获得更大的应变, 从而有效细化晶粒尺寸, 并且在剪切作用会形成特殊的 ECAE 组织, 降低各向异性, 从而改善材料强度和塑性^[4-11]。

添加合金元素也是调控镁合金组织的一种有效方法, 如 Mg-RE 合金在普通挤压后形成一种 $\langle 11\bar{2}3 \rangle$ 挤压方向的 “RE 组织”, 往往能够起到提高室温成形能力的作用^[12-14]。虽然 “RE 组织” 的成因不明确, 但相关研究表明这种组织与稀土溶质原子引起的晶格常数、层错能等微观物理参量变化和再结晶机制等有关^[15-16]。Zn 作为一种原子尺寸小于 Mg 的合金元素, 能够借助时效获得较好的力学性能^[17], 因此常常与 RE 元素联用, 发展了具有优异塑性的 Mg-Zn-RE 系合金。

关于 Mg-RE 和 Mg-Zn-RE 的轧制和普通挤压的组织、性能相关研究很多, 但是对于 Mg-RE 类合金的等通道挤压研究甚少^[18,19-21]。本研究以 Mg-2Zn 合金作为对比对象, 研究了 Mg-1Gd 二元合金在等通道挤压过程的组织演变和力学性能, 指明 Mg-Gd 合金在 ECAE 过程中的塑性变形机制和再结晶行为及力学性能和塑性提升的来源。

1 实验

将纯 Mg (99.9%) 分别与纯 Zn (99.9%)、纯 Gd (99.95%) 置于通入 1 vol%SF₆ 与 99 vol%CO₂ 混合保护气氛的电阻熔炼炉中熔炼, 将熔体倒入预热的钢模内制备尺寸为 200 mm×200 mm×150 mm 的 Mg-1%Gd 与 Mg-2%Zn (质量分数) 铸锭; 在 450 °C 均质化处理 10 h 后在 90 °C 的热水中淬火。切取尺寸为 100 mm×12 mm×12 mm 的挤压样品, 在内角为 90°、外曲率跨度为 0 的 ECAE 设备中按照路径 B_C 挤压 4 道次。挤压温度为 380 °C、速度为 4 mm/min, 单道次产生的应变可由公式 (1)^[18] 计算得出, 为 1.1547。

$$\varepsilon_N = \frac{2N}{\sqrt{3}} \cot \varphi \quad (1)$$

用 SiC 砂纸将样品表面打磨至 3000#, 并用粒径为

收稿日期: 2023-06-19

基金项目: 国家自然科学基金 (52271107); 山东省自然科学基金 (ZR2021ME241)

作者简介: 许金良, 男, 1999 年生, 硕士生, 山东科技大学材料科学与工程学院, 山东 青岛 266400, E-mail: xj1181416@163.com

1.5 μm 的抛光膏抛光。使用苦味酸溶液（乙醇 25 mL，苦味酸 2 g，乙酸 5 mL，去离子水 5 mL）蚀刻样品表面。使用光学金相显微镜（OM）和扫描电子显微镜（SEM, Philips XL30 ESEM-FEG/EDAX）观察样品微观组织。

采用 Rigaku D/max 2400X 射线衍射仪进行织构检测，使用单个 Cu K α 辐射，测量角度为 $0^\circ\sim 70^\circ$ 。用纯镁粉校正并通过 DIFFRAC plus TEXEVAL 软件处理织构。电解抛光后的样品在扫描电子显微镜（SEM, Hitachi S-3400）上进行 EBSD 表征 (Oxford NordlysNano)，工作电压 20 kV，放大倍率 1000X，步长 0.3 μm ，使用 OIM-Analysis 6.2 软件处理数据。

沿挤压方向（ED）切取标距为 10 mm、宽 3.5 mm 的拉伸试样，使用 SiC 砂纸研磨样品至 2000#，然后在 CMT 5105 型万能试验机上进行室温拉伸性能试验，应变速率为 $1\times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ 。

2 结果与讨论

2.1 微观结构表征

2.1.1 不同挤压道次的组织形貌

图 1 是 Mg-1Gd 二元合金在不同挤压道次的微观组织演变。Mg-1Gd 合金由细小的条带状再结晶晶粒和粗大的变形晶粒组成，伴随挤压道次提升，条带状组织占比增加，粗晶被分割成长条状细晶。图 2 为 Mg-2Zn 二元合金在 ECAE 过程的微观组织演变。由图 2a 可知，晶粒尺寸差异明显，晶界平直；但伴随挤压道次的提升，组织未发生明显变化。造成 Mg-1Gd 和 Mg-2Zn 合金 ECAE 后组织差异巨大的原因是 Gd

原子对再结晶的抑制和延缓作用^[22]。

2.1.2 宏观织构

图 3 为 Mg-1Gd 及 Mg-2Zn 合金在 ECAE 过程的 (0002) 宏观织构演变。挤压道次的提升，基面织构强度明显下降。如图 3a、3e，经过 1 道次 ECAE，2 种合金即出现较为明显的基面织构，Mg-2Zn 合金的织构强度最高 (53.9)；同时，2 种合金均在 ED 方向出现弱峰，是典型的 ECAE 织构^[23]。对比图 3a、3d 与图 3e、3h，经过多道次 ECAE 后合金取向产生不规则变化，其中 4 道次 ECAE 后，Mg-1Gd 合金产生了特殊的双峰织构。

2.1.3 Mg-1Gd 二元合金等通道挤压 EBSD 组织演变

由于 Mg-2Zn 合金已完全再结晶，仅对 Mg-1Gd 合金进行 EBSD 检测。图 4 是 Mg-1Gd 合金经过 ECAE 1 道次和 4 道次后的 IPF (inverse pole figure) 图。如图 4a~4c 所示，经过 1 道次挤压后，带状粗晶周围出现细小的动态再结晶，粗晶细晶交替分布形成条带状组织。粗晶内部出现相互垂直的 2 种小角度晶界，分别为：如图中虚线箭头所示的小角度晶界，其走向与粗晶晶界形成 $60^\circ\sim 90^\circ$ 左右的夹角，两侧转轴取向接近 $[10\bar{1}0]$ ；如图中实线箭头所示的小角度晶界，长度较长，与大角度晶界平行，其转轴取向接近 $[0001]$ 。而在图 4d 中，垂直于细晶带的小角度晶界的转轴除 $[10\bar{1}0]$ 外还出现了 $[2\bar{1}10]$ ，且单位面积内条数更多，由此推断，挤压过程粗大铸态晶粒内位错聚集形成小角度晶界，并诱发动态再结晶，形成细晶带，且伴随着挤压道次提升，参与的柱面滑移类型增加。

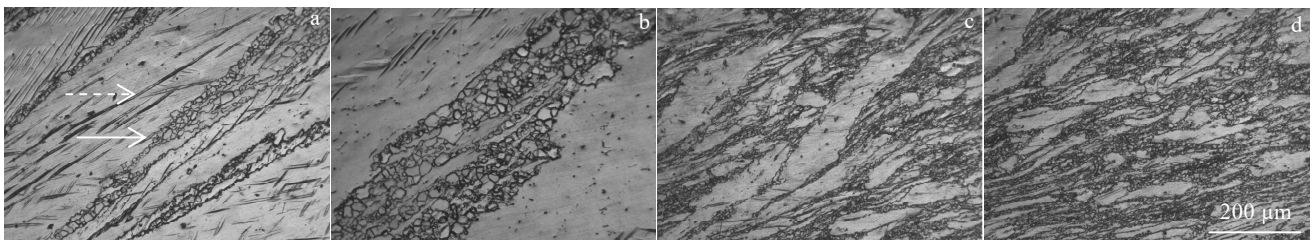


图 1 Mg-1Gd 二元合金 ECAE 1, 2, 3, 4 道次后的微观组织形貌

Fig.1 Microstructures of Mg-1Gd alloy after different ECAE passes: (a) 1 pass, (b) 2 passes, (c) 3 passes, and (d) 4 passes

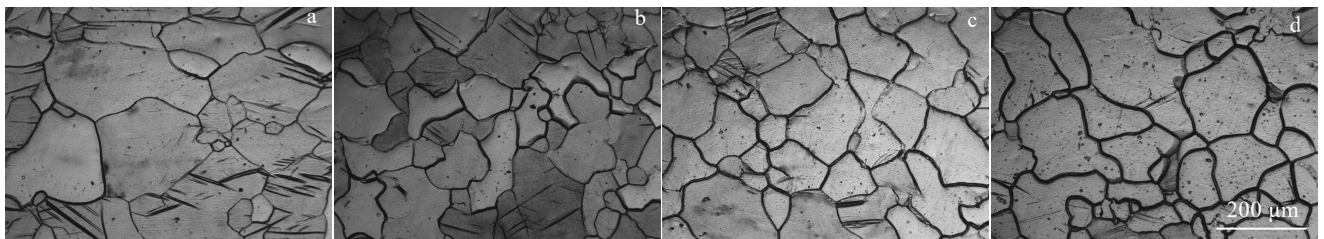


图 2 Mg-2Zn 二元合金 ECAE 1, 2, 3, 4 道次后的微观组织形貌

Fig.2 Microstructures of Mg-2Zn alloy after different ECAE passes: (a) 1 pass, (b) 2 passes, (c) 3 passes, and (d) 4 passes

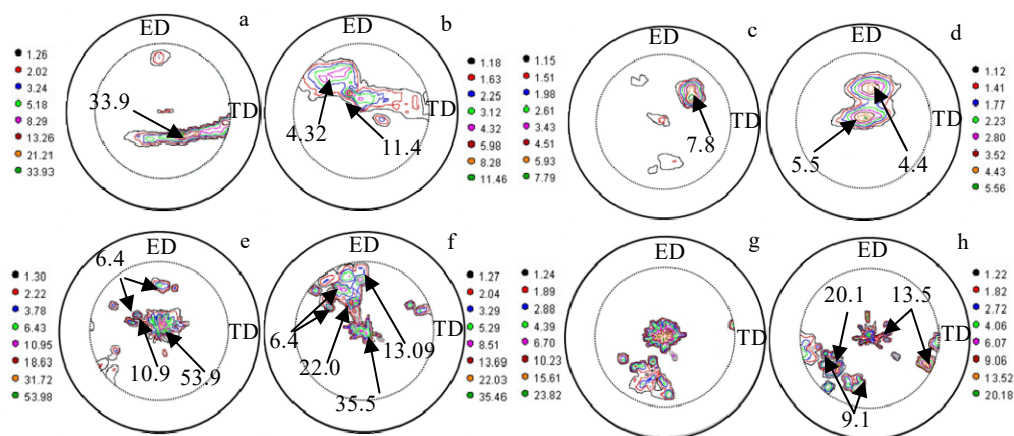


图3 Mg-1Gd 和 Mg-2Zn 合金 ECAE 不同道次的(0002)宏观织构

Fig.3 (0002) pole figures of Mg-1Gd (a-d) and Mg-2Zn (e-h) after different ECAE passes: (a, e) 1 pass, (b, f) 2 passes, (c, g) 3 passes, and (d, h) 4 passes

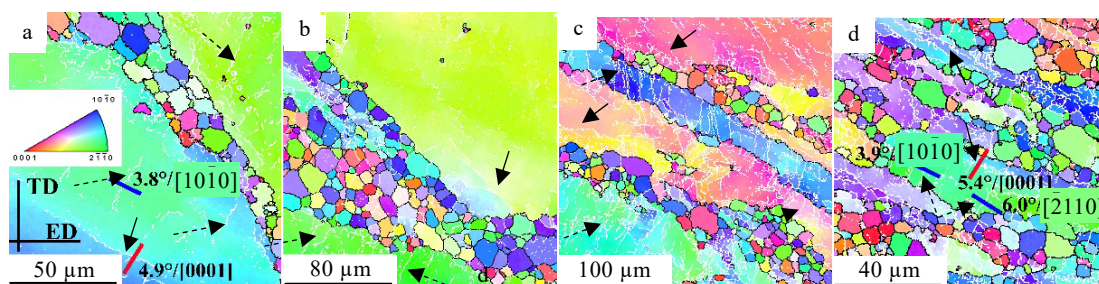


图4 不同道次 ECAE 后 Mg-1Gd 二元合金的 IPF 图像

Fig.4 IPF images of Mg-1Gd binary alloy after different ECAE passes: (a-c) 1 pass and (d) 4 passes

图5为Mg-1Gd合金1道次和4道次后的取向差分布, 1道次ECAE后, 小角度晶界占比接近60%, 说明挤压过程发生大量位错滑移, 且Gd元素抑制了再结晶; 4道次后, 小角度晶界降低至40%, 再结晶程度增加。在30°附近出现1个小峰, Sabbaghian等^[24]发现SSE (simple shear extrusion) 和ECAE的动态再结晶都能够产生在25°~30°附近的峰; 翟艺璇等^[25]发现, Ti、Zr等密排六方结构金属的再结晶过程往往能够形成30°左右的峰, 在4道次图像中发现峰值由30°向35°左右移动, Kamran等^[26]认为在30°~35°处的峰产生原因是再结晶过程中合金绕c轴旋转; 未发现在86°、57°处的峰, 结合IPF图, 推断等通道挤压后没有出现明显的孪生变形或是孪晶发生动态再结晶, 变形机制以位错滑移为主。

图6将再结晶的GOS (grain orientation spread) 颜色引至PF点图。在1道次时基面取向趋近于ED偏TD方向呈20°~45°夹角, 属于ECAE织构^[23]; (1010)和(1120)上出现了几个明显的集中区域。由图6d、6h可知, 1道次时织构组分来源于未再结晶晶粒, 而伴

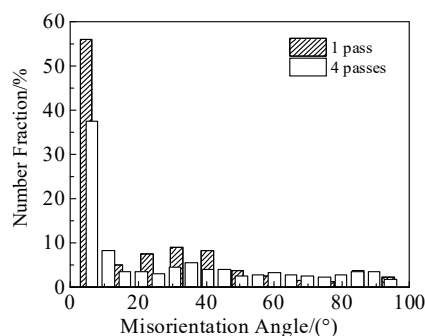


图5 Mg-1Gd 合金在 ECAE 1 道次与 4 道次后的取向差分布
Fig.5 Misorientation angle distribution of Mg-1Gd alloy after ECAE of 1 and 4 passes

随ECAE的进行, 再结晶晶粒占比提升, 织构弱化, 这与XRD宏观织构中趋向于ED方向相对较弱的非基面织构相似。在1道次ECAE中, 在较大剪切力的作用下, 铸态晶粒分裂为两侧取向相近的大晶粒, 其c轴偏离基极接近90°; 两粗晶之间出现细小再结晶晶粒, 如图6b-6c, 6f-6g所示, 1道次中, 红色未再结晶

部分的取向与再结晶部分存在偏差,但图 6a 中再结晶晶粒的 c 轴取向相对集中。而在图 6e 中 4 道次样品晶粒取向与 Zhao 等^[27]的结论类似,再结晶晶粒取向更加分散,尤其是 $(10\bar{1}0)$ 和 $(11\bar{2}0)$ 面;与 Alizadeh^[28]的研究结果相同,基面的取向集中,侧面说明晶粒在变形中以沿 c 轴的自身转动(也就是基面滑移)为主,以柱面滑移为辅。这也说明在较少道次的样品中其基面织构出现的主要原因是大变形晶粒的取向变化,而在后续多道次 ECAE 后再结晶晶粒的影响逐渐增大,同时柱面滑移的占比增加,导致基面织构弱化。这与图 3d 偏转的双峰织构相互印证。

2.2 材料的力学性能

图 7 为 Mg-2Zn 和 Mg-1Gd 的室温拉伸应力-应变曲线。如图 7a 挤压道次对 Mg-2Zn 合金的力学性能影响较小;虽然合金的屈服强度很低(<100 MPa),但是却有很好的抗拉强度(>200 MPa)与伸长率

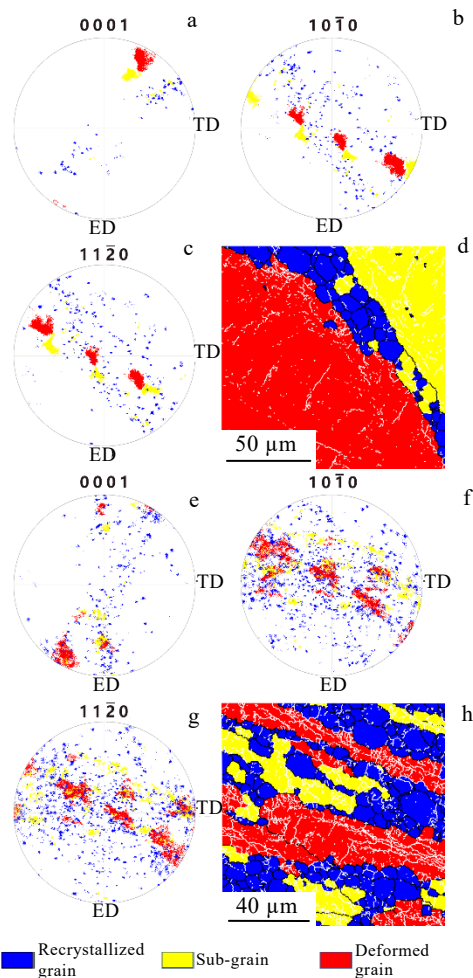


图 6 Mg-1Gd 合金在经过 ECAE 1 道次与 4 道次后的再结晶晶粒与变形晶粒的取向分析图

Fig.6 PF images stained by GOS (a-c, e-g) and GOS images (d, h) of Mg-1Gd alloy after ECAP of 1 (a-d) and 4 (e-h) passes

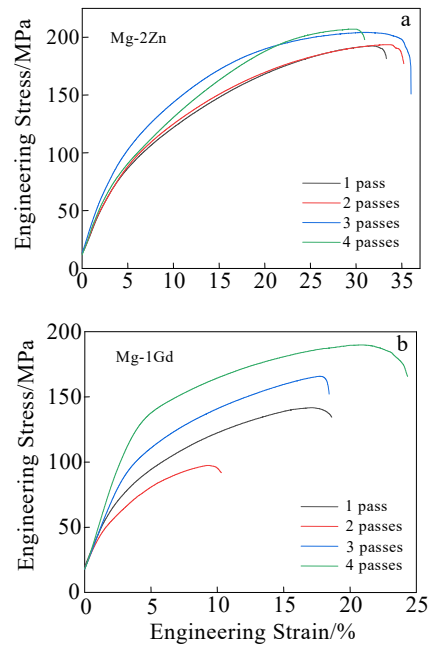


图 7 Mg-2Zn、Mg-1Gd 合金 ECAE 后的室温拉伸性能
Fig.7 Tensile mechanical properties of Mg-2Zn (a) and Mg-1Gd (b) alloys at room temperature after ECAE

($>30\%$)。充分的动态再结晶虽然使得晶粒粗大,但粗大的晶粒尺寸和特殊的织构有利于基面滑移,使得屈服强度很低;同时,单相组织避免了第二相诱发脆断,因而伸长率提高。

相对而言, Mg-1Gd 合金的力学性能随着挤压道次的变化很大。随着挤压道次提升,抗拉强度提升 92 MPa,伸长率提升 12%。挤压 1 道次后, Mg-Gd 合金的强度(<60 MPa)和伸长率($<10\%$)都很低,主要与未发生再结晶的部分与再结晶部分的晶粒尺寸分布不均有关。4 道次后,强度(>130 MPa)和伸长率($>20\%$)均增加 1 倍以上,主要原因是再结晶比例提高,组织均匀程度提升,晶粒取向的随机化也起到一定作用^[29-30]。

在相同加工条件下, Zn 元素对再结晶晶粒长大的抑制能力差,因而挤压后力学性能变化不明显; Gd 元素能够抑制动态再结晶及晶粒长大,并且由于剪切变形和 Gd 对于织构的偏转、弱化,形成了一种既不同于等通道挤压 AZ31 镁合金,也不同于普通挤压 Mg-RE 的宏观双峰织构,二者共同作用使 Mg-1Gd 合金力学性能显著提升。

3 结 论

1) 相对 Mg-2Zn, Mg-1Gd 合金在等通道挤压过

程动态再结晶进程缓慢, 组织中存在较多的剪切带及旋转轴为 $[10\bar{1}0]$ 、 $[2\bar{1}10]$ 和 $[0001]$ 的小角度晶界, 随着挤压道次增加, 动态再结晶比例逐渐增加, 晶粒更为细小。

2) 4 道次 ECAE 后, Mg-1Gd 合金呈现出强度很低的特殊双峰织构, 该织构的成因是 ECAE 过程中, 未再结晶的粗大晶粒内部的位错滑移使 c 轴偏转而产生的细微的取向差, 但随着动态再结晶过程的进行, 取向随机的再结晶比例提升, 粗晶数量降低, 织构强度减小。

3) Mg-2Zn 合金晶粒粗大, 但优异的应变硬化能力和单相组织保持了其较好的伸长率和抗拉强度。Mg-1Gd 合金随挤压道次增加, 强度和塑性提升, 经过 4 道次 ECAE 后由于晶粒细化且基面织构减弱, 抗拉强度与伸长率均增加 1 倍以上。

参考文献 References

- [1] Wu G H, Wang C L, Sun M *et al. Journal of Magnesium and Alloys*[J], 2021, 9(1): 1
- [2] Lee Jong-Yuon, Yun Young-Su, Kim Won-Tae *et al. Metals and Materials International*[J], 2014, 20(5): 885
- [3] Chen J X, Zhu X Y, Tan L L *et al. Acta Metallurgica Sinica*[J], 2020, 34(2): 205
- [4] Motoyama T, Watanabe H, Ikeo N *et al. Materials Letters*[J], 2017, 201: 144
- [5] Liu Y J, Heng Z H, He Y P *et al. Transactions of the Indian Institute of Metals*[J], 2023, 76: 165
- [6] Liu X B, Chen R S, Han E H. *Materials Science and Technology*[J], 2010, 26(10): 1213
- [7] Maharbi M A, Karaman I, Beyerlein I J *et al. Materials Science and Engineering A*[J], 2011, 528(25-26): 7616
- [8] Jeong H T, Ha T, Kim W J. *Korean Journal of Metal and Materials*[J], 2005, 43(12): 86
- [9] Chen B, Lu C, Lin D L *et al. Journal of Rare Earths*[J], 2011, 29(9): 902
- [10] Sun Desheng(孙德胜), Chen Shuaifeng(陈帅峰), Song Guangsheng(宋广胜) *et al. Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2024, 53(3): 882
- [11] Klu E E, Jiang J H, Saleh B *et al. Rare Metal Materials and Engineering*[J], 2022, 51(2): 491
- [12] Cai Z X, Jiang H T, Tang D *et al. Rare Metals*[J], 2013, 32(5): 441
- [13] Luo A A, Mishra R K, Sachdev A K. *Scripta Materialia*[J], 2011, 64(5): 410
- [14] Stanford N, Barnett M R. *Materials Science and Engineering A*[J], 2008, 496(1-2): 399
- [15] Bhattacharyya J J, Agnew S R, Muralidharan G. *Acta Materialia*[J], 2015, 86: 80
- [16] Yi S B, Brokmeier H G, Dietmar L. *Journal of Alloys and Compounds*[J], 2010, 506(1): 364
- [17] Dai Xiaojun(代晓军), Yang Xirong(杨西荣), Wang Chang(王昌) *et al. Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2022, 51(12): 4421
- [18] Valiev R Z, Langdon T G. *Progress in Materials Science*[J], 2006, 51(7): 881
- [19] Yan H, Chen R S, Han E H. *Materials Characterization*[J], 2011, 62(3): 321
- [20] Hou X L, Cao Z Y, Zhang L L *et al. Transactions of Nonferrous Metals Society of China*[J], 2010, 20: S508
- [21] Liu S S, Liu H, Zhang B X *et al. Transactions of Nonferrous Metals Society of China*[J], 2022, 32(7): 2190
- [22] Stanford N, Callaghan M D, Jong B D. *Materials Science and Engineering A*[J], 2013, 565: 459
- [23] Kecskes L J, Krywopusk N M, Hollenweger Y *et al. Mechanics of Materials*[J], 2021, 162: 104067.1
- [24] Sabbaghian M, Mahmudi R, Shin K S. *Materials Science and Engineering A*[J], 2022, 845: 143218
- [25] Zhai Yixuan(翟艺璇), Hou Xiuli(侯秀丽), Yuan Zhizhong(袁志钟) *et al. Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2018, 47(5): 1341
- [26] Kamran J, Shamas U D, Tariq N H *et al. Materials & Design*[J], 2015, 81:11
- [27] Zhao L Y, Yan H, Chen R S *et al. Scripta Materialia*[J], 2020, 188: 200
- [28] Alizadeh R, Mahmudi R, Ngan A H W *et al. Metallurgical and Materials Transactions A*[J], 2016, 47(12): 6056
- [29] He J H, Jin L, Wang F H *et al. Journal of Magnesium and Alloys*[J], 2017, 5(4): 423
- [30] Tork N B, Razavi S H, Saghaian H *et al. Advanced Engineering Materials*[J], 2016, 18(1): 156

Effect of Equal-Channel Angular Extrusion on Microstructure and Mechanical Properties of Mg-1Gd and Mg-2Zn Alloys

Xu Jinliang¹, Song Yifan¹, Ding Ruizhi¹, Yan Hong¹, Chen Rongshi²

(1. School of Materials Science and Engineering, Shandong University of Science and Technology, Qingdao 266400, China)

(2. Shi-changxu Innovation Center for Advanced Materials, Institute of Metal Research, Chinese Academy of Sciences, Shenyang 110016, China)

Abstract: The effects of equal-channel angular extrusion on the microstructure and mechanical properties of two binary alloys, Mg-1Gd and Mg-2Zn were studied by OM and EBSD. The results show that under the same extrusion conditions, Mg-2Zn alloy fully recrystallizes, resulting in grain growth and coarsening, and the strength and plasticity do not change with the number of extrusion passes. Mg-1Gd alloy only partially recrystallizes after extrusion, with a microstructure consisting of fine dynamic recrystallized grains and deformed grains. With the increase in the number of extrusion passes, the degree of recrystallization increases, leading to a doubling of the tensile strength and plasticity of Mg-1Gd alloy. This is related to the greater inhibition of recrystallization and grain growth by the solute atom Gd compared to Zn. The recrystallized grains have a dispersed orientation, while the grains that do not recrystallize in Mg-1Gd alloy have a *c*-axis orientation that deviates 45° from ED to TD, which is consistent with the detection of macroscopic texture. A large number of small-angle grain boundaries form within the grains, and rotations around the *c*-axis occur on both sides of these boundaries, gradually evolving into large-angle boundaries.

Key words: ECAE; Mg-1Gd alloy; Mg-2Zn alloy; recrystallization; texture; mechanical property

Corresponding author: Yan Hong, Ph. D., Professor, School of Materials Science and Engineering, Shandong University of Science and Technology, Qingdao 266400, P. R. China, E-mail: yanhong5871@163.com