

工具转速对搅拌摩擦加工Mg-Zn-Y-Zr 耐热镁合金超塑性行为的影响

谢广明¹ 马宗义² 薛鹏² 骆宗安¹ 王国栋¹

¹ 东北大学轧制技术及连轧自动化国家重点实验室 沈阳 110819

² 中国科学院金属研究所 沈阳 110016

摘要 在800~1600 r/min工具转速和100 mm/min固定行进速度的较宽热输入范围内,对6 mm厚的热挤压态Mg-Zn-Y-Zr耐热镁合金板进行搅拌摩擦加工(FSP),获得了由均匀、细小的等轴再结晶晶粒和细小、弥散的Mg-Zn-Y三元W相构成的FSP样品。随着工具转速的增加,FSP样品中W相被显著细化且分布更加弥散,高角晶界(晶界错配角 $\geq 15^\circ$)比例明显增加,再结晶晶粒被细化。工具转速的增加使超塑性变形的最佳应变速率和延伸率均显著增加,1600 r/min工具转速的FSP样品在 $1 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ 的高应变速率和450 °C的变形温度下,获得了1200%的最大延伸率。通过对超塑性变形数据进行分析 and 超塑性样品表面形貌观察可以得出,不同转速下所获得的FSP样品超塑性变形控制机制均以晶界滑移为主。随着工具转速的增加,超塑性动力学被明显加速,在1600 r/min工具转速的FSP样品的超塑性动力学与晶界滑移控制的细晶镁合金超塑性本构方程吻合。

关键词 搅拌摩擦加工, 镁合金, 超塑性, 晶界

中图分类号 TG456.9

文章编号 0412-1961(2018)12-1745-11

Effects of Tool Rotation Rates on Superplastic Deformation Behavior of Friction Stir Processed Mg-Zn-Y-Zr Alloy

XIE Guangming¹, MA Zongyi², XUE Peng², LUO Zongan¹, WANG Guodong¹

¹ State Key Laboratory of Rolling and Automation, Northeastern University, Shenyang 110819, China

² Institute of Metal Research, Chinese Academy of Sciences, Shenyang 110016, China

Correspondent: XIE Guangming, associate professor, Tel: (024)83673172, E-mail: xiegm@ral.neu.edu.cn

Supported by National Natural Science Foundation of China (Nos.51774085 and 51671190) and Fundamental Research for the Central Universities (No.N170704013)

Manuscript received 2018-05-02, in revised form 2018-06-18

ABSTRACT Compared to conventional Mg-Al and Mg-Zn system magnesium alloys, the Mg-Zn-Y-Zr heat-resistant alloy exhibits high thermal stability due to the addition of Y earth element, which is an ideal candidate for producing high strain rate superplasticity (HSRS, strain rate $\geq 1 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$). Recently, the HSRS of Mg-Zn-Y-Zr alloy was achieved by friction stir processing (FSP), because the FSP resulted in the generation of fine and equiaxed recrystallized grains and fine and homogeneous second phase particles. However, the study on superplastic deformation mechanism of FSP Mg-Zn-Y-Zr alloy at various parameters is limited relatively. Therefore, at the present work, six millimeters thick as-extruded Mg-Zn-Y-Zr plates were subjected to FSP at relatively wide heat input range of rotation rates of 800 r/min to 1600 r/min with a constant traverse speed of 100 mm/min, obtaining FSP samples consisting of homogeneous, fine and equiaxed dynamically recrystallized grains and fine and uniform Mg-Zn-Y ternary phase (W-phase) particles. With increasing rotation rate, within the FSP samples the W-phase particles were broken up and dispersed significantly and the recrystallized grains were refined slightly, while the fraction ra-

资助项目 国家自然科学基金项目 Nos.51774085 和 51671190, 中央高校基本科研业务费项目 No.N170704013

收稿日期 2018-05-02 定稿日期 2018-06-18

作者简介 谢广明, 男, 1980年生, 副教授, 博士

通讯作者 谢广明, xiegm@ral.neu.edu.cn, 主要从事搅拌摩擦焊接和加工研究

DOI 10.11900/0412.1961.2018.00174

tion of the high angle grain boundaries (grain boundaries misorientation angle $\geq 15^\circ$) was increased obviously. Increasing rotation rate resulted in an increase in both optimum strain rate and superplastic elongation. For the FSP sample obtained at 1600 r/min, a maximum elongation of 1200% was achieved at a high-strain rate of $1 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ and 450°C . Grain boundary sliding was identified to be the primary deformation mechanism in the FSP samples at various rotation rates by superplastic data analyses and surficial morphology observations. Furthermore, the increase in rotation rate accelerated superplastic deformation kinetics remarkably. For the FSP sample at 1600 r/min, superplastic deformation kinetics is in good agreement with the prediction by the superplastic constitutive equation for fine-grained magnesium alloys governed by grain boundary sliding mechanism.

KEY WORDS friction stir processing, magnesium alloy, superplasticity, grain boundary

镁合金由于具有较低的密度、良好的加工性能、优异的阻尼性能以及理想的可回收性,被广泛用于汽车、电子和航空航天等领域^[1]。然而,由于镁合金具有 hcp 晶体结构,室温滑移系较少,因此镁合金的成形性能较差。在高温下的超塑性成形是一种生产复杂镁合金构件的有效途径,可以降低材料消耗,简化加工工序,实现近净成形^[2]。由于传统的 Mg-Al 和 Mg-Zn 系镁合金的热稳定性较差,超塑性成形通常只能在较低的应变速率下进行,严重制约了生产效率,使超塑性成形技术在镁合金工业生产中的应用受到了限制^[3,4]。

近些年来,添加 Y、Nd 等稀土元素的耐热镁合金由于具有良好的热稳定性、高硬度以及高强度,引起了研究人员的广泛关注^[5-7]。Mg-Zn-Y-Zr 合金作为一种典型的耐热镁合金,因含有较高共晶温度的 Mg-Zn-Y 三元相,使得该合金具有较高的热稳定性。根据 Y 元素添加量不同, Mg-Zn-Y 三元相按结构不同被分为 2 种,一种组成 $\text{Mg}_3\text{Zn}_6\text{Y}$ 称为 I 相(共晶点 450°C),另一种组成 $\text{Mg}_3\text{Zn}_3\text{Y}_2$ 称为 W 相(共晶点 510°C),其中 W 相有更为优异的热稳定性^[8]。最近,一些学者^[9-12]针对不同 Y 含量的 Mg-Zn-Y 系合金开展了超塑性研究。Zheng 等^[9]通过等通道转角挤压(ECAP)获得了细晶 Mg-4.3Zn-0.7Y (质量分数,%,下同)合金,并在 350°C 和 $1.5 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ 应变速率下获得了 600% 的最大延伸率。Bae 等^[10]通过挤压+热轧获得了细晶 Mg-7.6Zn-1.7Y-1.8Zr 合金,在 450°C 和 $5 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ 应变速率下获得了最大延伸率 780%。Tang 等^[11]通过 ECAP 获得了细晶 Mg-5.8Zn-1.0Y-0.48Zr 合金,在 350°C 和 $1.7 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ 的应变速率下获得了最大延伸率 800%。从这些结果中可以看出, Mg-Zn-Y 合金超塑性变形的最佳应变速率较慢,很难实现高应变速率超塑性(最佳应变速率 $\geq 1 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ 且延伸率 $\geq 200\%$)。

搅拌摩擦加工(FSP)是基于搅拌摩擦焊技术发展起来的一种新型热加工技术^[13-16]。在搅拌工具

的强烈塑性变形和摩擦热共同作用下,FSP 能够产生含有高比例高角晶界(晶界错配角 $\geq 15^\circ$)的细小再结晶晶粒,显著改善了 FSP 样品的超塑性^[13,14]。最近,大量的 FSP 铝合金研究^[17,18]表明,在 FSP 细晶铝合金中容易实现高应变速率超塑性,并证明由于高比例高角晶界的存在,使超塑性变形动力学显著加速。目前,国外已采用 FSP 同时结合高速超塑性成形技术制备出了铝合金构件^[19]。与铝合金类似,FSP 镁合金也获得了优异的超塑性^[20-23]。Yang 等^[20]进行了 FSP ZK60 镁合金的超塑性研究,在 $3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ 应变速率和 300°C 获得了 1390% 的最大延伸率。Chai 等^[21]通过在水下进行 FSP AZ91 获得了 $1.2 \mu\text{m}$ 的超细晶组织,在 $2 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ 应变速率和 350°C 下获得了 990% 的延伸率。然而,目前对于 FSP Mg-Zn-Y-Zr 合金的超塑性研究相对较少。

本课题组前期的研究^[24,25]显示,通过对 Mg-Zn-Y-Zr 耐热镁合金进行 FSP,所产生的细小、弥散的第二相颗粒有效地抑制了超塑性过程中的晶粒粗化,在 $1 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ 的高应变速率下获得了 1100% 的最大延伸率,同时也发现了 FSP Mg-Zn-Y-Zr 合金的超塑性动力学加速现象。然而,未对不同 FSP 热输入参数下 Mg-Zn-Y-Zr 合金的超塑性变形行为规律进行研究。在 FSP 铝合金中,超塑性动力学加速行为被广泛研究,然而镁合金与铝合金的层错能差异较大,使得镁合金与铝合金的动态再结晶行为有所不同,因而有必要对 FSP 镁合金的超塑性动力学加速行为进行研究。在本工作中,将采用较宽的热输入参数对 Mg-Zn-Y-Zr 耐热镁合金进行 FSP (800~1600 r/min 的工具转速),通过分析不同条件下 FSP 样品的晶粒、第二相、晶界特征,以及对超塑性性能进行评价,建立起 FSP 样品的微观组织对 Mg-Zn-Y-Zr 耐热镁合金超塑性变形行为的影响规律,最终阐明 FSP Mg-Zn-Y-Zr 合金的超塑性成形机理。

1 实验方法

6 mm 厚、100 mm 宽、260 mm 长的 Mg-Zn-Y-Zr

耐热镁合金挤压板的具体化学成分为Mg-7Zn-1.2Y-0.8Zr(质量分数,%)。在800、1200和1600 r/min的不同工具转速(加工行进速度固定为100 mm/min)的不同热输入参数条件下,采用FSW-5LM-020型搅拌摩擦焊机进行FSP。所使用的搅拌工具的轴肩直径为20 mm,锥状螺纹搅拌针的根部直径为6 mm、端部直径为4 mm、长度为5.7 mm,FSP过程的下压量维持在0.2 mm,搅拌工具与水平面垂线的夹角固定为2.5°。在FSP之前,利用钢丝刷去除镁合金板表面的氧化层和污染物。

FSP截面组织观察样品从垂直于加工方向用线切割取得,然后对样品进行抛光,并在90 mL乙醇、10 mL纯净水、5 mL醋酸和5 g苦味酸的混合溶液中进行腐蚀。采用DMIRM型光学显微镜(OM)、ULTRA55型扫描电子显微镜(SEM)、JEOL-5853型电子探针(EPMA)、BRUKER-AXS型X射线衍射仪(XRD)和SUPRA55型SEM中的电子背散射衍射仪(EBSD)对横截面样品进行微观组织分析,EBSD样品在60 mL硝酸和140 mL乙醇的电解液中以15 V直流电压进行电解抛光。平均晶粒尺寸采用割线法测定。第二相颗粒的平均尺寸采用Scion Image软件进行测量。

由于FSP的加工区很小,宽度不超过7 mm,因此为了评价FSP样品的超塑性行为,通常采用标距长度为2.5 mm、宽度为1.4 mm、厚度为1.0 mm的微型非标拉伸样品,并且样品标距段位于FSP加工区

中心位置,样品长度方向垂直于FSP的加工方向。尽管所采用的样品尺寸较小,但通过严格控制样品加工精度和超塑拉伸过程的精度,所得到的超塑性数据可与其它超塑性数据进行对比。所有的拉伸样品在相应的测试温度保温15 min后进行超塑性拉伸。在400和450 °C的测试温度,初始应变速率为 $3 \times 10^{-4} \sim 3 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ 下,采用Instron 5848型微拉伸机对FSP样品进行超塑性测试。对断裂后的超塑性样品标距段位置进行SEM观察。

2 实验结果

图1为Mg-Zn-Y-Zr耐热镁合金的原始母材和不同工具转速下获得的FSP样品的OM像。镁合金母材由粗细不均的晶粒组成,镁合金内部存在热挤压过程残留的变形带,变形带附近的晶粒因强变形更为细小,另外镁合金基体中还含有大量尺寸和分布不均匀的第二相颗粒,其中粗大的第二相颗粒多聚集在粗晶粒附近(图1a)。与母材相比,FSP以后的镁合金展现了均匀、等轴的细晶组织,同时母材中的第二相颗粒尺寸和分布更加均匀(图1b~d)。这主要是由于FSP的强塑性变形过程导致了镁合金的动态再结晶,因而产生了细小、等轴的再结晶晶粒。与热挤压过程相比,FSP的塑性变形程度更为剧烈,对材料施加了更高的应变和应变速率,因而获得了更为细小和均匀的晶粒组织。另外,Mg-Zn-Y-Zr镁合金FSP样品的晶粒尺寸随着转速的增加被一定程度细

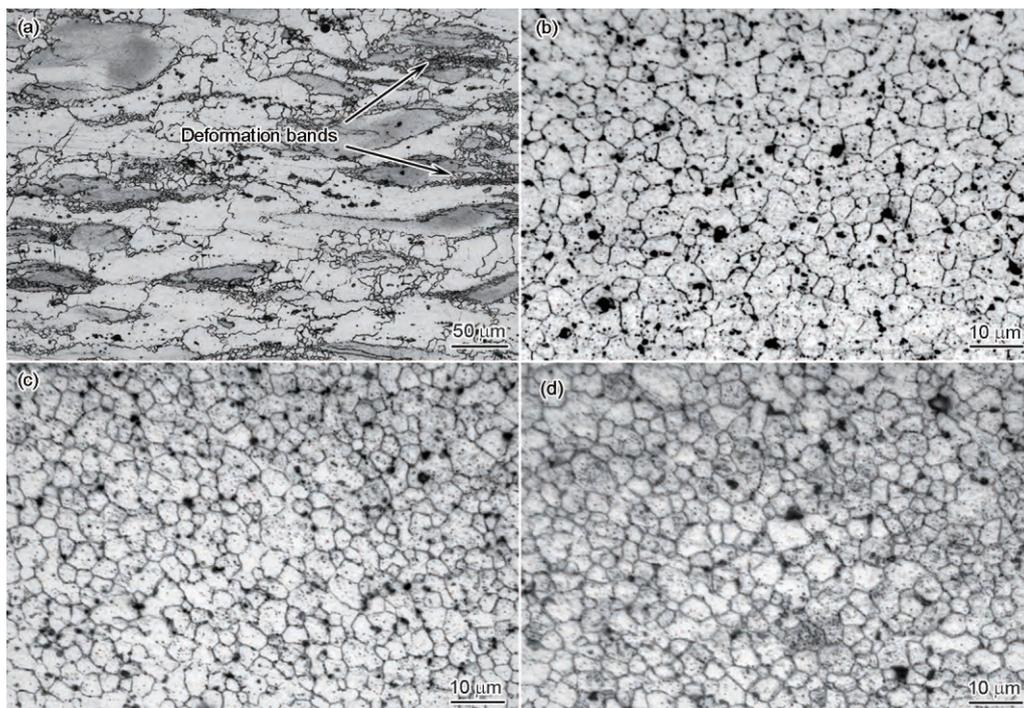


图1 Mg-Zn-Y-Zr合金母材和不同工具转速下搅拌摩擦加工(FSP)样品的OM像

Fig.1 OM images of parent Mg-Zn-Y-Zr alloy (a) and FSP samples at rotation rates of 800 r/min (b), 1200 r/min (c) and 1600 r/min (d) (FSP—friction stir processing, the black particles are the second phases)

化, 800、1200 和 1600 r/min 工具转速下 FSP 样品的平均晶粒尺寸分别约为 5.6、4.9 和 4.6 μm 。相反地, 传统的 Mg-Al 系和 Mg-Zn 系等合金在 FSP 过程中, 随着热输入的增加, 再结晶晶粒的尺寸随之增加^[26,27]。

图 2 为 Mg-Zn-Y-Zr 母材和不同转速下 FSP 样品的 SEM 像。从中可以看出, 母材中含有粗大的第二相颗粒, 并且主要呈条带状不均匀地分布在镁合金基体上(图 2a)。FSP 以后, 母材中粗大的第二相被显著细化且分布弥散, 800、1200 和 1600 r/min 工具转速下 FSP 样品的平均第二相颗粒尺寸分别约为 2.8、1.7 和 0.9 μm (图 2b~d)。这主要是由于 FSP 过程中高速旋转的螺纹搅拌针对基体中的粗大 W 相产生了强烈的破碎和弥散化作用。与原始母材粗大且不均匀分布的第二相相比, FSP 样品中细小弥散的第二相颗粒对镁合金的晶界起到了钉扎作用, 显著抑制了再结晶晶粒的长大, 最终获得了细小均匀的微观组织。另外, 从图 2b~d 可以看出, 随着搅拌工具转速的增加, 更为强烈的搅拌作用使得镁合金中第二相粒子的细化程度愈加明显, 分布也更为弥散均匀。随着工具转速的增加, 尽管热输入的增加对再结晶晶粒有一定的粗化作用, 但更为细小弥散的第二相颗粒对晶界的钉扎作用占据了主导。因此, 随着转速的增加, Mg-Zn-Y-Zr 镁合金 FSP 样品的晶粒组织不仅未发生粗化, 反而出现了一定程度的细化。

图 3 为镁合金母材和 1600 r/min 工具转速下

FSP 样品中 Mg、Zn、Y 元素的 EPMA 面分布图。Mg-Zn-Y-Zr 镁合金之所以称为耐热镁合金, 主要是源于添加的稀土元素 Y 在合金中形成了具有高热稳定性的 Mg-Zn-Y 三元共晶相。图 3 显示了这种三元相的 Mg、Zn、Y 元素分布状态, 同时也明显地反映了 FSP 加工后第二相被显著细化和弥散分布的特征。图 4 为 Mg-Zn-Y-Zr 镁合金母材和 1600 r/min 工具转速下 FSP 样品的 XRD 谱。从中可以看出, 母材和 FSP 样品中均含有共晶点为 510 $^{\circ}\text{C}$ 的 W 相, 因而 Mg-Zn-Y-Zr 合金具有极为优异的热稳定性, 为实现高应变速率超塑性提供了基本保障。

镁合金母材和不同转速下 FSP 样品的 EBSD 取向分布如图 5 所示, 图中黑色实线和白色实线分别代表高角晶界(晶界错配角 $\geq 15^{\circ}$)和低角晶界($2^{\circ} \leq$ 晶界错配角 $< 15^{\circ}$)。镁合金母材和不同转速下 FSP 样品的晶界错配角分布比例如图 6 所示。其中母材、800、1200 和 1600 r/min 工具转速下 FSP 样品的高角晶界比例分别为 43%、74%、82% 和 93%。显然, FSP 导致样品内产生了强烈的动态再结晶过程, 原始母材中的粗大、不均匀晶粒被细小、均匀、等轴的再结晶晶粒所替代, 因而导致了高角晶界比例的大幅增加。另外, 随着工具转速的增加, FSP 的热输入也随之增加, 高热输入也促进了动态再结晶过程, 因而获得了更高比例的高角晶界。

图 6 中的黑色曲线为 hcp 结构的随机晶界分布

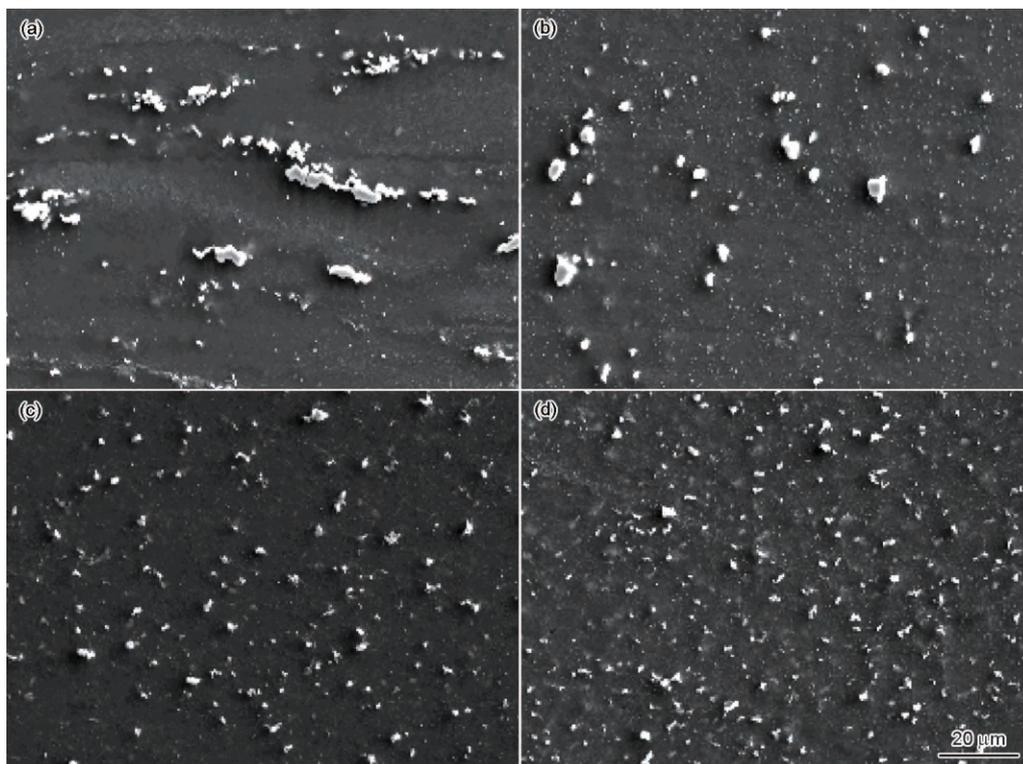
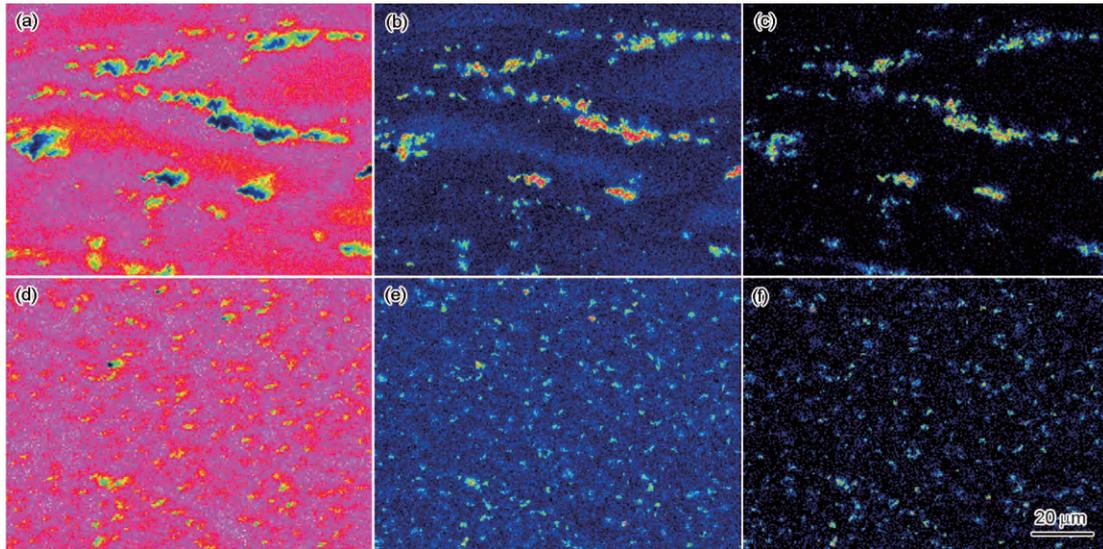


图 2 Mg-Zn-Y-Zr 合金母材与不同转速下 FSP 样品的 SEM 像

Fig.2 SEM images of parent Mg-Zn-Y-Zr alloy (a) and FSP samples at rotation rates of 800 r/min (b), 1200 r/min (c) and 1600 r/min (d) (The white particles are the second phases)



Color online

图3 Mg-Zn-Y-Zr合金母材和转速为1600 r/min的FSP样品中Mg、Zn、Y元素的EPMA面分布
Fig.3 EPMA element maps of Mg (a, d), Zn (b, e) and Y (c, f) in parent Mg-Zn-Y-Zr alloy (a~c) and FSP sample at rotation rate of 1600 r/min (d~f)

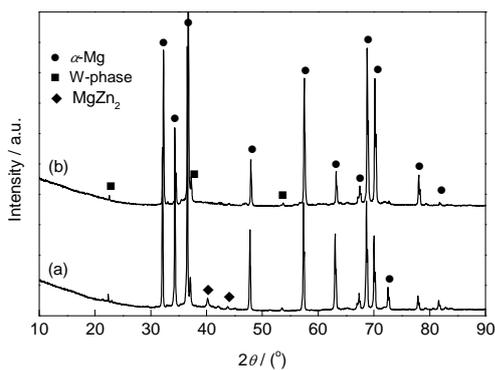


图4 Mg-Zn-Y-Zr合金母材和转速为1600 r/min的FSP样品的XRD谱

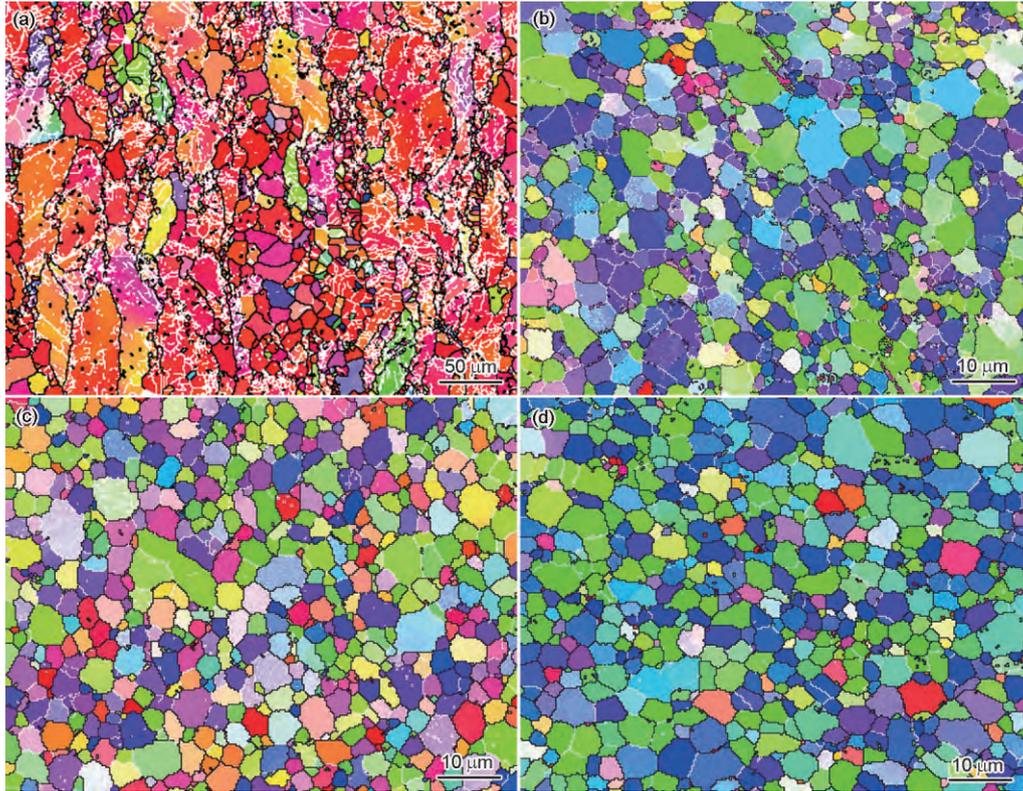
Fig.4 XRD spectra of parent Mg-Zn-Y-Zr alloy (a) and FSP sample at rotation rate of 1600 r/min (b)

曲线。从图中可以看出,对比FSP样品的晶界分布,原始镁合金母材的晶界分布更倾向偏离随机分布曲线,这意味着原始母材组织具有明显的各向异性,即含有强烈的取向结构,而FSP后结构变弱。随着工具转速的增加,FSP样品的晶界错配角分布向高角度方向移动,FSP样品的晶界分布与随机晶界分布的偏离有减弱的趋势,说明更强的塑性变形和更高的热输入使FSP样品的结构被进一步弱化。另外,从晶界错配角分布来看,FSP样品中晶界错配角分布的峰值分别出现在约 30° 和 90° 位置,2个峰值分别与基面纤维结构和锥面结构相关^[28,29]。800 r/min工具转速FSP样品的晶界错配角峰值出现在 30° 左右。随着工具转速增加 30° 左右峰值降低, 90° 左右峰值显著增加,在1600 r/min工具转速的FSP样品

中,晶界错配角峰值出现在 90° 左右位置。由于晶界错配角分布与结构有相关性,因而工具转速对FSP样品的结构将产生显著影响。

对不同工具转速下的FSP样品进行超塑性测试,获得了在不同变形温度下样品初始应变速率与峰值延伸率之间的关系(图7)。从结果看,不同条件下FSP样品的延伸率都超过了200%,均表现出了超塑性。对于800 r/min工具转速下得到的FSP样品,在400和450 $^\circ\text{C}$,峰值延伸率均出现在 $1 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ 的应变速率;在 $1 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ 的最佳应变速率和400 $^\circ\text{C}$ 温度下实现了440%的最大延伸率。对于在1200 r/min工具转速下得到的FSP样品,在400和450 $^\circ\text{C}$,峰值延伸率均出现在 $3 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ 应变速率;在 $3 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ 的较高初始应变速率和450 $^\circ\text{C}$ 的变形温度下实现了1100%的最大延伸率。对于在1600 r/min工具转速下得到的FSP样品,在450 $^\circ\text{C}$ 的变形温度下,峰值延伸率出现在 $1 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ 的高应变速率,而在400 $^\circ\text{C}$ 的变形温度下,峰值延伸率则出现在 $3 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ 的较高应变速率,即随着变形温度的增加最佳应变速率发生了显著提升;在 $1 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ 的高应变速率和450 $^\circ\text{C}$ 的测试温度下实现了1200%的最大延伸率。

从以上结果可以看出,随着工具转速的增加,超塑性变形的最佳应变速率和延伸率均显著提升,同时对应的变形温度也有增加的趋势。这主要是由于,随着转速增加,更加细小、弥散的W相对晶界的强烈钉扎作用,使Mg-Zn-Y-Zr合金的FSP样品具有了更高的热稳定性,在高温下获得了优异的超塑性。由于W相的熔点为510 $^\circ\text{C}$,超过了超塑性变形



Color online

图5 Mg-Zn-Y-Zr母材和不同转速下FSP样品的EBSD取向图

Fig.5 EBSD orientation maps of parent Mg-Zn-Y-Zr alloy (a) and FSP samples at rotation rates of 800 r/min (b), 1200 r/min (c) and 1600 r/min (d) (The black and white lines represent the high angle grain boundaries (HAGBs, grain boundaries misorientation angle $\geq 15^\circ$) and low angle grain boundaries (LAGBs, $2^\circ \leq$ grain boundaries misorientation angle $< 15^\circ$), respectively)

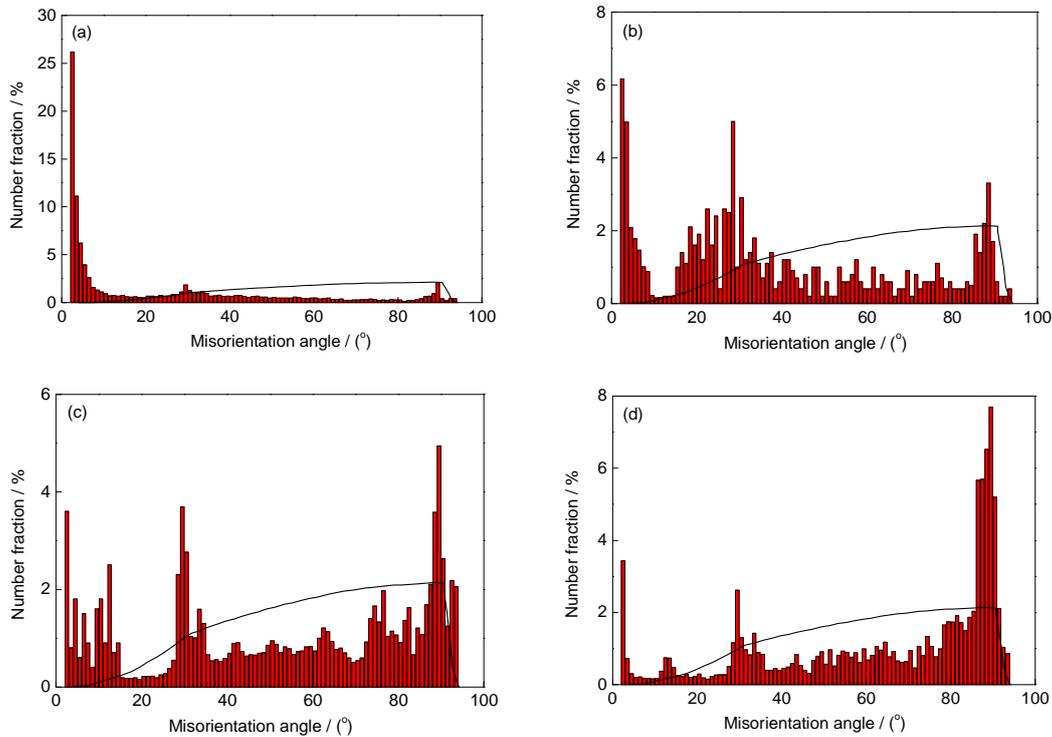


图6 Mg-Zn-Y-Zr母材和不同转速下FSP样品的晶界错配角分布图

Fig.6 Grain boundary misorientation angle distributions of parent Mg-Zn-Y-Zr alloy (a) and FSP samples at rotation rates of 800 r/min (b), 1200 r/min (c) and 1600 r/min (d) (The black curves show the random misorientation angle distribution for hcp structural metal)

温度 400 和 450 °C, 因而在超塑性变形过程中 W 相能够稳定存在, 同时起到抑制晶粒粗化和提高超塑性性能的作用。类似地, 之前的报道^[24]也显示了 W 相在 Mg-Zn-Y-Zr 镁合金超塑性变形过程中表现出很高的稳定性。相比较而言, 由于传统的 AZ 系等镁合金的高温热稳定性较差, FSP 热输入的增加容易导致晶粒显著粗化, 通常很难获得高应变速率超塑性。

不同工具转速 FSP 样品在不同变形温度下的流变应力与初始应变速率之间的关系如图 8 所示。从图中可以看出, 随着变形温度的增加, 不同条件下的流变应力明显降低。说明随着变形温度的增加, 提高了原子的自由能, 促进了晶界滑移。另外, 随着工具转速的增加, FSP 样品在相同的变形温度和应变

速率下的流变应力也有所降低。与未添加稀土镁合金相比, Mg-Zn-Y-Zr 显示了较高的流变应力, 这主要是由于耐热镁合金的较高热稳定性。图中还显示了不同转速下 FSP 样品在 $3 \times 10^{-4} \sim 1 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ 的初始应变速率范围内, 应变速率敏感指数 (m) 均约为 0.5, 较高的应变速率敏感指数意味着镁合金的抗颈缩发展能力好, 晶界滑移为超塑性的主要变形机制^[30]。

图 9 为未超塑性测试样品和不同转速下 FSP 样品在不同变形温度和初始应变速率下超塑性测试直到断裂的样品形貌。这些宏观样品均展示了无明显颈缩的延伸状态, 显示了均匀的超塑性变形特点。图 10 分别为不同工具转速下的 FSP 样品在不同应变速率和变形温度进行超塑性变形直至断裂后的表

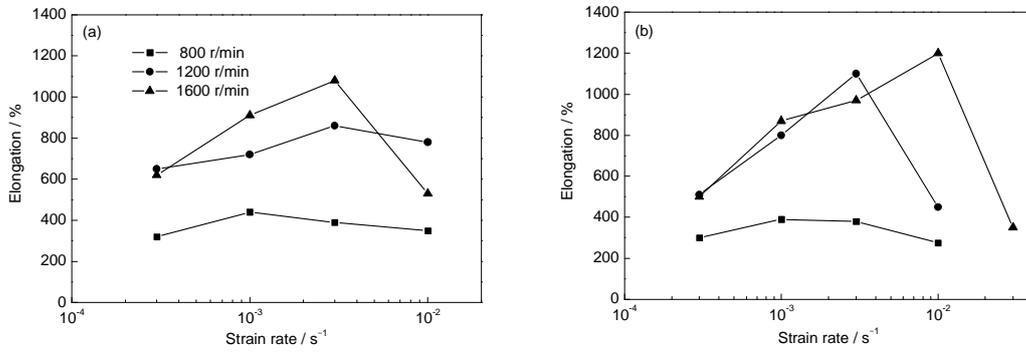


图 7 不同转速 FSP 样品在不同变形温度下的初始应变速率与延伸率之间的关系

Fig.7 Relationships of elongation with initial strain rate at 400 °C (a) and 450 °C (b) for FSP samples at rotation rates of 800, 1200 and 1600 r/min with traverse speed of 100 mm/min

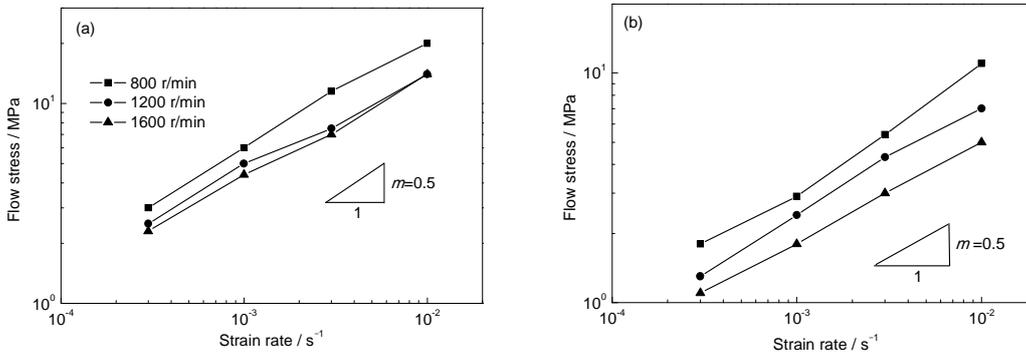


图 8 不同转速 FSP 样品在不同温度下初始应变速率与流变应力的关系

Fig.8 Relationships of flow stress with initial strain rate at 400 °C (a) and 450 °C (b) for FSP samples at rotation rates of 800, 1200 and 1600 r/min (m —strain rate sensitive exponent)



图 9 不同转速下 FSP 样品超塑性测试的拉伸样品形貌

Fig.9 Macrographs of untested and failed tensile FSP specimens at rotation rates of 800 r/min (a), 1200 r/min (b) and 1600 r/min (c) at test temperatures of 400 °C (a) and 450 °C (b, c)

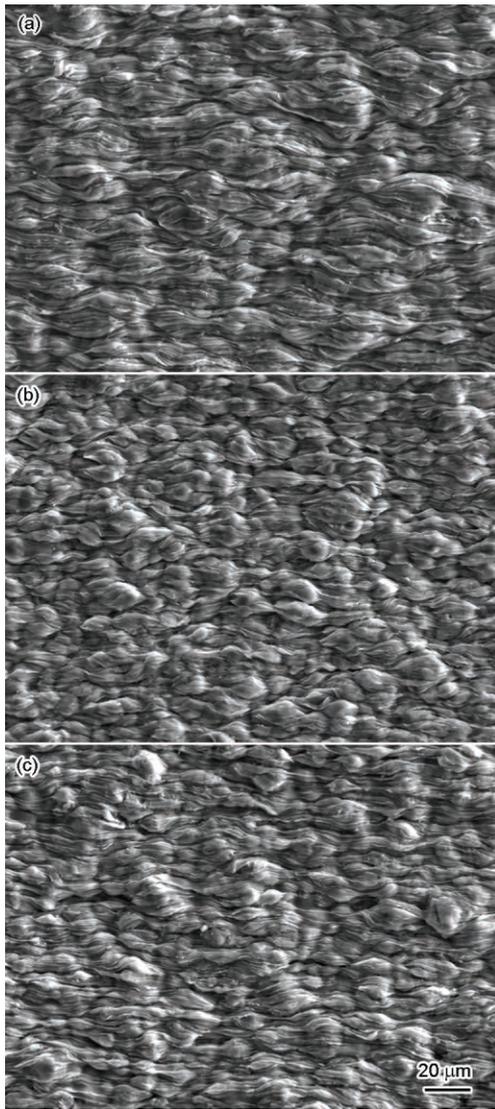


图 10 不同转速下 FSP 样品在超塑性变形后的表面 SEM 像

Fig.10 SEM images of fracture surface of FSP samples at 800 r/min deformed under 400 °C and $1 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ (a), at 1200 r/min deformed under 450 °C and $3 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ (b) and at 1600 r/min deformed under 450 °C and $1 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ (c)

面形貌 SEM 像。由图可见,不同条件下的超塑性变形均表现出了明显的晶界滑移特征,并且随着工具转速的增加,晶粒逐渐变细,说明转速的增加使晶粒在高温下的热稳定性逐渐增强。

3 讨论

由于传统的 AZ 和 ZK 系镁合金中的第二相 $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ 和 Mg-Zn 相具有较低的热稳定性,较难提高镁合金的高温性能,因此目前大量研究^[5-7]采用向传统镁合金中添加 Y、Nd、Ce 等稀土元素的方法来改善镁合金的高温性能。由于添加了稀土元素后,镁合金中会形成具有高热稳定的第二相,因此耐热镁合金获得了优异的高温性能。对于 Mg-Zn-Y-Zr 合

金, Y 元素的加入使合金中形成了 Mg-Zn-Y 三元共晶相,根据 Zn/Y 比的不同在合金中会形成 I 相和 W 相,二者具有不同的热稳定性,其中 W 相(共晶点 510 °C)具有更高的热稳定性。

在本工作中,采用的 Mg-7Zn-1.2Y-0.8Zr 合金含有 W 相,因而具有较高的热稳定性。事实上,除了 W 相本身以外, W 相的尺寸和分布状态对热稳定性的影响也很大。FSP 过程中高速旋转的螺纹搅拌针对 W 相具有显著的破碎和弥散化作用,而且随着工具转速的增加 W 相被细化和弥散化的程度更明显,这些细小弥散分布的 W 相将对晶界产生强烈的钉扎作用,抑制了再结晶晶粒的长大,获得了平均晶粒尺寸 $< 10 \mu\text{m}$ 的等轴细晶。因而,随着工具转速的增加,被细化的 W 相不仅增强了 Mg-Zn-Y-Zr 合金的热稳定性,还在一定程度上细化了再结晶晶粒。另外,细化的第二相也能够显著降低超塑性变形过程中的孔洞,继而改善超塑性^[9]。

耐热镁合金 Mg-Zn-Y-Zr 进行 FSP 后,获得了细小、弥散的热稳定 W 相以及细小、等轴、均匀的再结晶晶粒,这为实现 Mg-Zn-Y-Zr 耐热镁合金的高应变速率超塑性提供了基本的保障。然而,除了这 2 个因素,晶界特征也十分重要,其中高角晶界有利于发生晶粒的滑动或转动,对超塑性变形十分有利^[31]。图 5 和 6 显示,与热挤压态的原始 Mg-Zn-Y-Zr 相比, FSP 样品的高角晶界比例显著增加。这主要是由于 FSP 下被粉碎的大量弥散分布在晶内的细小 W 相将作为动态再结晶的形核质点,变形过程中大量位错将在这些质点附近塞积,进一步增加材料变形储能,因而极大地促进了动态再结晶过程,使得高角晶界比例显著增加。类似地, Ball 等^[32]报道了稀土元素对于动态再结晶过程的影响规律。

不同于热轧和 ECAP 等近等温的热加工过程, FSP 是一个快速升温 and 快速冷却的热加工过程,尤其是在低热输入 FSP 过程中峰值温度较低且冷速较快,往往容易使部分塑性变形特征被保留到室温^[33]。Mironov 等^[34]此前报道,在 400 r/min 的工具转速和 30 mm/min 行进速度的低热输入参数下对奥氏体不锈钢进行 FSP,在 FSP 样品中发现含有一定量的剪切纤维组织残留。同时,与 Al 的层错能 (166 mJ/m^2) 相比, Mg 的层错能 ($60 \sim 78 \text{ mJ/m}^2$) 较低,扩展位错很宽,难以从节点和位错网中解脱,很难通过交滑移和攀移与异号位错抵消,位错容易聚集^[35]。正基于此,在 FSP 的较低热输入下镁合金 FSP 样品中往往容易保留一定比例的低角晶界。而 FSP 的高热输入条件下,加工过程中的峰值温度较高且加工

后冷速较慢,不容易保留变形组织特征。另外,基于Zener-Hollomon参数关系,采用高应变速率和高温度的高工具转速可促进再结晶过程,因此可以获得高比例的高角晶界。因此,随着FSP工具转速的增加,高热输入和强变形将导致高角晶界的显著增加,这些高比例的高角晶界将会极大地促进超塑性变形过程。

通常,热加工金属材料的EBSD错配角分布与结构特征具有特定的对应关系。Feng等^[28]报道显示,FSP镁合金中的结构主要由基面滑移和锥面孪晶导致,30°和90°左右的晶界错配角峰值分别对应着基面纤维结构和锥面结构。图6显示随着工具转速的增加,FSP样品中的30°左右晶界错配角分布比例明显下降,这意味着基面纤维结构被弱化。在800 r/min的较低热输入下,加工温度低且加工后的冷却速率快,变形组织容易被保留。在FSP镁合金过程中,镁合金(0002)基面沿着搅拌工具呈带状分布,带状分布与洋葱环相对应,镁合金的〈c〉轴垂直于FSP横截面样品的表面(与FSP方向一致),在样品表面显示为基面纤维结构特征^[36]。随着工具转速的增加,高热输入使变形组织难以保留,基面纤维结构降低。图6中还显示,随着工具转速的增加,FSP样品的晶界错配角分布更加趋近于随机分布晶界,进一步印证了FSP样品结构的弱化。

由于镁合金中稀土元素的添加,极大地改善了材料的高温力学性能,尤其是高温超塑性性能。对于Mg-Zn-Y-Zr合金,通过FSP加工获得了细小的等轴再结晶晶粒、细小弥散的W相以及高比例的高角晶界。在超塑变形过程中,等轴细晶有利于高温变形过程中的晶粒转动,细小弥散的W相有效地抑制了等轴晶粒的高温粗化,而高比例的高角度晶界进一步促进了等轴晶粒的转动。随着工具转速的增加,晶粒进一步细化、W相更加细小弥散且高角晶界比例也显著增加,因而进一步改善了超塑性性能。在1600 r/min的最高转速下,FSP样品在 $1 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ 的高应变速率和较高的变形温度450℃下获得了最高的延伸率1200%。

事实上,除了晶粒、第二相以及晶界特征外,结构对于超塑性性能也有很大的影响。Agnew等^[37]报道显示,当镁合金的〈c〉轴垂直于超塑性拉伸方向时,超塑性变形过程中仅开动柱面滑移,而当镁合金的〈c〉轴随机分布时,超塑性变形过程中则可能同时开动锥面和柱面滑移。因此,对于800 r/min工具转速下的FSP样品,其较强的基面纤维结构对于超塑性性能不利,而对于1200和1600 r/min工具转速下的FSP

样品,超塑性变形的最大延伸率和最佳应变速率均有显著提升,其较弱的结构对改善超塑性有益。

图11对不同工具转速下FSP样品的超塑性变形数据进行了归一化,图中黑色实线是晶界滑移为控制机制的细晶镁合金超塑性本构方程^[38],如下所示:

$$\dot{\varepsilon} = 2 \times 10^5 \left(\frac{D_0 G b}{kT} \right) \exp \left(-\frac{92000}{RT} \right) \left(\frac{b}{d} \right)^3 \left(\frac{\sigma - \sigma_0}{G} \right)^2 \quad (1)$$

式中, $\dot{\varepsilon}$ 为应变速率, D_0 为预扩散系数, G 为剪切模量, b 为Burgers矢量模, k 为Boltzmann常数, T 为热力学温度, R 为气体常数, d 为晶粒尺寸, σ 为流变应力, σ_0 为门槛应力。在本工作的FSP Mg-Zn-Y-Zr中,由于不同工具转速下FSP样品在不同的变形温度和初始应变速率条件下的应变敏感指数均稳定在0.5左右,因而所在变形温度和应变速率范围内的门槛应力可不做考虑^[24]。

图11中可以看出,不同工具转速下FSP样品的超塑性拟合曲线与镁合金超塑性本构方程具有相同的斜率,这进一步说明了晶界滑移为FSP Mg-Zn-Y-Zr合金的主要超塑性变形机制。随着工具转速的增加,FSP样品的超塑动力学不断加速,在1600 r/min工具转速下,Mg-Zn-Y-Zr合金的超塑动力学已经与镁合金的理想本构方程相吻合,即在1600 r/min工具转速下FSP样品的超塑性动力学的无量纲常数(A值)已经达到了理想的 2×10^5 。

Wang等^[18]报道,对于不同热加工条件下获得的具有类似晶粒尺寸的细晶铝合金,随着高角晶界比例的增加,超塑性动力学发生了明显的加速现象。大量研究^[3,4]表明,对于采用热轧、ECAP等热加工方

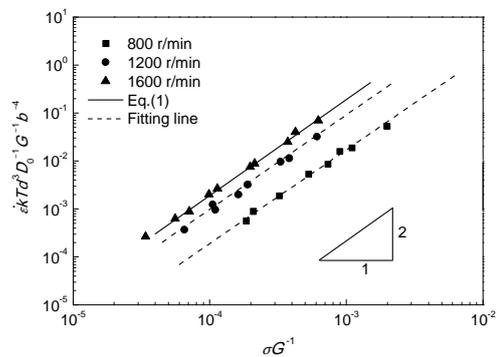


图11 $\dot{\varepsilon} k T d^3 D_0^{-1} G^{-1} b^{-4}$ 与 σG^{-1} 之间的关系

Fig.11 Relationships between $\dot{\varepsilon} k T d^3 D_0^{-1} G^{-1} b^{-4}$ and normalized effective stress σG^{-1} for FSP samples at rotation rates of 800, 1200 and 1600 r/min ($\dot{\varepsilon}$ —strain rate, σ —flow stress, D_0 —pre-exponential constant for diffusivity, G —shear modulus, b —Burgers vector, k —Boltzmann's constant, T —absolute temperature, R —gas constant, d —grain size)

式所制备的细晶镁合金,超塑性动力学通常慢于本构方程(1)。这主要与ECAP或轧制的细晶镁合金中含有的高密度位错等亚结构有关。在这些镁合金的超塑变形过程中,除发生晶界滑移外,还存在晶内位错迁移,另外这些变形镁合金中存在的强基面织构对超塑性变形也有影响。然而,在FSP Mg-Zn-Y-Zr耐热镁合金中,因其高比例的高角晶界、尺寸适中的等轴细晶组织、细小、弥散的耐高温第二相颗粒以及较弱的织构,使得在不同变形条件下的超塑变形均以稳定的晶界滑移机制为主,这些因素是实现高应变速率超塑性和超塑动力学加速的关键。

4 结论

(1) 在不同的工具转速条件下对6 mm厚的热挤压态Mg-Zn-Y-Zr耐热镁合金板材进行了FSP,最终获得了由均匀、细小的等轴再结晶晶粒和细小、弥散的W相颗粒组成的高质量FSP样品。

(2) 随着工具转速的增加,由于热输入和塑性变形程度的增加,W相颗粒被显著细化并均匀弥散分布,高角晶界比例大幅增加,晶粒尺寸被一定程度细化,并且织构也逐渐变弱。

(3) 随着工具转速的增加,最大延伸率和最佳应变速率不断增加,在1600 r/min工具转速下的FSP样品中,在 $1 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ 的高应变速率和450 °C的变形温度下,获得了1200%的最大延伸率。

(4) 对于不同转速下FSP样品,在 $1 \times 10^{-3} \sim 1 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ 的应变速率范围,400和450 °C的变形温度,晶界滑移为Mg-Zn-Y-Zr合金超塑性的主要变形机制。随着工具转速的增加,超塑性动力学被显著加速,在1600 r/min工具转速的FSP样品中,由于高比例的高角晶界、尺寸适中的等轴细晶组织、细小弥散的耐高温第二相颗粒以及较弱的织构的贡献,超塑动力学与理想的细晶镁合金超塑性本构方程相吻合。

参考文献

[1] Polmear I J. Light Alloys: Metallurgy of the Light Metals [M]. 3rd Ed., London: Butterworth-Heinemann, 1995: 1
 [2] Avedesian M M, Baker H. Magnesium and Magnesium Alloys [M]. 2nd Ed., Ohio: ASM International, 1999: 1
 [3] Watanabe H, Mukai T, Kohzu M, et al. Effect of temperature and grain size on the dominant diffusion process for superplastic flow in an AZ61 magnesium alloy [J]. Acta Mater., 1999, 47: 3753
 [4] Watanabe H, Mukai T, Ishikawa K, et al. Low temperature superplasticity of a fine-grained ZK60 magnesium alloy processed by equal-channel-angular extrusion [J]. Scr. Mater., 2002, 46: 851
 [5] Al-Samman T. Modification of texture and microstructure of magne-

sium alloy extrusions by particle-stimulated recrystallization [J]. Mater. Sci. Eng., 2013, A560: 561
 [6] Hantzsche K, Bohlen J, Wendt J, et al. Effect of rare earth additions on microstructure and texture development of magnesium alloy sheets [J]. Scr. Mater., 2010, 63: 725
 [7] Hou X L, Zhai Y X, Zhang P, et al. Rare earth texture analysis of rectangular extruded Mg alloys and a comparison of different alloying adding ways [J]. Rare Met., 2016, 35: 850
 [8] Xie G M, Ma Z Y, Geng L, et al. Microstructural evolution and mechanical properties of friction stir welded Mg-Zn-Y-Zr alloy [J]. Mater. Sci. Eng., 2007, A471: 63
 [9] Zheng M Y, Xu S W, Wu K, et al. Superplasticity of Mg-Zn-Y alloy containing quasicrystal phase processed by equal channel angular pressing [J]. Mater. Lett., 2007, 61: 4406
 [10] Bae D H, Kim Y, Kim I J. Thermally stable quasicrystalline phase in a superplastic Mg-Zn-Y-Zr alloy [J]. Mater. Lett., 2006, 60: 2190
 [11] Tang W N, Chen R S, Han E H. Superplastic behaviors of Mg-Zn-Y-Zr alloy processed by extrusion and equal channel angular extrusion [J]. J. Alloys Compd., 2009, 477: 636
 [12] Xu S W, Zheng M Y, Kamado S, et al. The microstructural evolution and superplastic behavior at low temperatures of Mg-5.00Zn-0.92Y-0.16Zr (wt.%) alloys after hot extrusion and ECAP process [J]. Mater. Sci. Eng., 2012, A549: 60
 [13] Mishra R S, Ma Z Y. Friction stir welding and processing [J]. Mater. Sci. Eng., 2005, R50: 1
 [14] Padhy G K, Wu C S, Gao S. Friction stir based welding and processing technologies- processes, parameters, microstructures and applications: A review [J]. J. Mater. Sci. Technol., 2018, 34: 1
 [15] Chen Y C, Liu H J, Feng J C. Friction stir welding characteristics of different heat-treated-state 2219 aluminum alloy plates [J]. Mater. Sci. Eng., 2006, A420: 21
 [16] Yang C, Wang J J, Ma Z Y, et al. Friction stir welding and low-temperature superplasticity of 7B04 Al sheet [J]. Acta Metall. Sin., 2015, 51: 1449
 (杨超, 王继杰, 马宗义等. 7B04铝合金薄板的搅拌摩擦焊接及接头低温超塑性研究 [J]. 金属学报, 2015, 51: 1449)
 [17] Ma Z Y, Liu F C, Mishra R S. Superplastic deformation mechanism of an ultrafine-grained aluminum alloy produced by friction stir processing [J]. Acta Mater., 2010, 58: 4693
 [18] Wang K, Liu F C, Xue P, et al. Superplastic constitutive equation including percentage of high-angle grain boundaries as a microstructural parameter [J]. Metall. Mater. Trans., 2016, 47A: 546
 [19] Ma Z Y, Mishra R S. Friction Stir Superplasticity for Unitized Structures [M]. Waltham: Elsevier, 2014: 1
 [20] Yang Q, Feng A H, Xiao B L, et al. Influence of texture on superplastic behavior of friction stir processed ZK60 magnesium alloy [J]. Mater. Sci. Eng., 2012, A556: 671
 [21] Chai F, Zhang D T, Li Y Y, et al. High strain rate superplasticity of a fine-grained AZ91 magnesium alloy prepared by submerged friction stir processing [J]. Mater. Sci. Eng., 2013, A568: 40
 [22] Zhang D T, Wang S X, Qiu C, et al. Superplastic tensile behavior of a fine-grained AZ91 magnesium alloy prepared by friction stir processing [J]. Mater. Sci. Eng., 2012, A556: 100

- [23] Xie G M, Luo Z A, Ma Z Y, et al. Superplastic behavior of friction stir processed Zk60 magnesium alloy [J]. *Mater. Trans.*, 2011, 52: 2278
- [24] Xie G M, Ma Z Y, Geng L, et al. Microstructural evolution and enhanced superplasticity in friction stir processed Mg-Zn-Y-Zr alloy [J]. *J. Mater. Res.*, 2008, 23: 1207
- [25] Yang Q, Xiao B L, Ma Z Y, et al. Achieving high strain rate superplasticity in Mg-Zn-Y-Zr alloy produced by friction stir processing [J]. *Scr. Mater.*, 2011, 65: 335
- [26] Yang J, Wang D, Xiao B L, et al. Effects of rotation rates on microstructure, mechanical properties, and fracture behavior of friction stir-welded (FSW) AZ31 magnesium alloy [J]. *Metall. Mater. Trans.*, 2013, 44A: 517
- [27] Xie G M, Ma Z Y, Geng L. Effects of friction stir welding parameters on microstructures and mechanical properties of ZK60 magnesium alloy joints [J]. *Acta Metall. Sin.*, 2008, 44: 665
(谢广明, 马宗义, 耿林. 搅拌摩擦焊接参数对 ZK60 镁合金接头微观组织和力学性能的影响 [J]. *金属学报*, 2008, 44: 665)
- [28] Feng A H, Ma Z Y. Microstructural evolution of cast Mg-Al-Zn during friction stir processing and subsequent aging [J]. *Acta Mater.*, 2009, 57: 4248
- [29] Kim W J, Park J D, Kim W Y. Effect of differential speed rolling on microstructure and mechanical properties of an AZ91 magnesium alloy [J]. *J. Alloys Compd.*, 2008, 460: 289
- [30] Langdon T G. A unified approach to grain boundary sliding in creep and superplasticity [J]. *Acta Metall. Mater.*, 1994, 42: 2437
- [31] Ma Z Y, Mishra R S, Mahoney M W. Superplastic deformation behaviour of friction stir processed 7075Al alloy [J]. *Acta Mater.*, 2002, 50: 4419
- [32] Ball E A, Pangnell P B. Tensile-compressive yield asymmetries in high strength wrought magnesium alloys [J]. *Scr. Metall. Mater.*, 1994, 31: 111
- [33] Abbasi M, Nelson T W, Sorensen C D. Transformation and deformation texture study in friction stir processed API X80 pipeline steel [J]. *Metall. Mater. Trans.*, 2012, 43A: 4940
- [34] Mironov S, Sato Y S, Kokawa H, et al. Structural response of super-austenitic stainless steel to friction stir welding [J]. *Acta Mater.*, 2011, 59: 5472
- [35] Sastry D H, Prasad Y V R K, Vasu K I. On the stacking fault energies of some close-packed hexagonal metals [J]. *Scr. Metall.*, 1969, 3: 927
- [36] Woo W, Choo H, Brown D W, et al. Texture variation and its influence on the tensile behavior of a friction-stir processed magnesium alloy [J]. *Scr. Mater.*, 2006, 54: 1859
- [37] Agnew S R, Yoo M H, Tome C N. Application of texture simulation to understanding mechanical behavior of Mg and solid solution alloys containing Li or Y [J]. *Acta Mater.*, 2001, 49: 4277
- [38] Watanabe H, Hosokawa H, Mukai T, et al. The processing and properties of superplastic magnesium alloys and their composites [J]. *Mater. Jpn.*, 2000, 39: 347

(责任编辑:毕淑娟)