

LPSO 堆垛结构转变对挤压态 Mg-2.0Zn-0.3Zr-5.8Y 镁合金组织性能的影响

吕滨江¹, 彭建^{2,3}, 梁鹏¹, 王进¹

(1. 青岛理工大学, 山东 青岛 266520)

(2. 重庆大学, 重庆 400044)

(3. 机械传动国家重点实验室, 重庆 400045)

摘要: 通过改变挤压温度以获得含有不同堆垛结构长周期相 (LPSO) 的 Mg-2.0Zn-0.3Zr-5.8Y 合金, 研究 LPSO 相堆垛结构转变对挤压态合金组织性能的影响规律及其作用机制。结果表明: 挤压温度为 390 °C, 合金中有 18R 和 14H 2 种堆垛结构的 LPSO 相, 其平均晶粒尺寸为 $(9.5 \pm 3.0) \mu\text{m}$, 合金的抗拉强度达到 280 MPa, 延伸率为 18.7%; 当变形温度达到 420 °C, 合金中 18R LPSO 相全部转变为 14H 结构, 平均晶粒尺寸大幅细化至 $(3.1 \pm 1.1) \mu\text{m}$, 合金的抗拉强度和延伸率均得到明显提高, 分别达到 330 MPa 和 20.8%; 随着挤压温度的进一步提高, 合金的平均晶粒尺寸逐渐变大, 强度和延伸率开始逐渐降低。由于 LPSO 相堆垛结构转变和晶粒尺寸变化引起基面织构和柱面织构的强度发生变化, LPSO 相形态改变以及晶粒细化是 Mg-2.0Zn-0.3Zr-5.8Y 挤压态合金室温力学性能变化的主要因素。

关键词: 长周期相; 挤压温度; 组织; 性能

中图分类号: TG146.2+2

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2016)11-2861-06

镁合金作为最轻的结构材料, 具有高的比强度、比刚度及弹性模量等优点, 正越来越多的应用在航空航天、交通运输和电子等领域^[1,2]。然而, 目前商用的镁合金普遍存在强度不高和塑性较差的问题, 大大限制了其在更多领域的广泛应用。

2001 年, A. Inoue^[3]通过快速凝固技术(RS/PM)制备的 Mg97Y2Zn1(at%) 合金具有优良的力学性能, 晶粒大幅细化和长周期相 (Long period stacking order phase, LPSO 相) 使合金的抗拉强度达到 600 MPa, 其延伸率达到 5%。T. Itoi 等^[4]通过纳米压痕实验研究表明, LPSO 相的硬度值 (HV) 为 870 MPa, 远高于镁基体的硬度值 (570 MPa), 说明 LPSO 相是合金中的强化相。LPSO 相还具有高的弹性模量及较高的热稳定性, 且与基体成共格关系, 有利于提高变形镁合金的综合力学性能^[5,6]。LPSO 相具有多种原子堆垛结构, 如 10H ($a=0.325 \text{ nm}$, $c=2.603 \text{ nm}$)、14H ($a=0.325 \text{ nm}$, $c=3.694 \text{ nm}$)、18R ($a=0.320 \text{ nm}$, $c=4.678 \text{ nm}$) 和 24R ($a=0.322 \text{ nm}$, $c=6.181 \text{ nm}$) 等晶体结构类型^[7]。其中, 铸态或较低温度进行短时间热处理的 Mg-Zn-Y 合金中的 LPSO 相主要为 18R LPSO 结构。LPSO 经过高温

热处理或热加工可以由 18R 结构转变为 14H 结构^[8,9]。

近年来, 有学者分别针对 14H 和 18R 2 种堆垛结构的 LPSO 相对镁合金组织性能的影响进行了深入研究^[10-12]。K. Hagihara 等^[13-15]人针对 18R 和 14H LPSO 结构对 Mg12YZn 合金的塑性变形行为进行了研究。研究发现, 14H LPSO 结构的变形机制与 18R LPSO 相基本相同。B. J. Lv^[16,17]研究了 18R 和 14H 2 种堆垛结构的 LPSO 相在热变形过程中对动态再结晶行为的影响规律及其作用机制, 并发现 2 种堆垛结构的 LPSO 相对动态再结晶晶粒长大的阻碍作用不同。在镁合金热加工过程中, 因为受较高变形温度的影响, LPSO 相可能会发生堆垛结构的转变, 进而对变形产品的组织及力学性能产生影响。然而, 目前针对热变形过程中 LPSO 相堆垛结构转变对镁合金组织性能的影响未有相关研究报告。因此, 研究在高温变形过程中 LPSO 相堆垛结构的转变行为及其对合金组织性能的影响, 对于控制变形镁合金的组织性能和产品质量具有重要意义。

本研究以 Mg-2.0Zn-0.3Zr-5.8Y 合金为研究对象, 通过改变挤压温度使合金中的 LPSO 相 (18R 和 14H) 发生堆垛结构转变, 并深入研究探讨 LPSO 相堆垛结

收稿日期: 2015-11-15

基金项目: 国家“十二五”支撑计划(2011BAE22B03-3); 科技部国际合作项目(2011DFA5090)

作者简介: 吕滨江, 男, 1983 年生, 博士, 讲师, 青岛理工大学机械工程学院, 山东 青岛 266520, E-mail: lbj818@163.com

构转变对合金组织和性能的影响规律及其作用机理。

1 实验

合金原料包括纯 Mg (99.5%)、纯 Zn (99.9%) 和 Mg-31%Zr 中间合金和 Mg-30%Y 中间合金, 用低碳钢坩埚在 60 kW 电阻炉中精炼。加入经过预热温度高于 150 °C 的镁锭, 升温到 350~400 °C, 保温 20 min。升温至 720~730 °C, 镁锭全部熔化后, 清除熔液表面熔渣。在熔体液面补加 5 号熔剂。随后加入纯 Zn, 搅拌 3~5 min, 加 5 号熔剂覆盖熔液表面。升温至 760 °C, 清除熔液表面熔渣, 加入 Mg-31%Zr 中间合金和 Mg-30%Y 中间合金, 对熔液进行搅拌 3~5 min。再次清除熔液表面熔渣, 在熔液表面覆盖适量 5 号熔剂, 并静置 20 min。电阻炉断电后, 待炉温降至 710 °C, 通过水冷半连续铸造系统浇铸成 $\Phi 92$ mm 的铸锭。整个熔炼和浇注过程中采用 CO₂ (99%, 体积分数) 和 SF₆ (1%, 体积分数) 混合气氛进行保护, 5 号熔剂作为精炼剂和覆盖剂。经激光光谱仪检测的实际成分为 Mg-2.0Zn-0.3Zr-5.8Y (质量分数, %), 见表 1。

铸锭在带风循环的 12 kW 箱式电阻炉中进行 480 °C/12 h 均匀化退火处理, 以消除铸锭的枝晶偏析及成分偏析。在 5000 kN 卧式挤压机上进行挤压生产试验, 挤压温度分别为 390、420、450 和 480 °C。挤压比为 28:1, 挤压杆速度为 1.5 mm/s, 挤压制品直径为 $\Phi 16$ mm。在新三思 CMT-5105 电子万能材料试验机上进行室温拉伸测试, 拉伸速度为 4 mm/min, 拉伸试样尺寸如图 1 所示。挤压态试样在挤压棒材的横截面上截取, 用苦味酸腐蚀剂腐蚀, 采用 OLYMPUS LEXT OLS4000 3D 激光显微镜进行组织观察并拍摄显微组织照片。通过 Image Pro-plus 6.0 (IPP 6.0) 软件对挤压态晶粒尺寸进行统计, 采用截线法对同一种合金在相同倍数下的多张金相照片进行统计并取晶粒尺寸的平均值。通过 Rigaku D/max-1200 型 X 射线衍射仪 (Cu 靶, K α) 对挤压态试样宏观变形织构进行分析。高倍显微组织形貌扫描采用 TESCAN 公司的 VEGA II LMU 可变真空电子扫描显微镜 (SEM) 进行。通过 ZEISS LIBRA200 场发射透射电镜 (TEM) 对试样进行高倍形貌和选区衍射分析, 电压为 200 kV。

2 结果与分析

2.1 LPSO 相堆垛结构演变

通过 TEM 及选取衍射斑点对不同变形温度下挤

表 1 实验合金化学成分

Table 1 Chemical component of the alloy ($\omega/\%$)

Alloy	Zn	Zr	Y	Mg
Mg-2.0Zn-0.3Zr-5.8Y	2.0	0.30	5.8	Bal.

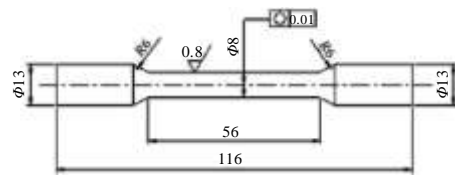


图 1 拉伸试样尺寸图

Fig.1 Sketch map of tensile sample

压态合金中的 LPSO 相进行分析, 结果如图 2 所示。结果表明, 当挤压温度为 390 °C, 挤压态合金中的 LPSO 相有 2 种堆垛结构 (分别为 18R 和 14H)。当挤压温度升高至 420 °C, 挤压态合金中的 18R LPSO 相已经全部转变为 14H 堆垛结构。随着挤压温度的继续升高, 合金中的 LPSO 相堆垛结构不再发生变化, 均为 14H 类型。

J. E. Saal 通过密度泛函理论 (DFT) 计算结合实验验证发现, 18R LPSO 结构向 14H LPSO 结构转变所需要的能量为 $-28 \text{ meV atom}^{-1}$, 转变过程为: $\text{Mg}_{30}\text{Y}_4\text{Zn}_3(18\text{R Gradual})+6\text{Mg} \rightarrow \text{Mg}_{35}\text{Y}_4\text{Zn}_3(14\text{H Gradual})^{[18]}$ 。14H 结构的 LPSO 相比 18R 结构更加稳定^[18], 这与 18R 结构经过热处理或热变形倾向于转变为 14H 结构 LPSO 相的实验结果相一致。

Mg-2.0Zn-0.3Zr-5.8Y 铸态合金中的 LPSO 相为 18R 结构。经过均匀化退火 (420 °C/12 h)、挤压前预处理 (390 °C/2 h) 和挤压温度为 390 °C 的热挤压过程后, 由于变形之前的预热提供了一定的能量, 变形过程中挤压机挤压筒提供的热量以及变形过程中产生的热量, 使合金中部分 18R LPSO 相向 14H 结构转变。随着变形前预热温度和挤压变形温度继续升高至 420 °C, 或更高的温度 (450 和 480 °C), 合金中的 18R LPSO 相在变形过程中已经全部转化为 14H 结构, 如图 2 所示。

2.2 挤压态合金显微组织

图 3 和图 4 分别为不同挤压温度下试样的显微组织照片。不同变形温度下合金的平均晶粒尺寸统计和 LPSO 相种类列于表 2。从表 2 中可以看出, 挤压温度为 390 °C 时, 合金的平均晶粒尺寸为 $(9.5 \pm 3.0) \mu\text{m}$; 当挤压温度增大至 420 °C, 合金的晶粒得到明显细化, 平均晶粒尺寸减小至 $(3.1 \pm 1.1) \mu\text{m}$; 随着变形温度的继续升高, 合金的晶粒又逐渐粗化。有研究表明^[16,17], 含有 18R LPSO 相的 Mg-2.0Zn-0.3Zr-5.8Y 合金中的层错和扭折变形带会阻碍动态再结晶晶粒的长大; 当含有 18R LPSO 相的 Mg-2.0Zn-0.3Zr-5.8Y 合金经过高温

热处理会转变为 14H LPSO 相, 发生转变后合金中的层错数量会减少, 但颗粒状或块状的 18RLPSO 相会

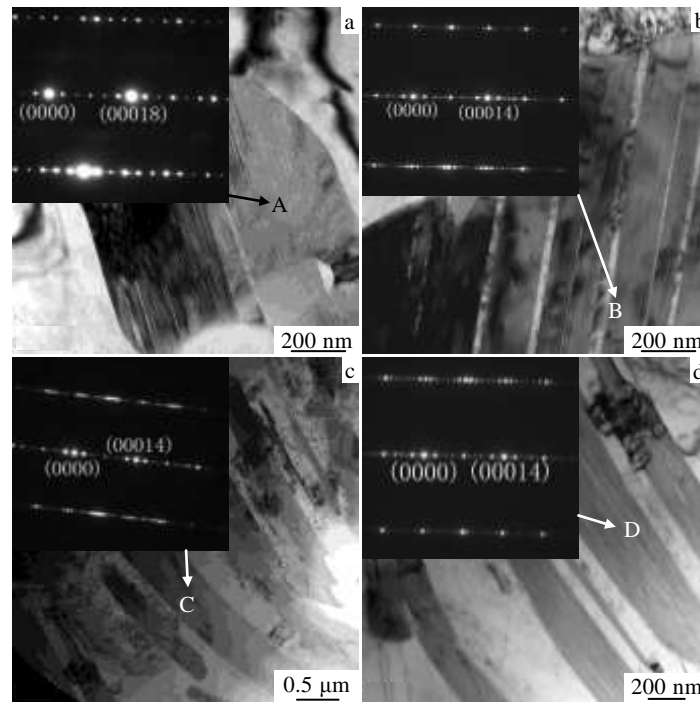


图 2 不同挤压温度合金的 TEM 明场相及选区电子衍射斑

Fig.2 TEM bright field images and selected area electron diffraction spot of alloys at different extrusion temperatures: (a) 390 °C (18R LPSO), (b) 390 °C (14H LPSO), (c) 420 °C (14H LPSO), and (d) 450 °C (14H LPSO)

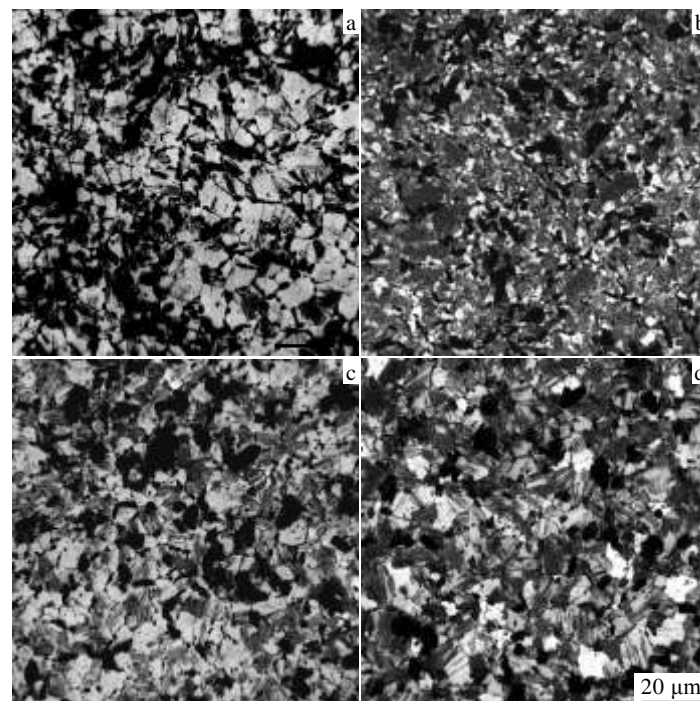


图 3 不同挤压温度合金的金相照片

Fig.3 OM images of alloys at different extrusion temperatures: (a) 390 °C, (b) 420 °C, (c) 450 °C, and (d) 480 °C

转变为细小层片状的 14H LPSO 相, 这使得含 14H LPSO 相的 Mg-2.0Zn-0.3Zr-5.8Y 合金阻碍动态再结晶

的能力要大于含 18 LPSO 相的相同成分合金。在本实验中, 在 390 °C 挤压变形时, 合金中既有 18R LPSO

相，也有一定数量的 14H LPSO 相。当变形前的预热 温度和挤压变形温度提高至 420 °C 时，合金中的 18R

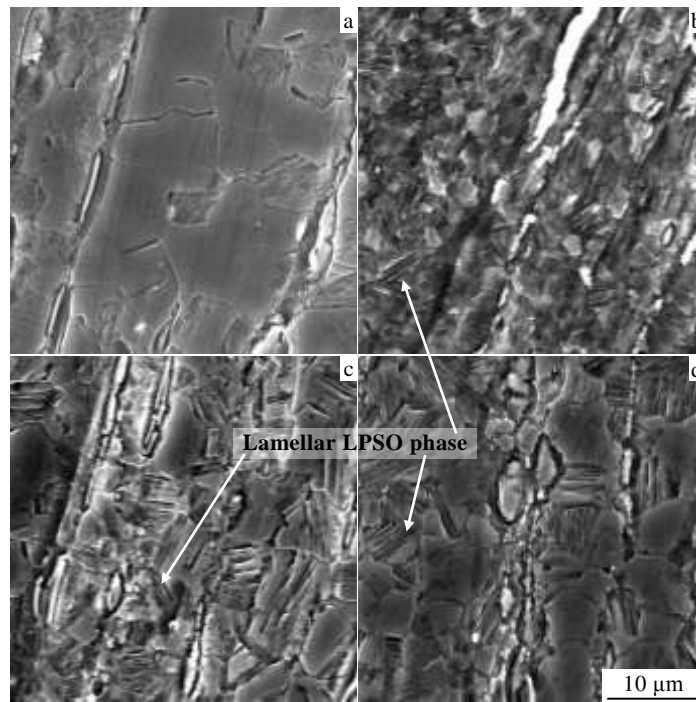


图 4 不同挤压温度合金的 SEM 照片

Fig.4 SEM images of alloys at different extrusion temperatures: (a) 390 °C, (b) 420 °C, (c) 450 °C, and (d) 480 °C

表 2 不同变形温度下合金中第二相种类及平均晶粒尺寸

Table 2 Second phase and average grain size of alloys at different extrusion temperatures

Extrusion temperature/°C	Stacking faults of LPSO phase	Average grain size/μm
390	18R+14H	9.5±3.0
420	14H	3.1±1.1
450	14H	7.2±2.1
480	14H	7.9±2.5

LPSO 相已经全部转变为 14H LPSO 相，14H LPSO 相呈细层片状贯穿整个晶粒分布（如图 4 所示），阻碍动态再结晶晶粒长大的作用较 18R 结构得到提高，使挤压态合金的晶粒得到大幅细化。当变形温度高于 420 °C，合金中的 LPSO 相全部为 14H 结构。随着变形温度的进一步提高，发生完全动态再结晶的晶粒长大作用逐渐明显，晶粒尺寸又开始逐渐增大。

2.3 挤压态合金宏观织构

对不同挤压温度的挤压棒进行横截面的宏观织构分析，极图如图 5 所示。当挤压温度为 390 °C，挤压态合金的 {0002} 基面织构和 {10 $\bar{1}$ 0} 柱面织构强度较弱，其基面平行于挤压方向。当挤压温度升高至 420 °C，挤压态合金的 {10 $\bar{1}$ 0} 柱面织构强度与 390 °C 时相比显著增大，晶粒的柱面择优取向增大。这是由于：变形温度的升高有利于非基面滑移系的激活；

420 °C 挤压变形时，合金中的 18R LPSO 全部转变为 14H

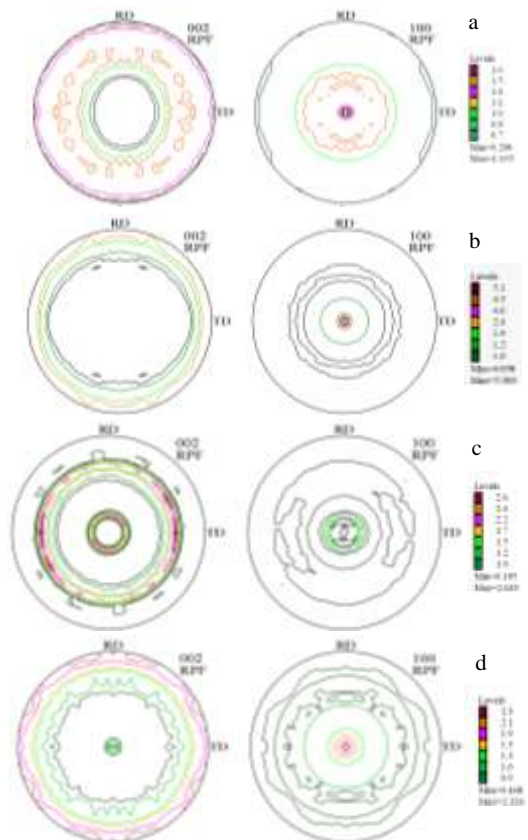


图 5 不同挤压温度合金的宏观组织

Fig.5 Pole figures of alloys at different extrusion temperatures:

(a) 390 °C, (b) 420 °C, (c) 450 °C, and (d) 480 °C

LPSO 相, 14H LPSO 相阻碍动态再结晶和再结晶晶粒长大的作用大于 18R 结构, 使挤压态合金的晶粒得到大幅细化^[16,17]。再结晶晶粒细化有利于变形过程中的晶粒转动和晶界移动, 容易使柱面和锥面等潜在滑移系激活^[19,20]。变形温度继续升高 (450 和 480 °C) 有利于非基面滑移系的启动, 但合金晶粒也随着变形温度的升高而不断粗化, 一些晶粒取向发生一定角度偏转, 使 {10 $\bar{1}$ 0} 柱面织构强度有所减弱。基面织构强度变化幅度并不大, 但晶粒取向更加随机。可以认为, 随着变形温度的变化, 使合金中 LPSO 相的堆垛结构及再结晶晶粒尺寸发生改变, 从而改变了合金的各种塑性变形模式在塑性变形过程中的作用和贡献, 进而使一些晶粒取向发生变化。

2.4 挤压态力学性能

通过对不同变形温度的挤压棒进行室温拉伸性能测试, 结果如图 6 所示。结果表明, 挤压态试样的抗拉强度和屈服强度随着变形温度的升高, 呈先增大后减小的趋势, 当变形温度为 420 °C 时, 抗拉强度达到最大值 330 MPa。当变形温度高于 420 °C, 随着变形温度的升高, 合金的强度不断减小。挤压态合金的延伸率也呈先增大后减小的趋势。变形温度为 390 °C 时, 合金延伸率为 18.7%; 当变形温度达到 420 °C, 延伸率增大至 20.8%; 当变形温度进一步提高至 450 和 480 °C 时, 延伸率随着挤压温度的升高开始不断降低。

W. Kim 等^[21]研究表明, 镁合金力学性能主要受晶粒尺寸和织构的影响。

不同堆垛结构的 LPSO 相在热变形过程中对动态再结晶晶粒长大的阻碍作用不同, 导致室温变形组织的晶粒度不同。挤压温度为 390 °C 时, 合金的平均晶粒尺寸为 (9.5±3.0) μm。当变形温度为 420 °C 时, 由于 LPSO 相堆垛结构及分布形态的转变, 热变形过程中阻碍动态再结晶晶粒长大的作用得到明显提高从而

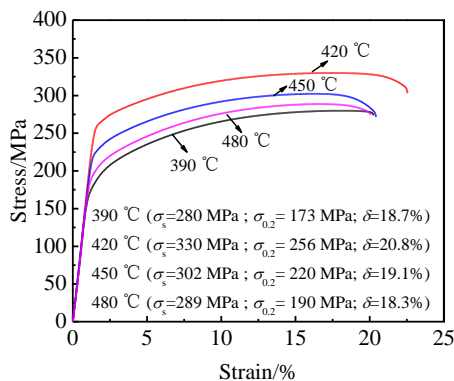


图 6 不同挤压温度合金的室温拉伸力学性能

Fig.6 Mechanical properties of alloys at different

extrusion temperatures

使晶粒得到大幅细化, 平均晶粒尺寸达到 (3.1±1.1) μm。由于堆垛结构发生转变, LPSO 相的形貌也发生了转变。块状的 18R LPSO 相转变为细层片状的 14H LPSO 相 (如图 4b~4d)。在室温拉伸过程中, 在基体中呈片层状的 14H LPSO 相阻碍位错运动的能力要大于 18R LPSO 结构。还由于 420 °C 挤压变形后, 柱面织构强度增大。在拉伸过程中, 表现出柱面择优取向的晶粒施密特因子较小, 临界剪切应力大^[22], 从而进一步提高了合金的强度。基面织构和柱面织构的增强不利于合金塑性的提高, 但由于其织构强度不高, 对塑性的影响作用小于晶粒细化。因此, 420 °C 挤压变形合金由于晶粒大幅细化使合金的延伸率还是得到了一定程度的提高。当变形温度高于 420 °C, 合金的 LPSO 相已全部转变为 14H 结构, 晶粒尺寸随着变形温度的升高而不断粗化, 且基面和柱面织构强度逐渐减弱, 因而当挤压温度高于 420 °C 时, 合金的强度和延伸率均逐渐下降。由于片层状 14H LPSO 相对基体的强化作用大于 18R 结构。因此, 挤压温度为 450 和 480 °C 的合金的抗拉强度均高于挤压温度为 390 °C 的合金。

综上所述, LPSO 相堆垛结构转变是引起合金晶粒细化的主要因素。晶粒细化、LPSO 相形貌转变以及织构等因素是引起不同挤压温度下合金力学性能改变的主要原因。

3 结 论

1) 挤压温度为 390 °C, Mg-2.0Zn-0.3Zr-5.8Y 合金中有 18R 和 14H 2 种堆垛结构的 LPSO 相; 当挤压温度达到或高于 420 °C, 合金中 LPSO 相全部为 14H 结构。

2) 由于 LPSO 相堆垛结构的转变, 变形温度为 420 °C 的挤压态合金晶粒尺寸得到大幅细化, 平均晶粒尺寸达到 (3.1±1.1) μm, 随着挤压温度的继续升高, 合金晶粒逐渐粗化。

3) LPSO 相堆垛结构和形态的转变细化了晶粒, LPSO 相形貌转变引起的基体强化作用以及织构强度变化是影响 Mg-2.0Zn-0.3Zr-5.8Y 挤压态合金室温力学性能的主要因素。挤压温度为 420 °C 时, 合金的综合力学性能达到最优, 抗拉强度达到 330 MPa, 延伸率为 20.8%。

- [1] Kainer K U, Kaiser F. *Magnesium Alloys and Technology*[M]. Weinheim: Wiley-VCH, 2003
- [2] Friedrich H E, Mordike B L. *Magnesium Technology*[M]. Berlin: Springer, 2006
- [3] Kawamura Y, Hayashi K, Inoue A *et al. Materials Transactions* [J], 2001, 42: 1171
- [4] Itoi T, Seimiya T, Kawamura Y *et al. Scripta Materialia*[J], 2004, 51(2): 107
- [5] Lv B J, Peng J, Peng Y *et al. Rare Metals*[J], 2015, 34(5): 314
- [6] Wang J, Gao S, Song P *et al. Journal of Alloys and Compounds* [J], 2011, 509(34): 8567
- [7] Matsuda M, Ii S, Kawamura Y *et al. Materials Science and Engineering A*[J], 2005, 393 (1): 269
- [8] Zhu Y, Morton A, Nie J. *Acta Materialia*[J], 2010, 58(8): 2936
- [9] Zhu Y, Morton A, Nie J F. *Acta Materialia*[J], 2012, 60(19): 6562
- [10] Peng Jian(彭建), Lv Binjiang(吕滨江), Hu Yaobo(胡耀波) *et al. Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2010, 39(4): 672
- [11] Yamasaki M, Hashimoto K, Hagihara K *et al. Acta Materialia* [J], 2011, 59(9): 3646
- [12] Oñorbe E, Garcés G, Pérez P *et al. Journal of Materials Science*[J], 2012, 47(2): 1085
- [13] Hagihara K, Yokotani N, Umakoshi Y. *Intermetallics*[J], 2010, 18(2): 267
- [14] Hagihara K, Fukusumi Y, Yamasaki M *et al. Materials Transactions*[J], 2013, 54(5): 693
- [15] Hagihara K, Sugino Y, Fukusumi Y *et al. Materials Transactions*[J], 2011, 52(6): 1096
- [16] Lv B J, Peng J, Peng Y *et al. Materials Science and Engineering A*[J], 2013, 579: 209
- [17] Lv B J, Peng J, Zhu L L *et al. Materials Science and Engineering A*[J], 2014, 599: 150
- [18] Saal J E, Wolverson C. *Scripta Materialia*[J], 2012, 67(10): 798
- [19] Koike J, Kobayashi T, Mukai T *et al. Acta Materialia*[J], 2003, 51(7): 2055
- [20] Koike J, Miyamura T. *Journal of Japan Institute of Light Metals*[J], 2004, 54(11): 460
- [21] Kim W, Hong S, Kim Y *et al. Acta Materialia*[J], 2003, 51(11): 3293
- [22] She J, Pan F S, Hu H H *et al. Progress in Natural Science: Materials International*[J], 2015, 25(4): 267

Effect of Transformation of LPSO Phase on Microstructure and Mechanical Properties of Extruded Mg-2.0Zn-0.3Zr-5.8Y Alloy

Lv Binjiang¹, Peng Jian^{2,3}, Liang Peng¹, Wang Jin¹

(1. Qingdao University of Technology, Qingdao 266520, China)

(2. Chongqing University, Chongqing 400044, China)

(3. State Laboratory of Mechanical Transmissions, Chongqing 400045, China)

Abstract: Effects and mechanism of different stacking structures of LPSO phase on microstructures and mechanical properties of Mg-2.0Zn-0.3Zr-5.8Y at different extrusion temperatures were studied. The results show that the average grain size of the alloy containing 18R and 14H LPSO phases reaches $(9.5 \pm 3.0) \mu\text{m}$ at the extrusion temperature of 390 °C, and the tensile strength and elongation reach 280 MPa and 18.7%, respectively. When the extrusion temperature increases to 420 °C, the 18R LPSO phase transforms to 14H structure, the grain size is refined significantly to $(3.1 \pm 1.1) \mu\text{m}$, and the tensile strength and elongation increases to 330 MPa and 20.8%, respectively. With the increasing of extrusion temperature (over 420 °C), the grain size increases and the tensile strength and elongation decrease. The variation of texture intensity at different deformation temperatures, the transformation of stacking structure and shape of LPSO phase and grain refinement are the main reasons for the variation of mechanical properties of the extruded Mg-2.0Zn-0.3Zr-5.8Y alloy.

Key words: LPSO phase; extrusion temperature; microstructure; mechanical property