

触变成形 AZ91D 镁合金的组织与二次凝固行为

李元东^{1,2}, 陈体军¹, 马 颖¹, 阎峰云^{1,2}, 郝 远¹

(1. 兰州理工大学 甘肃省有色金属新材料省部共建国家重点实验室, 兰州 730050;

2. 兰州理工大学 有色金属合金省部共建教育部重点实验室, 兰州 730050)

摘 要: 采用光学显微镜和扫描电镜对 AZ91D 镁合金组织进行分析, 研究 AZ91D 镁合金在半固态触变成形过程中的组织特征与二次凝固行为。结果表明, 成形件的充型过程是按先底部后上部的顺序填充。触变成形件中心线部位的组织中初生相含量比边缘部位的高, 产生宏观上的液相偏析。沿高度方向上, 中心线处的初生相颗粒尺寸从上部到底部, 先减小后增大。二次凝固过程包括 3 个阶段: 第 1 阶段是初生 α -Mg 相生长; 第 2 阶段是液相内部重新形核并生长成细小的等轴晶; 第 3 阶段是剩余的液相发生共晶反应形成共晶体。共晶反应按离异方式生长, 共晶组织中的 $Mg_{17}Al_{12}$ 在初生相颗粒周围形成“晕圈”。

关键词: AZ91D 镁合金; 半固态; 触变成形; 二次凝固; 离异共晶

中图分类号: TG 146.2

文献标识码: A

Microstructural characteristic and secondary solidification behavior of AZ91D alloy prepared by thixoforming

LI Yuan-dong^{1,2}, CHEN Ti-jun¹, MA Ying¹, YAN Feng-yun^{1,2}, HAO Yuan¹

(1. State Key Laboratory of Gansu Advanced Non-ferrous Metal Materials, Lanzhou University of Technology, Lanzhou 730050, China;

2. Key Laboratory of Non-ferrous Metal Alloys of Ministry of Education, Lanzhou University of Technology, Lanzhou 730050, China)

Abstract: Microstructural characteristic and secondary solidification behavior of the remaining liquid in semi-solid AZ91D alloy slurry in the thixoforming process were investigated by the experiments and microstructure analysis using optical microscope (OM) and scanning electron microscope (SEM). The results show that the mould-filling process of the product is from the bottom to the top orderly. There is macro-segregation of liquid between the center and edge of the products whose primary phase fracture at the center is higher than that at the edge. The size of primary phase particles in the formed product decreases firstly, and then increases along the axial (central) line from header to bottom. The secondary solidification occurs for the remaining liquid inside the die cavity involving: the secondary primary dendrites first directly developed from the surface of the primary particles without re-nucleation; then the residual liquid solidified by re-nucleation/growth, and finally eutectic reaction. The eutectic reaction is carried out with the way of divorced growth model so that a halo of $Mg_{17}Al_{12}$ forms around the primary phase particle.

Key words: magnesium alloy AZ91D; semi-solid state; thixoforming; secondary solidification behavior; nucleation; grains growth; divorced eutectic

基金项目: 国家重点基础研究发展计划资助项目(2007CB613700); 科技部政府间国际科技合作项目(2002DFG00020); 甘肃省有色金属新材料国家重点实验室培育基地开放基金资助项目(SKL-2004-09)

收稿日期: 2007-05-21; **修订日期:** 2007-10-23

通讯作者: 李元东, 副教授, 博士; 电话: 0931-2976795; E-mail: liyd@lut.cn

半固态成形技术作为一种新型的金属成形工艺, 被称为 21 世纪的金属成形关键技术之一^[1-2]。国内外已有众多专家学者对该技术开展了工艺实验和理论研究, 相继取得了一系列成果。研究内容主要集中在^[3-6]: 半固态浆料的制备工艺、半固态合金的流变学和半固态成形过程的数值模拟等方面, 有少量研究围绕着组织与常规力学性能之间的关系来进行^[7-9], 而部分研究表明^[8, 10-11], 除了初生固相晶粒的形貌、尺寸和分布以外, 影响半固态制品力学性能的重要因素就是半固态材料中液相的凝固组织和凝固行为, 特别是 $Mg_{17}Al_{12}$ 相的生长形貌主要取决于半固态液相的凝固方式及其所决定的凝固组织。因此, 有必要在以后的研究工作中进一步加强对半固态金属成形件组织性能的研究。

FAN 等^[12-13]研究了流变压铸过程中浆料在双螺旋筒和铸型中的凝固过程。袁森等^[14]采用快速液淬方法研究了 AZ91D 镁合金半固态液相的凝固方式和组织形貌, 发现成形过程中, 凝固组织和行为最终决定触变成形材料的性能。

由于在二次加热过程中形成的半固态坯料中已有部分初生相颗粒, 在触变成形过程中坯料被压入模具型腔后再次发生凝固, 所以, 将坯料在模具型腔内的凝固称为“二次凝固”。有别于流变成形技术。本文作者针对触变成形技术, 研究 AZ91D 镁合金在半固态触变成形过程中的组织特征与二次凝固行为, 期望为半固态触变成形过程及组织性能关系研究奠定基础。

1 实验

所用 AZ91D 镁合金为商用 AZ91D 镁合金, 经重熔后浇入金属型, 形成 $d45\text{ mm} \times 190\text{ mm}$ 的棒料。将棒料截成长 80 mm 的小锭料, 作为触变成形的原材料。将小锭料放入管式炉中在 $585\text{ }^{\circ}\text{C}$ 加热 90 min , 然后移至模具的料口, 在液压塑料成形机上进行成形实验, 其压头行程为 550 mm , 运行速度约为 0.2 m/s , 采用 400 kN 的压力, 模具温度分别为 $350\text{ }^{\circ}\text{C}$ 。为了便于半固态坯料的搬运和防止加热过程中液相的流失, 在加热时将小锭料放入直径 50 mm , 深 60 mm 的钢杯中, 连同此杯一起加热。利用插入模具中的 6 根电阻加热棒来加热模具。具有完整形貌的触变成形件如图 1 所示, 它也反映出模具型腔的尺寸, 其中 $100\text{ mm} \times 40\text{ mm} \times 15\text{ mm}$ 长方体为所要得到的成形件, 其余部分为成形剩余的料。

将成形件沿图 1 上图所示的中心线一分为二, 然后将其中一半根据图 2 所示均匀地分成 9 个小试样, 中心线一边依次编号, 记为 C1、C2、…、C9; 而与之对应的另一面也依次编号, 记为 E1、E2、…、E9。从中间隔取一个试样作为金相试样, 即 C1、C3、C5、C7、C9 和 E1、E3、E5、E7、E9。再将这些小试样经过磨、抛, 制成金相样, 利用 MEF-3 光学显微镜、S-520 扫描电镜、JSM-6700F 场发射扫描电镜和作者编制的 SSMAAnalysis 软件对触变成形 AZ91D 镁合金的组织特征和二次凝固进行分析研究。

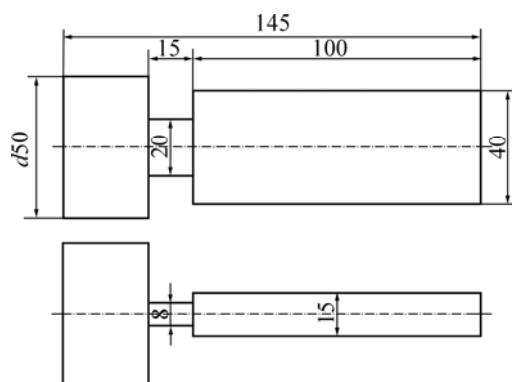


图 1 触变成形试样示意图

Fig. 1 Schematic diagram of sample (unit: mm)

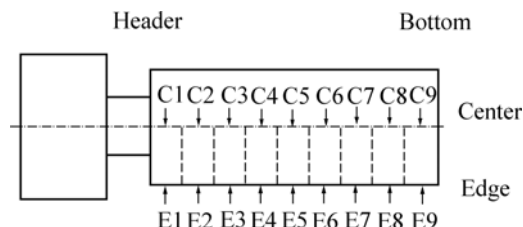


图 2 金相试样的取样位置

Fig. 2 Location of morphology sampling on sample

2 实验结果

2.1 触变成形充型过程

图 3 所示为模具预热温度为 $350\text{ }^{\circ}\text{C}$ 时, 坯料加热温度为 $585\text{ }^{\circ}\text{C}$, 保温 90 min 后, 在压力机压力作用下半固态 AZ91D 镁合金触变成形的充型过程试样的宏观照片。当试样从加热炉中移至模具注射口时, 模具压头向下运动接触半固态坯料开始施加压力, 坯料从注射口进入模具型腔, 首先填充型腔的底部(图 3(a))。当更多的坯料进入型腔后, 可以看到坯料自下而上依次填充模具型腔(图 3(b)), 直到充满, 并在压力下发生二次凝固, 从而得到完整的成形件毛坯(图 3(c))。

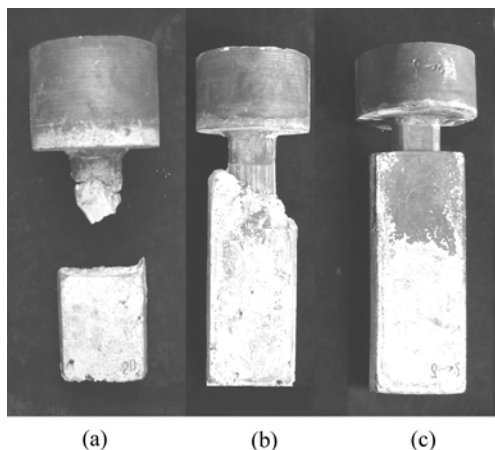


图 3 AZ91D 镁合金触变成形的充型过程

Fig.3 Filling behavior in die cavity for thixoforming of AZ91D alloy: (a) 50% filled; (b) 80% filled; (c) 100% filled

2.2 触变成形件的组织观察

图 4 所示为在 585 °C 加热 90 min 后成形件中心线和边缘部位的金相组织, 由图可见, 成形件内部各处初生相颗粒形貌近似球状, 中心线部位的固相率要比边缘部位的高。对比图 4(a)C1 和 (f)E1, 即靠近浇口部分可以看出, 中心线固相颗粒发生了塑性变形, 并且固相含量很高。即使同在中心线处, 初生相颗粒的形貌和尺寸从上到下也是不同的。

2.3 触变成形 AZ91D 镁合金的二次凝固组织

图 5 所示为典型的触变成形 AZ91D 镁合金的二次凝固组织。可以看到, 触变成形后 AZ91D 镁合金组织由初生的球状 α -Mg(在半固态时为固相颗粒, 在此定义为 α_1)、在初生球状 α -Mg 周围长出的“毛绒”状

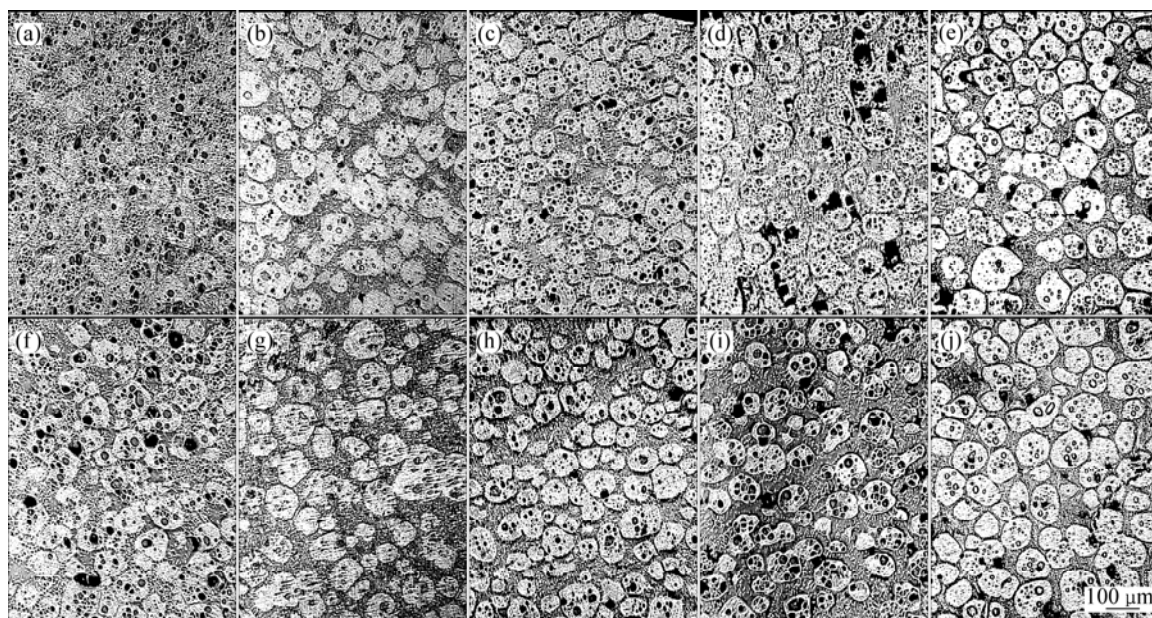


图 4 585 °C 加热 90 min 后触变成形产品中心线和边缘部位的金相组织

Fig.4 Optical micrographs of center and edge of products thixoformed at 585 °C for 90 min (die temperature 350 °C): (a) C1; (b) C3; (c) C5; (d) C7; (e) C9; (f) E1; (g) E3; (h) E5; (i) E7; (j) E9

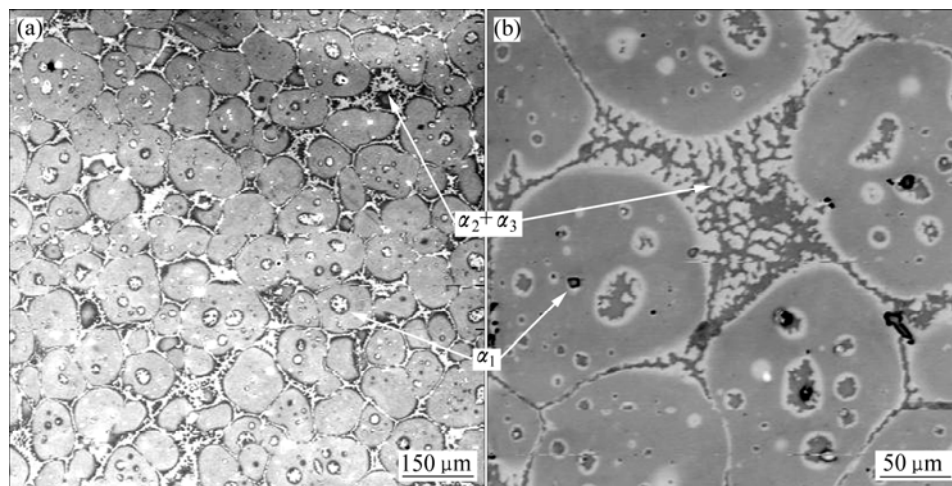


图 5 AZ91D 镁合金触变成形二次凝固组织的 SEM 像

Fig.5 SEM micrographs of second solidification microstructure: (a) Thixoformed AZ91D alloy; (b) Magnification of (a)

二次凝固组织(定义为 α_2)、剩余液相二次凝固过程重新形核并长大的枝晶(定义为 α_3)以及共晶组织共同组成。

3 分析与讨论

3.1 成形件不同位置的组织形貌

中心线部位的固相率要比边缘部位的高, 分析认为, 中心线部分固相高的主要原因是先挤入的半固态坯料中的液相含量较多, 在后挤入的高固相坯料的推力作用下, 被挤入边缘部位和产品的上下两个顶角上, 从而产生宏观上的液相偏析。

对比图 4(a)和(f), 可以看出靠近浇口部分, 中心线固相颗粒发生了塑性变形, 并且固相含量很高。由于发生塑性变形, 初生相颗粒已无法用软件识别, 因此, 图 6(a)中 C1 和 E1 两处的固相含量反而与实际相反。

另外, 中心线处的初生相颗粒尺寸也呈现出一定的规律性, 从上部到底部, 先减小后增大。此现象可结合初生相总量和数量来说明(图 6(a)和(b)), 初生相总量不变时, 数量越多, 每个初生相颗粒的尺寸就越小。总之, 在上下的中间部分初生相颗粒的尺寸较小, 而两端较大。在充型过程中, 由于坯料表面温度较高, 内部的固相颗粒(初生相颗粒)尺寸小, 在压力作用下先进入型腔, 后压入的坯料温度较低, 固相颗粒尺寸较大, 因此成形后中心线处底部的初生相颗粒尺寸较中上部的小。在边缘处, 固相颗粒尺寸规律性不强, 但也总体上表现出从上部到底部逐渐增大的趋势。触变成形后初生相颗粒的形状系数在试样高度方向上变化不大(图 6(b))。

3.2 触变成形 AZ91D 镁合金的二次凝固行为

半固态坯料在成形前由初生相颗粒和液相两部分组成。由于已有部分初生相颗粒, 在触变成形过程中坯料被压入模具型腔后再次发生凝固(即二次凝固), 包括最后的非平衡共晶反应, 因此半固态成形过程中二次凝固方式与传统的液态成形明显不同。传统的液态成形时, 凝固过程首先从靠近模具型腔壁形核长大, 最后形成的凝固组织分为表层细晶区、中间柱状晶区和中心等轴晶区三部分^[15]。

触变成形过程中由于 α_1 与二次凝固析出的 α_2 具有相同的晶体结构, 二次凝固 α_2 依附于 α_1 直接生长要

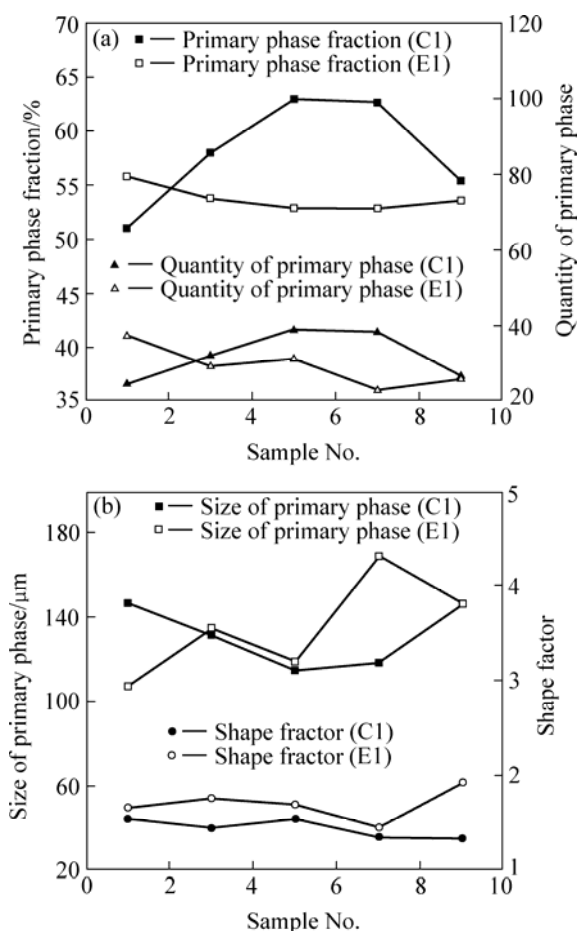


图6 触变成形产品中心线和边缘位置的固相率、颗粒数量和晶粒尺寸、形状系数

Fig.6 Analysis results of primary phase fraction and quantity of primary phase(a); size of primary phase and shape factor of center and edge of thixoformed products(b) (heating temperature 585 $^{\circ}\text{C}$; heating time 90 min; die temperature 350 $^{\circ}\text{C}$)

比在液相中重新形核所需要的能量低, 凝固比较容易进行, 因此二次凝固首先依附于 α_1 颗粒上生长, 不需要再次形核, 从图 5(b)可明显看到在初生相周围长出许多“毛绒”状的组织。

随着凝固过程的继续, 剩余液相中过冷度进一步增加, 达到液相重新形核的条件后, 剩余液相开始形核并长大, 形成细小的等轴晶 α_3 ; 有些 α_3 晶粒处于较大冷却条件下, 会产生分支形成二次轴, 呈树枝状长大特征(图 7)。

最后剩余液相在非平衡的凝固条件下发生共晶反应, 得到(α -Mg+Mg₁₇Al₁₂)的离异共晶组织, 在初生相颗粒周围形成一层“晕圈”(图 8)。这是典型的离异共

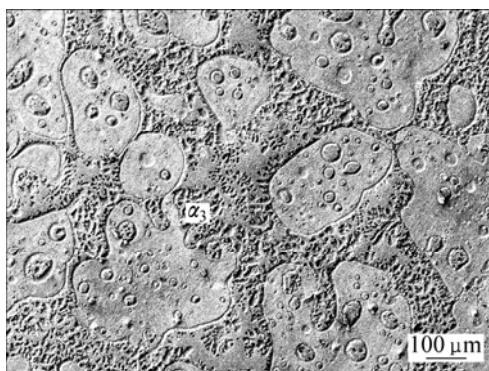


图 7 AZ91D 镁合金触变成形二次凝固枝晶形貌的 SEM 像

Fig.7 Dendritic micrographs of second solidification microstructure of thixoformed AZ91D alloy

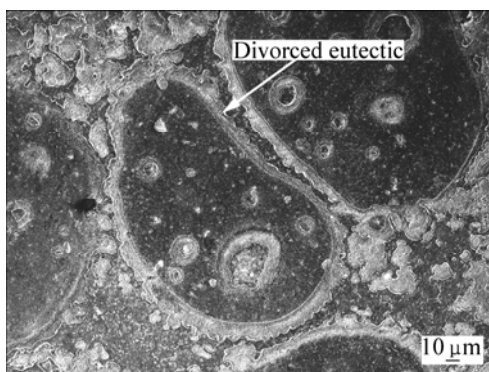


图 8 AZ91D 镁合金触变成形离异共晶组织形貌的 SEM 像

Fig.8 Divorced eutectic micrographs of thixoformed AZ91D alloy

晶独立生长的结果。尽管 AZ91D 合金中 Al 含量小于其极限固溶度(12.7%),但在触变成形的非平衡凝固条件下,已经凝固的固相的平均成分将偏离平衡固相线。合金液凝固时,初生的 α 相优先析出长大,在达到共晶成分之前,如果先共晶相 α 所占的体积分数较大,而共晶液相所占的体积分数较小,则在共晶转变过程中 α 相将依附于先共晶 α 相生长,使共晶 $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ 相在晶界处独立长大,从而形成离异共晶组织。

所以说二次凝固过程包括 3 个阶段:第 1 阶段依附于初生 $\alpha\text{-Mg}$ 相生长;第 2 阶段在液相内部重新形核并生长成细小的等轴晶;第 3 阶段剩余的液相发生共晶反应,形成共晶体。

采用背散射电子(BEI)对凝固组织进行观察发现(图 9),初生的 $\alpha\text{-Mg}$ 相(α_1)、依附于 α_1 生长得到的 α_2 、重新形核并长大的等轴晶 α_3 及共晶相中的 $\alpha\text{-Mg}$ 连在一起,在组织和化学成分方面很难区分。

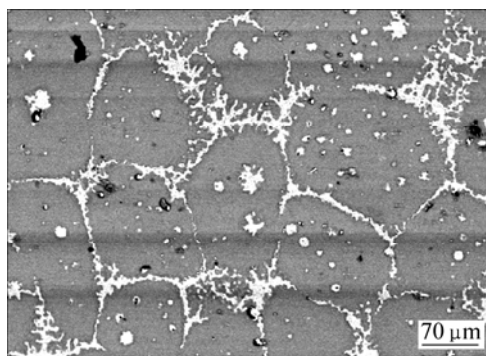


图 9 AZ91D 镁合金触变成形组织背散射电子像

Fig.9 Back scattered electron image of thixoformed AZ91D alloy

4 结论

1) 本实验中试样的充型过程是按先底部后上部的顺序填充。

2) 中心线和边缘部位的金相组织有明显差别,中心线部位的固相含量比边缘部位的高,产生宏观上的液相偏析。

3) 沿高度方向上中心线处的初生相颗粒尺寸从上部到底部,先减小后增大。

4) 二次凝固过程包括 3 个阶段:第 1 阶段依附于初生 $\alpha\text{-Mg}$ 相生长;第 2 阶段在液相内部重新形核并生长成细小的等轴晶;第 3 阶段剩余的液相发生共晶反应,形成共晶体。

5) 最后剩余的液相发生共晶反应,其方式是按离异方式生长,并在初生相周围形成“晕圈”。

REFERENCES

- [1] FLEMINGS M C. Behavior of metal alloys in the semisolid state[J]. Metallurgical and Materials Transactions A, 1991, 22A(5): 957-981.
- [2] 罗守靖, 田文彤, 谢水生, 毛卫民. 半固态加工技术及应用[J]. 中国有色金属学报, 2000, 10(6): 765-773.
LUO Shou-jing, TIAN Wen-tong, XIE Shui-sheng, MAO Wei-min. Technology and applications of semi-solid forming[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2000, 10(6): 765-773.
- [3] GEBELIN J C, SUERY M, FAVIER D. Characterisation of the rheological behaviour in the semi-solid state of grain-refined AZ91 magnesium alloys[J]. Mater Sci Eng A, 1999, A272(1): 134-144.

- [4] CZERWINSKI F. The processing phenomena of semisolid Mg-9%Al-1%Zn alloy at ultra high contents of the unmelted phase[J]. *Mater Sci Eng A*, 2005, 392(1/2): 51-61.
- [5] 李元东, 陈体军, 马 颖, 阎峰云, 郝 远. 添加 0.5wt%富铈混合稀土 AZ91D 镁合金半固态组织的形成[J]. *中国有色金属学报*, 2007, 17(2): 320-325.
- LI Yuan-dong, CHEN Ti-jun, MA Yin, YAN Feng-yun, HAO Yuan. Effect of rare earth 0.5% addition on semi-solid microstructural evolution of AZ91D alloy[J]. *The Chinese Journal of Nonferrous Metals*, 2007, 17(2): 320-325.
- [6] 乐启炽, 崔建忠, 路贵民, 欧 鹏. 两相区铸造 AZ91D 半固态坯料的部分重熔工艺与组织演变[J]. *中国有色金属学报*, 2003(6): 1488-1493.
- LE Qi-chi, CUI Jian-zhong, LU Gui-min, OU Peng. Microstructure evolution and partially remelting processing of two-phase-region casting AZ91D semisolid slurry ingot[J]. *The Chinese Journal of Nonferrous Metals*, 2003(6): 1488-1493.
- [7] CZERWINSKI F, ZIELINSKA-LIPIEC A, PINET P J, OVERBEEKE J. Correlating the microstructure and tensile properties of a thixomolded AZ91D magnesium alloy[J]. *Acta Materialia*, 2001, 49(7): 1225-1235.
- [8] LIU D, ATKINSON H V, KAPRANOS P, JIRATTITICHAROEAN W, JONES H. Microstructural evolution and tensile mechanical properties of thixoformed high performance aluminium alloys[J]. *Mater Sci Eng A*, 2003, 361(1/2): 213-224.
- [9] CHO W G, KANG C G. Mechanical properties and their microstructure evaluation in the thixoforming process of semi-solid aluminum alloys[J]. *Journal of Materials Processing Technology*, 2000, 105(3): 269-277.
- [10] 肖黎明, 张励忠, 邢书明, 张密兰, 韩淑霞, 李海开, 胡远猛. 半固态金属成形件的组织和性能研究进展[J]. *铸造*, 2006, 55(5): 433-438.
- XIAO Li-ming, ZHANG Li-zhong, XING Shu-ming, ZHANG Mi-lan, HAN Shu-xia, LI Hai-kai, HU Yuan-meng. Research and development of microstructures and properties about components produced by semi-solid metal forming[J]. *Foundry*, 2006, 55(5): 433-438.
- [11] PARK C, KIM S, KWON Y, LEE Y, LEE J. Fracture Behavior of Thixoformed 357-T5 Al Alloys[J]. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 2004, 35A(3): 1017-1027.
- [12] HITCHCOCK M, WANG Y, FAN Z. Secondary solidification behaviour of the Al-Si-Mg alloy prepared by the rheo-diecasting process[J]. *Acta Materialia*, 2007, 55(5): 1589-1598.
- [13] FAN Z, LIU G. Solidification behaviour of AZ91D alloy under intensive forced convection in the RDC process[J]. *Acta Materialia*, 2005, 53(16): 4345-4357.
- [14] 程健杰, 袁 森, 王武孝, 熊爱华, 蒋百灵. 半固态镁合金中液相的凝固方式及组织形貌[J]. *铸造*, 2005, 54(5): 442-445.
- CHENG Jian-jie, YUAN Sen, WANG Wu-xiao, XIONG Ai-hua, JIANG Bai-ling. Solidification modes and morphology of liquid phase of semi-solid Mg alloy[J]. *Foundry*, 2005, 54(5): 442-445.
- [15] FLEMINGS M C. Solidification processing[M]. New York: MCGRAW-HILL, 1974: 214.

(编辑 何学锋)