

改进型 ECAP 路径对 Al-Mg₂Si 原位复合材料组织与力学性能的影响

边丽萍, 梁 伟, 马 建, 张文利, 薛晋波, 王红霞, 赵兴国

(太原理工大学 材料科学与工程学院, 太原 030024)

摘 要: 采用一种结合 B_C、B_A 路径特点的改进型路径 B_{C-UD2}、在 250 °C 对铸造 Al-10.9%Mg₂Si 原位复合材料进行等通道转角挤压(ECAP)来细化组织、改善 Mg₂Si 增强相形态及分布状态, 考察其对力学性能的影响。结果表明: 经 B_{C-UD2} 路径 8 道次 ECAP 挤压后, 复合材料基体由约 100 μm 发达的树枝晶组织细化为约 1.5 μm 的细晶粒组织; 原先粗大的汉字状共晶 Mg₂Si 相被细化为约 0.85 μm 的多边形状颗粒, 趋于均匀分布状态, 较常规 B_C 路径中 Mg₂Si 颗粒沿基体晶界聚集分布状态有很大改善; 经 B_{C-UD2} 路径挤压后复合材料的抗拉强度由铸态的 166.9 MPa 增大到 331.8 MPa, 伸长率由铸态的 0.43% 增加到 23.6%, 分别提高了 99% 和 5 400%; 同时也比 B_C 路径挤压材料的抗拉强度(297.3 MPa)提高了 12%, 伸长率(15.15%)提高了 56%, 综合力学性能显著提高。

关键词: Al-Mg₂Si 原位复合材料; 等通道转角挤压; 晶粒细化; 颗粒分散; 力学性能

中图分类号: TB 331

文献标志码: A

Effect of modified ECAP route on microstructure and mechanical property of Al-Mg₂Si in-situ composite

BIAN Li-ping, LIANG Wei, MA Jian, ZHANG Wen-li, XUE Jin-bo, WANG Hong-xia, ZHAO Xing-guo

(College of Materials Science and Engineering, Taiyuan University of Technology, Taiyuan 030024, China)

Abstract: A modified equal channel angular pressing (ECAP) route B_{C-UD2} combining with the characteristics of routes B_C and B_A was employed to process an as-cast Al-10.9%Mg₂Si in-situ composite at 250 °C to refine the microstructure and modify the morphology and distribution of Mg₂Si reinforcements. The results show that after 8-pass ECAP processing the matrix is significantly refined from its original developed dendrites of about 100 μm in the as-cast state to equiaxed grains of about 1.5 μm, and the eutectic Mg₂Si from coarse Chinese script cells to fine discrete polygonal particles of about 0.85 μm which are redistributed more homogeneously than those by the conventional route B_C, where the refined Mg₂Si particles still congregate seriously along the matrix grain boundary. Accordingly, the ultimate tensile strength and the elongation of the composite processed by route B_{C-UD2} are enhanced from 166.9 MPa and 0.43% in the as-cast state to 331.8 MPa and 23.46%, increased by 99% and 5 400%, respectively, and further increased by 12% and 56% when compared to those by route B_C, and thus the comprehensive mechanical properties are enhanced remarkably.

Key words: Al-Mg₂Si in-situ composites; equal channel angular pressing/extrusion; grain refinement; particle redistribution; mechanical property

以 Mg₂Si 颗粒增强的 Al 基、Mg 基复合材料具有低密度、高耐磨性和良好的铸造性等特点, 在近年来

已被列入新一类型颗粒增强金属基复合材料(PMMC_s)^[1]。在 Al-Mg₂Si 复合材料中, Mg₂Si 不但是

基金项目: 大学生创新创业专项基金资助项目(08122067, 07010727); 山西省留学人员基金资助项目(2007-25); 山西省自然科学基金资助项目(2006011051)

收稿日期: 2010-08-16; 修订日期: 2011-01-20

通信作者: 边丽萍, 讲师, 博士研究生; 电话/传真: 0351-6018398; E-mail: bianliping_724@126.com.

Al、Mg 和 Ti 基体中常用颗粒增强体中密度最低的增强相,而且以 Mg_2Si 增强的 PMMCs 呈现出比常规 Al-Si 合金更高的高温强度,因而有望取代传统 Al-Si 合金,在汽车和航天等领域得到应用^[2]。然而,在常规熔炼铸造的 Al- Mg_2Si 复合材料中,不仅初生 Mg_2Si 颗粒尺寸粗大^[3],而且由于存在粗大的 Mg_2Si 共晶团、其共晶胞晶界构成了潜在的裂纹增殖途径^[1],因而材料的力学性能不高,尤其是塑性较差,从而大大制约其在结构材料方面的应用。因此,粗大的 Mg_2Si 相需要细化、并改善其形貌及分布,才能进一步提高材料的力学性能。目前,粗大 Mg_2Si 增强相的细化方法主要如下:1) 添加晶粒细化剂,如混合稀土^[4]、钠盐^[5]、磷^[6]、过剩 Si^[2];2) 通过先进的加工技术,如热挤压^[7]、快速凝固^[8]和机械合金化^[9]。然而,前者细化效果有限(迄今为止,文献报道的最小初生 Mg_2Si 颗粒尺寸约为 $6\text{ }\mu\text{m}$ ^[11]),力学性能仍不令人满意(已报道的最高伸长率为 8.3% ^[2]),后者成本过高,限制了其工程实际应用。

等通道转角挤压(Equal channel angular extrusion/pressing, ECAP/ECAE)是一种低成本的能够显著细化组织^[10]、并能在一定程度上改善增强相颗粒分布^[11]、获得亚微米/超细晶块体材料的方法^[12]。LIANG 等^[13]提出了一种晶粒细化效果好、颗粒分散明显、有别于常规 4 种 ECAP 挤压路径的新型路径 $\text{B}_\text{C-UD2}$,然而利用这一路径对 Al- Mg_2Si 复合材料进行挤压的相关试验研究还未见报道。本文作者利用这一新型 ECAP 路径 $\text{B}_\text{C-UD2}$ 来挤压普通重力铸造 Al- $10.9\%\text{Mg}_2\text{Si}$ 原位复合材料,以改善 Mg_2Si 颗粒的大小、形貌及其分布,同时细化基体组织,通过与常规 B_C 路径进行对比,考察其对材料组织细化、 Mg_2Si 颗粒分散及其力学性能的影响。

1 实验

实验采用纯 Al(99.9%)、纯 Mg(99.8%)、Al-24%Si(质量分数)中间合金熔炼制备 Al- $10.9\%\text{Mg}_2\text{Si}$ 原位复合材料(名义成分为 Al-10%Mg-4%Si)。合金熔炼采用 SXZ-5-2 电阻炉,熔炼温度为 $740\text{ }^\circ\text{C}$,保温 20 min 后,在 $700\text{ }^\circ\text{C}$ 时浇铸入 $d\text{ }20\text{ mm}\times 150\text{ mm}$ 的圆柱形金属模中。

将棒料用电火花线切割机加工成 $10\text{ mm}\times 10\text{ mm}\times 55\text{ mm}$ 的试样,利用 WDW-100KN 型电子万能试验机在 $250\text{ }^\circ\text{C}$ 、分别以 $\text{B}_\text{C-UD2}$ 路径^[13](每 2 道次 B_C 路径挤压后,试样倒转后再按 B_C 路径挤压,即 B_C —

B_C —倒转+ B_C — B_C —倒转+ B_C — B_C —倒转+ B_C — B_C)、 B_C 路径(试样每第二次挤压时沿相同方向旋转 90° (逆时针或顺时针方向))进行 8 道次等通道转角挤压(ECAP)。挤压速率为 0.5 mm/s ,挤压采用具有背压作用的自制模具^[14],模具参数为 $\Phi=90^\circ$, $\Psi=20^\circ$ 。

将熔炼制备及经 ECAP 挤压后的 Al- $10.9\%\text{Mg}_2\text{Si}$ 复合材料试样沿料棒纵截面加工成尺寸为 $15\text{ mm}\times 3.5\text{ mm}\times 2\text{ mm}$ 的拉伸试样,在室温下进行拉伸试验。采用 JSM-6700F 型场发射扫描电子显微镜(FESEM)和 H-800 透射电子显微镜(TEM)对铸态及 ECAP 挤压态复合材料试样进行微观组织和断口形貌观察。SEM 观察试样沿挤压试样 3 个相互垂直面 X、Y 和 Z^[12]截取。TEM 观察试样沿挤压试样横截面方向切取。

2 结果与讨论

2.1 复合材料的微观组织

图 1 所示为铸态 Al- $10.9\%\text{Mg}_2\text{Si}$ 复合材料的 XRD 像。分析可知,铸态 Al- $10.9\%\text{Mg}_2\text{Si}$ 复合材料由 $\alpha(\text{Al})$ 和 Mg_2Si 两相组成。如图 2 所示,初生 $\alpha(\text{Al})$ (浅灰色)约为 $100\text{ }\mu\text{m}$ 的发达树枝晶组织,粗大的共晶 Mg_2Si (深灰色)呈汉字状沿 $\alpha(\text{Al})$ 枝晶晶界分布(见图 2(b))。白色物质为杂质铁形成的化合物。

图 3 所示为 Al- $10.9\%\text{Mg}_2\text{Si}$ 复合材料经不同路径 ECAP 8 道次挤压细化后 Mg_2Si 颗粒的分布情况。如图 3(a)~(c)所示,经 $\text{B}_\text{C-UD2}$ 路径挤压后,原先粗大的汉字状 Mg_2Si 被显著细化,并在强烈变形过程中伴随着变形发生了较大程度的分散迁移,在 X 面上呈现较为均匀的分布状态,在 Y 和 Z 面 Mg_2Si 颗粒趋于均匀

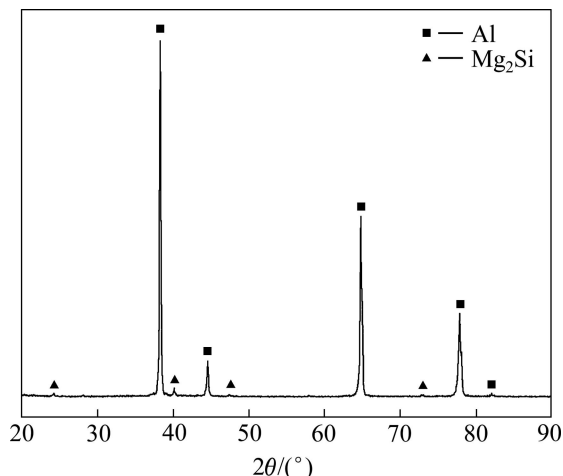
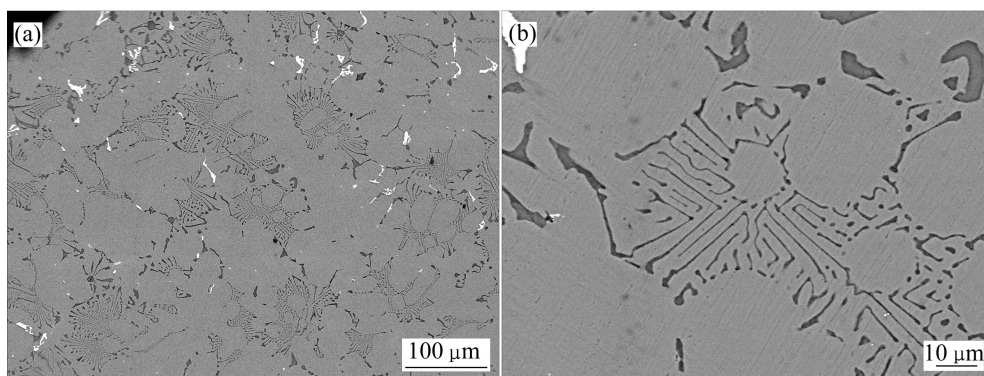
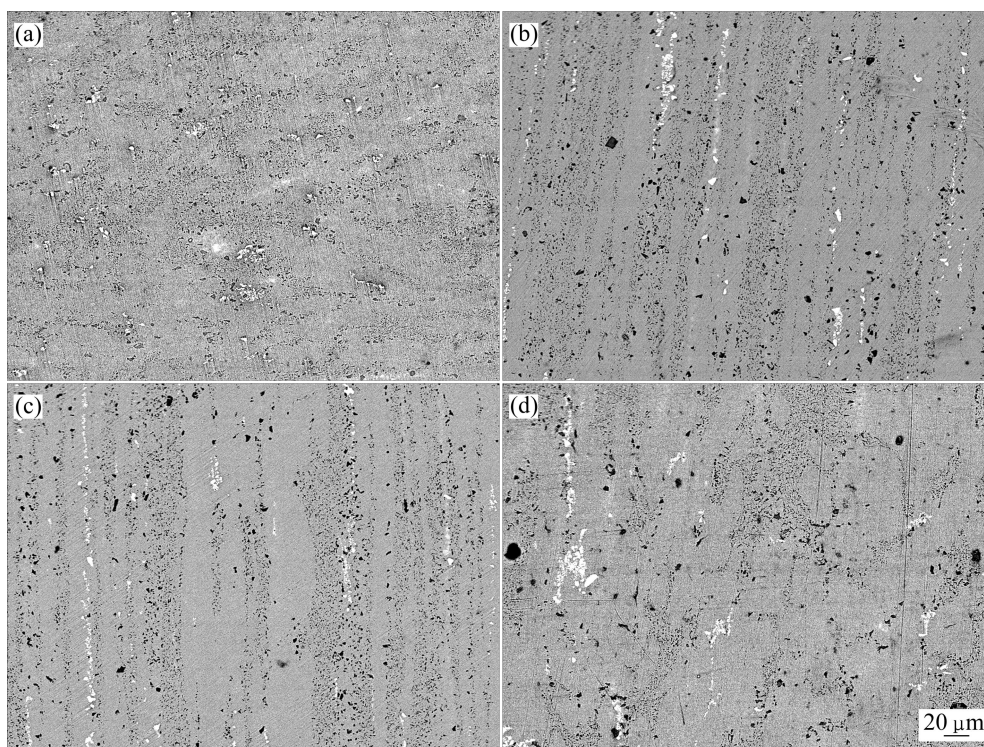


图 1 铸态 Al- $10.9\%\text{Mg}_2\text{Si}$ 合金的 XRD 谱

Fig.1 XRD pattern of as-cast Al- $10\%\text{Mg}_2\text{Si}$ alloy

图 2 铸态 Al-10.9%Mg₂Si 合金的 SEM 像Fig.2 SEM images of as-cast Al-10.9%Mg₂Si alloy图 3 合金分别经 B_{C-UD2} 和 B_C ECAP 挤压后在 X、Y 和 Z 面 Mg₂Si 颗粒分布的 SEM 像Fig.3 SEM images of ECAP samples in three orthogonal planes X, Y and Z by routes B_{C-UD2} ((a)–(c)) and B_C (d): (a) X plane; (b) Y plane; (c) Z plane; (d) X plane

分布,且在流变方向上具有一定的方向性。而经 B_C 路径挤压后(见图 3(d)),尽管粗大的 Mg₂Si 增强相在强烈应变作用下破碎细化为小颗粒,但由于 B_C 路径的冗余应变(Redundant strain,每 4 次挤压应变回复一次)特性,细化后的 Mg₂Si 颗粒在 X、Y 和 Z 3 个面上均沿晶界呈聚集分布状态^[15](因 3 个面上 Mg₂Si 分布情况相同,简化起见,此处仅提供 X 面)。由两种路径所导致的 Mg₂Si 颗粒分散程度不同,原因在于改进型路径 B_{C-UD2} 开动的滑移系更为分散、每 4 次挤压后(一个循环周期)剪切面不具重复性^[13]。

图 4 所示为复合材料经 ECAP 挤压后的 TEM 像及相应的选区衍射(SAD)谱。由图 4 可知:经 B_{C-UD2} 路径挤压后,铸态时枝晶状 α(Al)基体被细化约为 1.5 μm 的等轴晶粒,如图 4(a)所示,晶内存在高密度位错,而原先粗大的汉字状 Mg₂Si 相被破碎细化约为 0.85 μm 的多边形状小颗粒,同时在复合材料基体上也可观察到一定数量的纳米级 Mg₂Si 小粒子,这是由于在高温强变形过程中 Mg₂Si 颗粒发生的回溶与析出反复进行所致。经 B_C 路径挤压后,α(Al)基体被细化约为 231 nm 的等轴晶(见图 4(c)),Mg₂Si 相被细化至约为

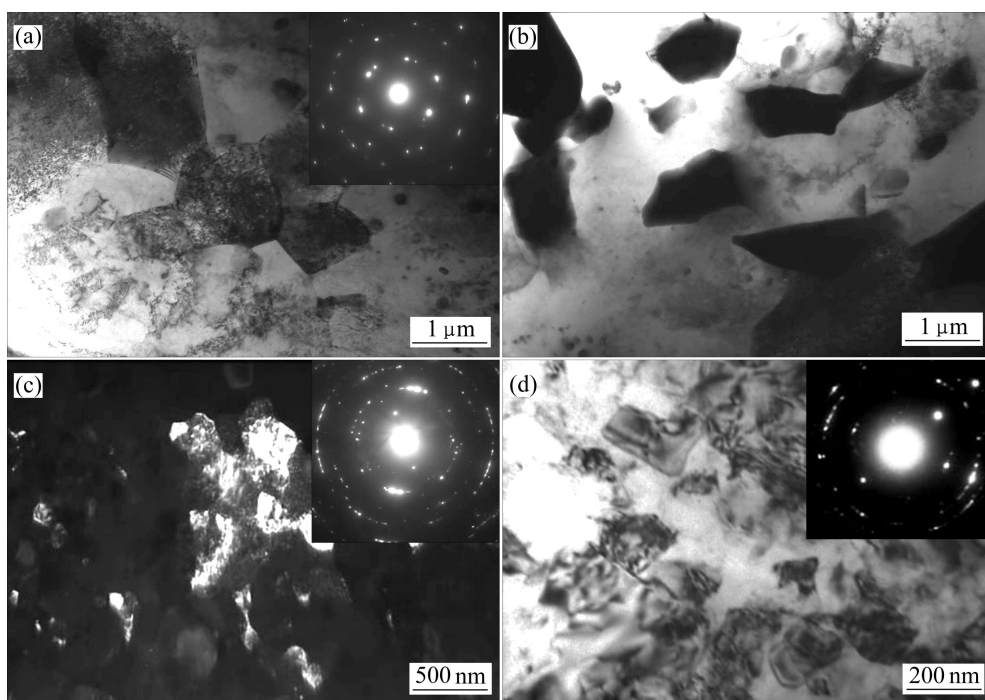


图4 合金分别经路径 B_{C-UD2} 和进行 ECAP 挤压后的 TEM 像及相应的 SAD 谱

Fig.4 TEM images and corresponding SAD patterns of ECAP alloys by route B_{C-UD2} ((a), (b)) and route B_C ((c), (d)): (a), (c) $\alpha(Al)$ -rich region; (b), (d) Mg_2Si -rich region

151 nm 的等轴颗粒(见图 4(d))。从选取衍射斑点看, B_C 路径中基体晶粒取向更为分散, 呈现大角度晶界特征(见图 4(c)), 而 B_{C-UD2} 路径中基体晶粒呈现小角度晶界特征(见图 4(a))。

2.2 复合材料的力学性能

图 5 所示为复合材料在铸态及经不同路径进行 ECAP 挤压后的室温拉伸曲线。如图所示, 经 8 道次 ECAP 挤压后, B_{C-UD2} 路径力学性能最佳, 抗拉强度 σ_b 达 331.8 MPa, 伸长率 ε 为 23.6%, 相比于铸态($\sigma_b=166.9$ MPa, $\varepsilon=0.43\%$), 抗拉强度提高了 98.8%, 伸长率提高了 54 倍; 相比于 B_C 路径($\sigma_b=297.3$ MPa, $\varepsilon=15.15\%$), 抗拉强度提高了 12%, 伸长率提高了 56%; 同时也比文献[2]报道的通过压铸含更高含量 Mg_2Si 的 Al-15%Mg₂Si-8%复合材料的力学性能($\sigma_b=329$ MPa, $\varepsilon=8.3\%$)有很大提高, 伸长率是其 2.84 倍(见表 1)。此外, 从工程应力—应变曲线所围面积也可看出, B_{C-UD2} 路径中复合材料韧性相比于 B_C 路径的也有很大提高。 B_{C-UD2} 路径挤压导致复合材料强度、尤其是塑性的显著提高, 其原因在于基体组织及增强相显著细化为微米/亚微米级晶粒组织; 同时, 由于 Mg_2Si 小颗粒的相对均匀分散有效克服了 B_C 路径中 Mg_2Si 颗粒的沿晶界聚集状态, 大大降低了颗粒团聚所引起的增强相与

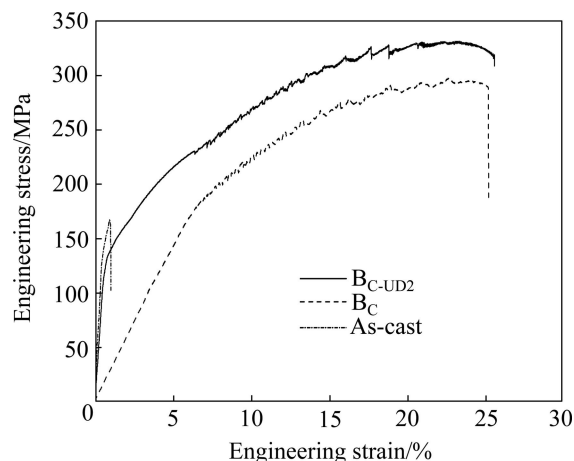


图5 Al-10.9%Mg₂Si 合金在铸态及经 B_{C-UD2} 、 B_C 路径 8 道次 ECAP 挤压后的工程应力—应变曲线

Fig.5 Engineering stress—strain curves of as-cast and 8-pass ECAP Al-10.9%Mg₂Si alloys by routes B_{C-UD2} and B_C , respectively

基体界面应力集中^[16]、继而引发裂纹的早期形成倾向, Mg_2Si 颗粒增强基体作用得以充分发挥, 从而进一步提高复合材料的强度和塑韧性。因此, 尽管 B_{C-UD2} 路径晶粒细化效果略低于 B_C 路径的, 但由于具有类似 B_A 路径的能对细化后的 Mg_2Si 颗粒进行有效的几何再分配^[15], 迫使在共晶组织中形核的裂纹在韧性 $\alpha(Al)$

基体中扩展, 避免晶界应力集中, 基体塑性与增强相增强作用得以充分发挥, 由此力学性能较 B_{C-UD2} 路径显著提高。

断口分析结果也表明, 铸态复合材料由于粗大共晶 Mg₂Si 相呈汉字状沿晶界分布, 断口呈沿晶脆性断裂特征(见图 6(a)); 而经 B_{C-UD2} 路径挤压后, 复合材

料断口呈韧性断裂, 韧窝大而深, 表现出很好的塑韧性(见图 6(b)); 经 B_C 路径挤压的复合材料断口, 韧窝浅而细小, 除主要的韧性断裂特征外, 由于 Mg₂Si 颗粒的偏聚分布, 局部还可观察到河流状花样、呈现解理断裂特征(见图 6(c))。

3 结论

1) 经 8 道次 B_{C-UD2} 路径挤压后, 复合材料基体 α (Al) 由铸态时尺寸约为 100 μm 的树枝晶细化至尺寸约为 1.5 μm 的等轴晶; 原先沿 α (Al) 枝晶晶界分布的粗大的汉字状共晶 Mg₂Si 相被细化至尺寸约为 0.85 μm 的多形状颗粒, 细化后的 Mg₂Si 颗粒伴随变形发生了较大程度的分散, 在 X、Y、Z 3 个面趋于均匀化分布, 明显改善常规 B_C 路径中 Mg₂Si 增强相虽被细化、但沿晶界偏聚的分布状态。

2) 室温拉伸结果表明, 经改进型路径 B_{C-UD2} 挤压后, 复合材料抗拉强度为 331.8 MPa, 伸长率为 23.6%; 相比于铸态, 抗拉强度提高了 98.8%, 伸长率提高了约 54 倍; 相比于 B_C 路径, 复合材料抗拉强度提高了 12%, 伸长率提高了 56%。

3) 改进型 ECAP 路径 B_{C-UD2} 在晶粒细化方面仅次于 B_C 路径, 但其具有类似于 B_A 路径的颗粒再分散功能, 大大提高了 Mg₂Si 颗粒分布的均匀性。因而, 经 B_{C-UD2} 路径挤压后的复合材料呈现出比 B_C 路径挤压材料更高的综合力学性能, 室温抗拉强度和伸长率较 B_C 路径挤压材料分别提高了 12% 和 56%, 塑性的提高更为显著。

REFERENCES

- [1] HADIAN R, EMAMY M, VARAHRAM N, NEMATI N. The effect of Li on the tensile properties of cast Al-Mg₂Si metal matrix composite[J]. Mater Sci Eng A, 2008, 490(1/2): 250–257.
- [2] ZHANG Jian, WANG Yu-qing, YANG Bing. Effects of Si content on the microstructure and tensile strength of an in situ Al/Mg₂Si composite[J]. J Mater Res, 1999, 14(1): 68–74.
- [3] MABUCHI M, KUBOTA K, HIGASHI K. Tensile strength, ductility and fracture of magnesium-silicon alloys[J]. J Mater Sci, 1996, 31(6): 1529–1535.
- [4] ZHANG J, FAN Z, WANG Y Q, ZHOU B L. Microstructural development of Al-15wt.%Mg₂Si in situ composite with mischmetal addition[J]. Mater Sci Eng A, 2000, 281(1/2): 104–112.
- [5] ZHANG J, FAN Z, WANG Y, ZHOU B. Microstructural refinement in Al-Mg₂Si in situ composites[J]. J Mater Sci Lett,

表 1 Al-Mg₂Si 复合材料的室温拉伸性能

Table 1 Tensile properties of Al-Mg₂Si composites at room temperature

Material	Route	σ_b /MPa	δ %
ECAP	B _{C-UD2}	331.8	23.6
Al-10.9% Mg ₂ Si	B _C	297.3	15.15
Die cast		329	8.3
Al/15Mg ₂ Si/8Si ^[2]			

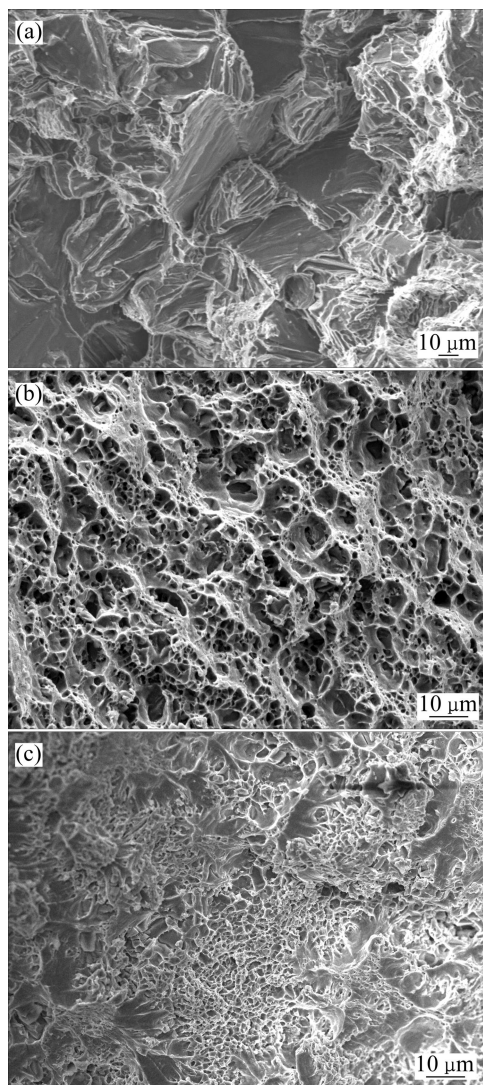


图 6 合金在铸态及 B_{C-UD2} 路径和 B_C 路径 ECAP 挤压态的室温拉伸断口形貌

Fig.6 Fractographs of Al-10.9%Mg₂Si alloys in as-cast state (a) and through 8-pass ECAP processing by routes B_{C-UD2} (b) and B_C (c)

- 1999, 18(10): 783–784.
- [6] LI Chong, LIU Xiang-fa, WU Yu-ying. Refinement and modification performance of Al-P master alloy on primary Mg₂Si in Al-Mg-Si alloys[J]. *J Alloys Compd*, 2008, 465(1/2): 145–150.
- [7] MABUCHI M, KUBOTA K, HIGASHI K. Effect of hot extrusion on mechanical properties of a Mg-Si-Al alloy[J]. *Mater Lett*, 1994, 19: 247–250.
- [8] MABUCHI M, HIGASHI K. Strengthening mechanisms of Mg-Si alloys[J]. *Acta Mater*, 1996, 44(11): 4611–4618.
- [9] FROMMEYER G, BEER S, von OLDENBURG K. Microstructure and mechanical properties of mechanically alloyed intermetallic Mg₂Si-Al alloys[J]. *Z Metallkde*, 1994, 85(5): 372–377.
- [10] 张 郑, 王经涛, 赵西成. 7475 铝合金 ECAP 的晶粒细化极限[J]. *中国有色金属学报*, 2004, 14(5): 741–745.
- ZHANG Zheng, WANG Jing-tao, ZHAO Xi-cheng. Microstructure and grain refinement limit of 7475 aluminum alloy after equal channel angular pressing[J]. *The Chinese Journal of Nonferrous Metals*, 2004, 14(5): 741–745.
- [11] SABIROV I, KOLEDNIK O, VALIEV R Z, PIPPAN R. Equal channel angular pressing of metal matrix composites: Effect on particle distribution and fracture toughness[J]. *Acta Materialia*, 2005, 53(18): 4919–4930.
- [12] VALIEV RUSLAN Z, LANGDON TERENCE G. Principles of equal-channel angular pressing as a processing tool for grain refinement[J]. *Progress in Materials Science*, 2006, 51(7): 881–981.
- [13] LIANG Wei, BIAN Li-ping, XIE Guo-yin. Transformation matrix analysis on the shear characteristics in multi-pass ECAP processing and predictive design of new ECAP routes[J]. *Mater Sci Eng A*, 2010, 527(21/22): 5557–5564.
- [14] WANG Shun-qi, LIANG Wei, WANG Yu, BIAN Li-ping, CHEN Ke-hua. A modified die for equal channel angular pressing[J]. *J Mater Process Technol*, 2009, 209(7): 3182–3186.
- [15] GARCÍA-INFANTA J M, ZHILYAEV A P, CEPEDA-JIMÉNEZ C M, RUANO O A, CARREÑO F. Effect of the deformation path on the ductility of a hypoeutectic Al-Si casting alloy subjected to equal-channel angular pressing by routes A, B_A, B_C and C[J]. *Scripta Materialia*, 2008, 58(2): 138–141.
- [16] LLOYD D J. Aspects of fracture in particulate reinforced metal matrix composites[J]. *Acta Metall Mater*, 1991, 39(1): 59–71.

(编辑 龙怀中)