

时效热处理对水下搅拌摩擦加工 WE43 镁合金的微观组织及力学性能的影响

曹耿华¹, 刘一雄¹, 张大童², 郑振兴¹

(1. 广东技术师范学院, 广东 广州 510665)

(2. 华南理工大学 广东省金属新材料制备与成形重点实验室, 广东 广州 510641)

摘要: 研究了铸造 WE43 镁合金在水下搅拌摩擦加工 (SFSP) 过程中的微观组织演变, 以及后续时效热处理对 SFSP 试样微观组织及力学性能的影响。结果表明, SFSP 显著细化了铸造 WE43 镁合金的晶粒尺寸, 同时也将粗大的第二相破碎成细小弥散的不规则状颗粒。SFSP 后, 由于微观组织的细化及均匀化, 材料的强度和伸长率均得到大幅提升。经过后续时效热处理, 由于 β'' 和 β_1 相的大量析出, 峰值时效试样的强度得到了进一步提高, 伸长率则有所降低。断口形貌分析表明, SFSP 试样的拉伸断裂模式更倾向于韧性断裂, 而峰值时效试样的拉伸断裂模式为韧-脆混合断裂。

关键词: WE43 镁合金; 搅拌摩擦加工; 微观组织; 时效热处理; 力学性能

中图分类号: TG146.22

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2018)10-3179-06

Mg-RE 合金是重要的耐热合金系, 适用于制作 200~300 °C 下长期工作的零部件^[1]。由于原子尺寸和原子价因素的共同作用, Y 元素的添加显著提高了 Mg-RE 合金的固溶强化效应; 由于固溶强化和析出强化的共同作用, Nd 元素的添加能够极大增强 Mg-RE 合金的耐蠕变性能^[2,3]。因此, Mg-Y-Nd 系列镁合金 (WE 型) 在室温及高温条件下均呈现优良的抗拉强度、疲劳强度和蠕变强度。WE 型镁合金也被认为是开发最为成功的耐热稀土镁合金之一^[4]。

目前, 常用的 WE43 镁合金大多选用传统的铸造成型方式, 铸态组织中粗大的第二相和 α -Mg 晶粒使合金力学性能偏低, 无法满足某些特殊条件下使用的结构部件的要求。众所周知, 合金微观组织的细化可以显著地提高材料的综合力学性能。搅拌摩擦加工 (friction stir processing, FSP) 是由 Mishra 及合作者于 1999 年, 基于搅拌摩擦焊接原理提出的一种新型强塑性变形加工技术, 并迅速在细晶金属材料制备领域得到了广泛关注^[5]。由于 FSP 过程中引入了极大的强塑性变形, 以及搅拌针轴肩与板材表面的摩擦作用, 从而使加工区域的温度升高, 导致再结晶晶粒在一定程度上的长大。研究表明, 通过在 FSP 过程中施加循环水的强制冷却方式, 可以得到晶粒尺寸更为细小的加工区材料, 从而进一步提升材料的力学性能^[6]。本课题组

之前对 Mg-Y-Nd 合金进行 FSP 的研究中发现, 水下搅拌摩擦加工 (submerged friction stir processing, SFSP) 获得了比空气中加工更为细小的晶粒尺寸, 虽然二者的强度较为接近, 但是 SFSP 试样的塑性显著优于后者^[7]。作为一种时效析出强化合金, 在适当的热处理工艺下, 细晶 WE43 镁合金的强度还可以获得进一步提高。Mengucci 等人^[8]对铸态 WE43 镁合金进行锻造+时效热处理后, 峰值时效试样的屈服强度与铸态相比提高了 86%, 与锻造态相比提高了 30%, 同时保持了良好的伸长率。因此, 本实验主要研究铸态 WE43 镁合金在 SFSP 过程中的微观组织演变, 后续时效热处理工艺对 SFSP-WE43 镁合金微观组织及力学性能的影响。

1 实验

选取铸态 Mg-4.27Y-2.94Nd-0.51Zr (质量分数, %) 合金作为母材 (base metal, BM), 板材尺寸为 200 mm×130 mm×6 mm。在 FSW-RT31-003 型搅拌摩擦焊机上进行 FSP。采用带螺纹的锥形搅拌针, 搅拌头的轴肩直径为 16 mm, 搅拌针长为 5 mm, 根部直径为 4 mm, 搅拌针与焊机主轴的倾斜角为 2.5°。SFSP 过程中, 冷却水的流速保持在 30±5 mL/s, 主轴旋转速率为 600 r/min, 加工速率为 60 mm/min。SFSP 后对试样进行时效处理, 时效温度为 150 和 180 °C, 时效处理

收稿日期: 2017-10-28

基金项目: 广东省自然科学基金 (2015A030312003, 2015A030313668); 广东省金属新材料制备与成形重点实验室开放课题 (GJ201602)

作者简介: 曹耿华, 男, 1986 年生, 博士, 广东技术师范学院机电学院, 广东 广州 510665, 电话: 020-38825696, E-mail: cghcaogenghua@126.com

时间分别为 1、6、12、18、24、30、36、42、48、54、60、66、72 h。为了避免试样表面氧化，时效全程采用石墨粉覆盖保护，时效完成后取出空冷。

微观组织观察试样取自搅拌区 (stir zone, SZ)，且垂直于加工方向选取。经机械打磨和抛光后采用苦味酸乙醇混合溶液 (5 g 苦味酸+10 mL 乙酸+10 mL 蒸馏水+80 mL 乙醇) 进行腐蚀，用 LEICA 光学显微镜 (OM) 和 LEO-1530VP 型扫描电镜 (SEM) 对加工试样时效前后的微观组织进行观察，采用截线法测量平均晶粒尺寸。利用 SEM 自带的能谱分析仪 (Inca 300, Oxford, UK) 对第二相进行成分分析。试样经砂纸打磨和离子减薄后，采用透射电镜 TEM (JEM-2010, JEOL, Tokyo, Japan) 观察析出相形貌。

采用 HVS-1000 型数显显微硬度计测量显微硬度，载荷为 0.98 N，保压时间为 10 s，选取每个试样中 SZ 中线位置上的 5 个点进行硬度测量，取其平均值为结果。利用 SANS-CMT-5105 微机控制电子万能材料试验机进行室温拉伸测试，平行于加工方向切取拉伸试样，试样尺寸为 5 mm×3.5 mm×1.5 mm。测试的应变速率为 $2 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ ，5 个试样的平均值为测试结果。拉伸试样断口形貌在 SEM 下进行观察，加速电压为 10~20 kV。

2 结果与分析

2.1 铸态及 SFSP 试样的微观组织分析

图 1 为铸态 WE43 镁合金的典型微观组织及第二相颗粒的能谱 (EDS) 分析结果。从图 1a 可以看出，铸态组织中的等轴 α -Mg 晶粒平均尺寸约为 53 μm ；第二相的分布不均匀，主要聚集于晶界位置 (图 1a 中黑色颗粒)。从图 1b 所示的背散射电子 (back-scattered electron, BSE) 图片中，可以清晰地看到白色的粗大第二相，或沿晶界呈半连续网状分布，或呈短杆状和颗粒状在 α -Mg 晶粒内部散落分布。EDS 结果显示，呈半连续网状结构的第二相主要为富 Nd 相，呈颗粒状的第二相则主要为富 Y 相 (如图 1c 和 1d 所示)。结合之前的研究结果^[7,9]，母材组织主要由 α -Mg 晶粒、 Mg_{12}Nd 和 Mg_{24}Y_5 第二相组成。

图 2 所示为铸态 WE43 镁合金经过 SFSP 后上表面及横截面的宏观形貌图片。可以看出，在本实验的加工条件下，获得了表面质量较好的加工试样。FSP 过程中，高速旋转的搅拌头与工件表面产生摩擦热，搅拌针周围被软化的材料由搅拌头前进侧向后退侧流动，同时还由搅拌区下部向上部转移，在搅拌针轴肩的挤压作用下产生剧烈塑性变形^[5]。镁合金是一种受热后极易氧化的金属材料，但是在水的冷却及保护作用下，加工区域上表面仍呈现出平整、光亮的宏观形貌 (图 2a 所示)；加工区域横截面则呈现出对称的“盆状”形貌 (图 2b 所示)，没有观察到裂纹或孔洞缺陷，且与母材之间出现明显的分界线，意味着二者之间具有不同的微观组织特征。

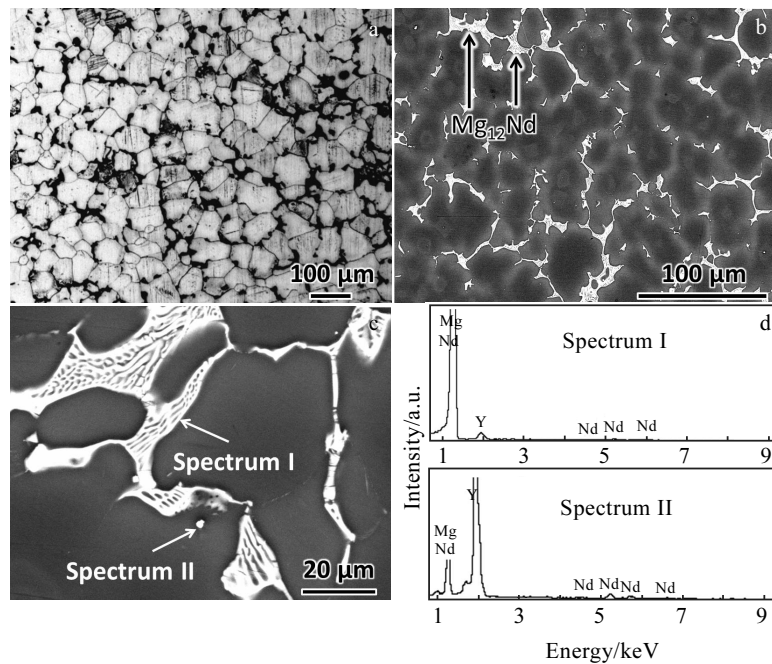


图 1 铸态 WE43 镁合金典型微观组织及其能谱分析结果

Fig.1 Typical microstructure of as-cast WE43 alloy: (a) OM image, (b, c) BSE images, and (d) EDS results corresponding to spectrum I and spectrum II in Fig.1c

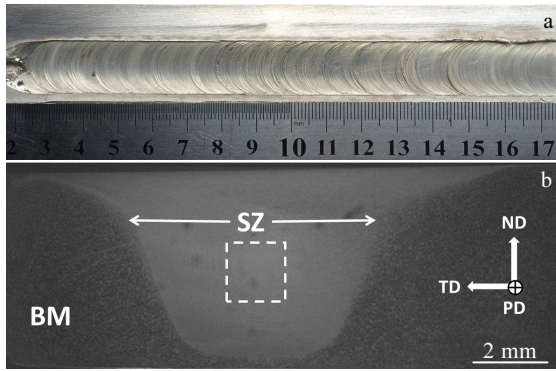


图 2 SFSP-WE43 镁合金上表面及横截面的宏观形貌

Fig.2 Morphologies of the SFSP-WE43 alloy: (a) top surface and (b) cross-section

图 3 为 SFSP 试样搅拌区中间位置（图 2b 方框区域）的微观组织图片。从图 3a 可以看出，搅拌区的组织与铸态相比得到了显著细化，平均晶粒尺寸约为 1.3 μm 。这是由于在加工过程中，搅拌区材料在剧烈的搅拌摩擦作用下发生塑性变形和动态再结晶所致^[5]。在本研究中，由于水的冷却作用，限制了再结晶晶粒的长大，最终获得了细小的等轴状晶粒组织。此外，剧烈的搅拌作用还使铸态组织中粗大的第二相得到了破碎，呈细小弥散的不规则状颗粒分布于基体中（图 3b 中白色颗粒）。

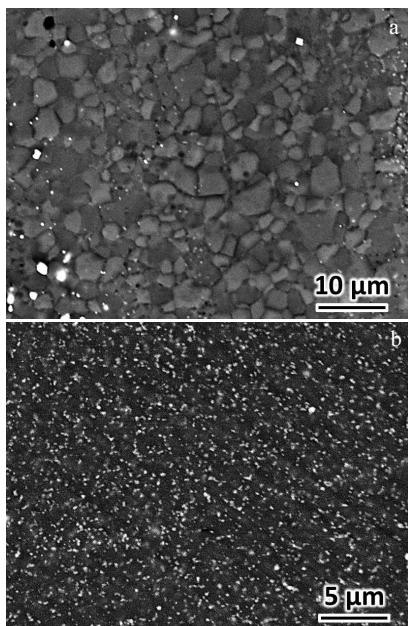


图 3 SFSP-WE43 镁合金的典型微观组织

Fig.3 Microstructures of SFSP-WE43 alloy: (a) SEM image and (b) BSE image

2.2 时效热处理对 SFSP 试样微观组织的影响

图 4 所示为 SFSP 试样分别在 150 和 180 $^{\circ}\text{C}$ 的时效温度下，显微硬度值随着时效时间的变化曲线。SFSP 试样的平均显微硬度值约为 1006 MPa，在 150 和 180 $^{\circ}\text{C}$ 的时效温度下，随着时效时间的延长，试样的显微硬度值均呈现先增加后减小的变化趋势，说明加工试样分别经历了欠时效、峰值时效和过时效 3 个阶段。其中，峰值时效工艺参数分别为 150 $^{\circ}\text{C}/66\text{ h}$ 和 180 $^{\circ}\text{C}/54\text{ h}$ ，对应的显微硬度值分别为 1159 和 1216 MPa。在下文中，峰值时效试样分别简称为 SFSP+150 $^{\circ}\text{C}$ 和 SFSP+180 $^{\circ}\text{C}$ 。

图 5a 和 5b 分别为 SFSP+150 $^{\circ}\text{C}$ 和 SFSP+180 $^{\circ}\text{C}$ 试样的金相组织图片。可以看出，加工试样的晶粒组织在时效热处理后仍然较为细小，说明 SFSP-WE43 镁合金具有较高的组织稳定性。众所周知，Mg-RE 合金内部的热稳定相对提高合金的耐热性具有极大的帮助^[10,11]。在本研究的时效热处理过程中，SFSP 试样内部弥散分布的第二相颗粒同样有利于阻碍 $\alpha\text{-Mg}$ 晶粒长大。

图 6a~6c 分别为 SFSP、SFSP+150 $^{\circ}\text{C}$ 和 SFSP+180 $^{\circ}\text{C}$ 试样的 TEM 图片。通过图 6a 可以发现，SFSP 试样内部主要存在着不规则状的 Mg_{12}Nd 相和方块状的 Mg_{24}Y_5 相。经过 150 $^{\circ}\text{C}/66\text{ h}$ 的时效热处理后，SFSP+150 $^{\circ}\text{C}$ 试样中发现了大量细小的析出相（图 6b）。据文献报道，在 150 $^{\circ}\text{C}$ 的时效温度下，经过 12 d 和 5000 h 的时效处理后，WE43 镁合金中仍然只观察到了 β'' 相的析出^[12,13]。说明 WE43 镁合金在时效温度为 150 $^{\circ}\text{C}$ 时的主要析出相为 β'' 相。但是 Nie 等人^[14]认为，Mg-RE 合金的驱动力较低，而 β'' 相的形成和长大需要较大激活能，因此该相很难存在于 Mg-RE 合金中。Choudhuri 等人^[15]也对 Mg-Nd 二元合金的时效析

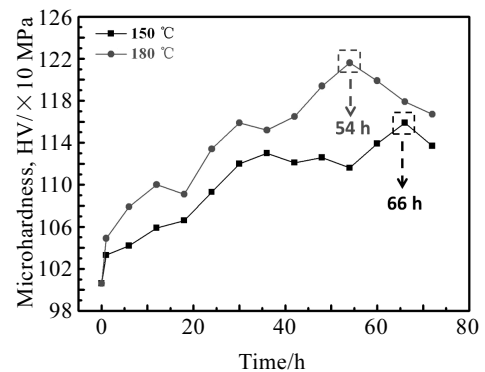


图 4 SFSP 试样在 150 和 180 $^{\circ}\text{C}$ 条件下的时效硬化曲线
Fig.4 Age hardening curves of SFSP specimens aged at 150 and 180 $^{\circ}\text{C}$

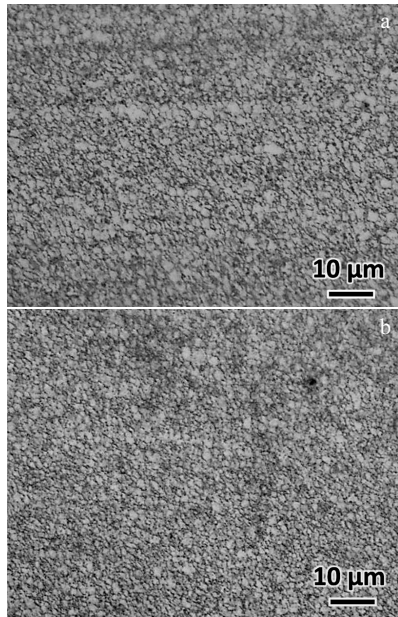


图 5 SFSP+150 °C 和 SFSP+180 °C 时效试样的金相组织
Fig.5 Optical images of SFSP+150 °C (a) and SFSP+180 °C (b)

出行为进行研究后发现，合金在时效早期析出的先驱相为 β' 和 β_1 相，并没有观察到 β'' 相的存在，所谓的 β'' 相很可能就是 GP 区。以上二者对于 β'' 相的形貌及晶格参数提出了质疑，但是对 WE43 镁合金在低温时效

条件下的析出相种类尚未给出明确的判断与定义。结合大多数学者的报道^[10-13]及本课题组之前的研究结果^[16]，在 150 °C 的峰值时效条件下，SFSP-WE43 镁合金中的析出相还是以 β'' 相为主。在 180 °C 的峰值时效条件下，试样内部则出现了大量的棒状析出相（图 6c），结合其形貌及图 6d 中对应的选区电子衍射花样（selected area diffraction pattern, SADP）分析^[15]，析出相为 β_1 相。一般而言， β_1 相优先依附于微观组织中的缺陷位置形核生长^[17]，SFSP 试样中存在的位错为 β_1 相的形核与生长提供了有利条件。综上所述，SFSP 试样在 150 °C/66 h 和 180 °C/54 h 的时效条件下，主要的析出相分别是 β'' 和 β_1 相。

2.3 时效热处理对 SFSP 试样力学性能的影响

图 7 所示为 BM、SFSP、SFSP+150 °C 和 SFSP+180 °C 试样的拉伸性能汇总图。其中，BM 试样的抗拉强度（UTS）、屈服强度（YS）和伸长率分别为 199、189 MPa 和 5%。由于 SFSP 具有极佳的微观组织改性效果（图 3 所示），在晶粒细化产生的晶界强化和第二相细化产生的弥散强化的共同作用下，SFSP 试样的强度得到了大幅提升，其 UTS 和 YS 分别为 315 和 281 MPa。同时，晶粒细化还是 SFSP 试样的塑性显著提高的主要原因，其伸长率是铸态试样的 3 倍以上，达到了 16.2%。在 150 和 180 °C 的峰值时效条件下，SFSP 试样的强度得到了进一步提高，2 种条件下的 UTS 和

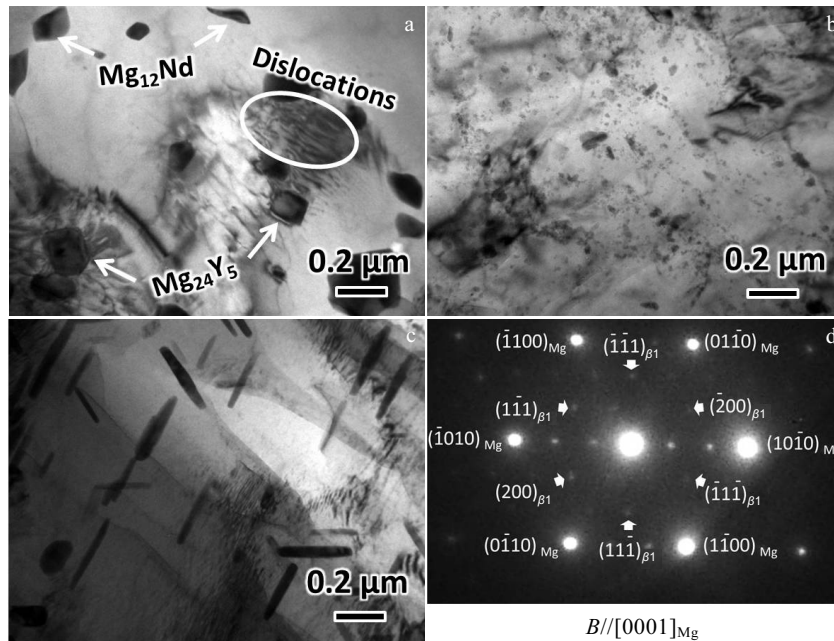


图 6 SFSP 试样及峰值时效热处理条件下试样的 TEM 图片及其选区电子衍射花样
Fig.6 TEM images of SFSP (a), SFSP+150 °C (b), SFSP+180 °C (c), and corresponding SADP (d) (electron beam is parallel to $[0001]_{Mg}$)

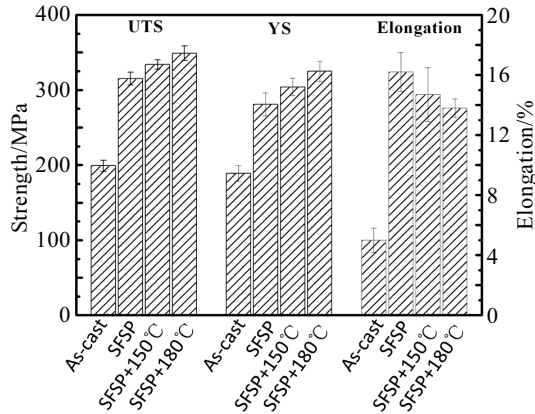


图 7 铸态及 SFSP-WE43 镁合金时效前后的拉伸性能对比
Fig.7 Tensile properties of as-cast, SFSP and peak-aged specimens

YS 分别为 334 和 304 MPa、349 和 325 MPa；塑性则有所降低，分别为 14.7%和 13.8%。WE43 镁合金是一种时效析出强化型镁合金，由于时效过程中析出的细小沉淀相以及晶界相的存在，阻碍了位错滑动而使其在室温具有极高的抗拉强度^[8]。在 150 和 180 °C 的峰值时效条件下，SFSP-WE43 镁合金中的主要析出相分别为 β'' 和 β_1 相，由于这些细小弥散的增强相，时效后试样的强度得到了进一步提升，也正因为大量析出相提供的裂纹形核位置，导致试样的伸长率有所降低。Kumar 等人^[18]选取热轧态 WE43 镁合金进行了空气中

FSP 及后续时效热处理，在其研究结果中，FSP 试样和峰值时效试样的 UTS 分别为 283 和 306 MPa，伸长率分别为 32.4%和 26.9%。得益于冷却水对 FSP 过程中再结晶晶粒长大的限制作用，WE43 镁合金在 SFSP 后获得了更为细小的晶粒组织，对应试样的强度也略高于 Kumar 等人^[18]的研究结果，但是塑性却低于其报道结果。究其原因，本研究中选用的铸造 WE43 镁合金组织由粗大的 α -Mg 晶粒及第二相颗粒构成（如图 1 所示），而 Kumar 等人选用的是组织较为均匀的热轧态 WE43 镁合金，2 种试样的原始微观组织存在极大差异。

图 8 所示为拉伸试样的断口形貌。从图 8a 中可以看出，SFSP 试样的断口较为平整，而峰值时效试样的断口处则出现了台阶状形貌（如图 8b 和 8c 中虚线所示）。这是因为峰值时效条件下的大量析出相与 α -Mg 基体之间的塑性变形不一致，在变形过程中，富含析出相的区域容易产生应力集中，为裂纹提供形核位置的同时，还改变着裂纹的扩展路径^[16,19]。在高倍下，SFSP 试样与峰值时效试样的断口均出现了细小的韧窝和解理面特征（如图 8d, 8e 和 8f 中圆圈所示）。相比较而言，SFSP 试样断口的韧窝更多且更深，解理面较少且较小，说明 SFSP 试样的拉伸断裂模式更倾向于韧性断裂。而峰值时效试样断口的韧窝相对较少且较浅，解理面也更多且更大，说明峰值时效试样的拉伸断裂模式为韧-脆混合断裂模式。

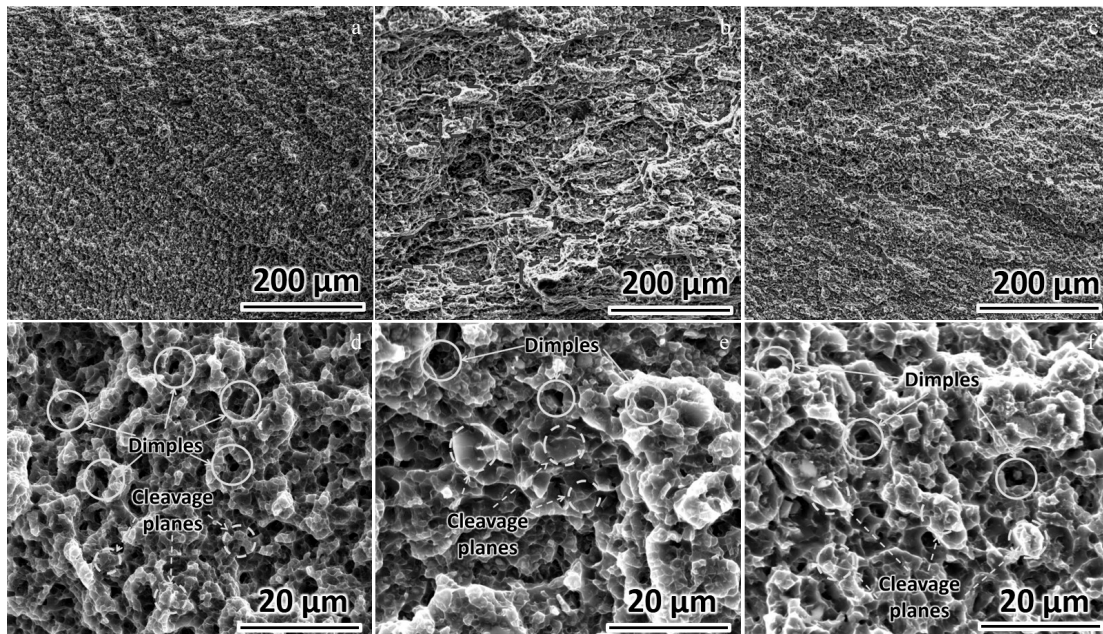


图 8 SFSP, SFSP+150 °C, SFSP+ 180 °C 拉伸试样的断口形貌
Fig.8 SEM images of tensile fracture surfaces: (a, d) SFSP; (b, e) SFSP+150 °C; (c, f) SFSP+180 °C

3 结 论

1) 铸造 WE43 镁合金在 SFSP 后, 平均晶粒尺寸从 53 μm 细化至 1.3 μm , 粗大的网状第二相得到了破碎, 呈细小弥散的不规则状颗粒分布于 $\alpha\text{-Mg}$ 基体中。

2) SFSP 试样的抗拉强度、屈服强度和伸长率分别为 315、281 MPa 和 16.2%, 远高于铸态试样的力学性能。在 150 $^{\circ}\text{C}/66\text{ h}$ 和 180 $^{\circ}\text{C}/54\text{ h}$ 的峰值时效条件下, 分别由于 β'' 和 β_1 相的大量析出, SFSP 试样的强度得到了进一步提高, 伸长率均有所降低。

3) SFSP 试样的拉伸断裂模式更倾向于韧性断裂, 而峰值时效试样的拉伸断裂模式为韧-脆混合断裂。

参考文献 References

- [1] Yan Yunqi(闫蕴琪), Zhang Tingjie(张廷杰), Deng Ju(邓 炬) *et al. Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2004, 33(6): 561
- [2] Gao L, Chen R S, Han E H. *Journal of Alloys and Compounds* [J], 2009, 481(1-2): 379
- [3] Yan J L, Sun Y S, Xue F *et al. Materials Science and Engineering A*[J], 2008, 476(1): 366
- [4] Nie J F, Muddle B C. *Scripta Materialia*[J], 1999, 40(10): 1089
- [5] Mishra R S, Ma Z Y. *Materials Science and Engineering R*[J], 2005, 50(1-2): 1
- [6] Valle J A D, Rey P, Gestó D *et al. Materials Science and Engineering A*[J], 2015, 628(2): 198
- [7] Cao G H, Zhang D T, Zhang W *et al. Journal of Alloys and Compounds*[J], 2015, 636: 12
- [8] Mengucci P, Barucca G, Riontione G *et al. Materials Science and Engineering A*[J], 2008, 479(1-2): 37
- [9] Cao G H, Zhang D T, Chai F *et al. Materials Science and Engineering A*[J], 2015, 642: 157
- [10] Riontione G, Massazza M, Lussana D *et al. Materials Science and Engineering A*[J], 2008, 494(1-2): 445
- [11] Antion C, Donnadiou P, Perrard F *et al. Acta Materialia*[J], 2003, 51(18): 5335
- [12] Panigrahi S K, Yuan W, Mishra R S *et al. Materials Science and Engineering A*[J], 2011, 530(1): 28
- [13] Apps P J, Karimzadeh H, King J F *et al. Scripta Materialia*[J], 2003, 48(8): 1023
- [14] Nie J F, Wilson N C, Zhu Y M *et al. Acta Materialia*[J], 2016, 106: 260
- [15] Choudhuri D, Dendge N, Nag S *et al. Journal of Materials Science*[J], 2014, 49(20): 6986
- [16] Cao G H, Zhang D T, Luo X C *et al. Journal of Materials Science*[J], 2016, 51(16): 7571
- [17] Nie J F. *Metallurgical and Materials Transactions A*[J], 2012, 43(11): 3891
- [18] Kumar N, Dendge N, Banerjee R *et al. Materials Science and Engineering A*[J], 2014, 590(1): 116
- [19] Uematsu Y, Tokaji K, Fujiwara K *et al. Fatigue and Fracture of Engineering Materials and Structures*[J], 2009, 32(7): 541

Effect of Aging Treatment on Microstructural Evolution and Mechanical Properties of Submerged Friction Stir Processed WE43 Alloy

Cao Genghua¹, Liu Yixiong¹, Zhang Datong², Zheng Zhenxing¹

(1. Guangdong Polytechnic Normal University, Guangzhou 510665, China)

(2. Guangdong Key Laboratory for Advanced Metallic Materials processing, South China University of Technology, Guangzhou 510641, China)

Abstract: The as-cast WE43 alloy was subjected to submerged friction stir processing (SFSP). The effects of aging treatment on the microstructural evolution and mechanical properties of SFSP specimens were investigated. The results show that the microstructure of the cast WE43 alloy is significantly refined and the mechanical properties are greatly enhanced by SFSP. After the subsequent artificial aging treatment at 150 $^{\circ}\text{C}$ for 66 h and 180 $^{\circ}\text{C}$ for 54 h, the strengths of the peak-aged specimens further increase, which is attributed to the large quantity of β'' and β_1 precipitates, respectively. Meanwhile, elongations of the peak-aged specimens are both decreased since more crack nucleation sites are provided with the increasing precipitates. The failure mechanism of SFSP specimen is ductile fracture, while that of the peak-aged specimens is mixed ductile-brittle fracture.

Key words: WE43 alloy; friction stir processing; microstructure; aging treatment; mechanical property

Corresponding author: Cao Genghua, Ph. D., School of Mechanical and Electronic Engineering, Guangdong Polytechnic Normal University, Guangzhou 510665, P. R. China, Tel: 0086-20-38825696, E-mail: cghcaogenghua@126.com