

AZ31 镁合金在累积叠轧焊过程中的界面焊合研究

Interface Bonding of AZ31 Magnesium Alloys
During Accumulative Roll-bonding

詹美燕¹, 李春明¹, 张卫文², 张大童²

(1 华南理工大学 材料科学与工程学院, 广州 510640;

2 华南理工大学 国家金属材料近净成形工程技术研究中心, 广州 510640)

ZHAN Mei-yan¹, LI Chun-ming¹, ZHANG Wei-wen², ZHANG Da-tong²

(1 School of Materials Science and Engineering, South China University of
Technology, Guangzhou 510640, China; 2 National Engineering Research

Center of Near-net-shape Forming for Metallic Materials, South
China University of Technology, Guangzhou 510640, China)

摘要: 采用扫描电镜观察了 AZ31 镁合金在累积叠轧焊 (ARB) 过程中的界面焊合现象。结果表明: 轧前预热温度为 300℃ 和道次压下量为 50% 的累积叠轧焊工艺可以使 AZ31 板材获得良好的界面焊合, 后续的累积叠轧焊变形可以有效改善界面焊合质量。ARB 板材的拉伸断口呈现典型的延性断裂形貌, 界面未形成良好焊合的部分呈现裂口焊合形貌。累积叠轧焊变形中的界面焊合过程包括: 表面硬化脆性层减薄、断裂, 氧化膜破碎, 暴露出来的新鲜金属在轧制压力的作用下沿裂纹流动、相互接触, 形成冶金结合。后续退火可以改善界面焊合质量。

关键词: Mg-3Al-1Zn 镁合金; 累积叠轧焊; 界面; 焊合

中图分类号: TG142.1 **文献标识码:** A **文章编号:** 1001-4381(2012)01-0018-07

Abstract: Interface bonding mechanism of AZ31 magnesium alloys during accumulative roll-bonding (ARB) was studied by scanning electron microscopy. The results indicate that a good bonding is achieved during ARB by 50% thickness reduction at 300℃ and the subsequent rolling improves the bonding of interfaces introduced in the previous cycles. The ARB specimens show a typical ductile fracture with dimples and shear zones even at the bonded interface. When bonding is insufficient, the fracture surfaces are characterized by micro-cracks. Interface bonding process during ARB consists of two opposing brittle surface layers being deformed and broken up, underlying metals being exposed and extruded under the action of normal rolling pressure through widening cracks in the surface layers and contacting with each other. Bonding quality can be improved by annealing after ARB.

Key words: Mg-3Al-1Zn magnesium alloy; accumulative roll-bonding; interface; bonding

剧塑性变形技术 (Severe Plastic Deformation, SPD) 通过循环变形, 对材料施加大的累积应变, 可以制备具有超细晶组织的材料, 有效改善材料的力学性能, 是近年来备受关注的研究热点。累积叠轧焊 (Accumulative Roll-Bonding, ARB) 工艺作为剧塑性变形技术之一, 最早由 Saito 等^[1] 提出。累积叠轧焊工艺过程包括^[1]: 尺寸相等的两块金属薄板, 表面进行脱脂及加工硬化等处理, 在一定温度、50% 的轧制变形量下叠轧并使其自动焊合, 然后锯切成相同的两块, 再重复进行相同的工艺反复叠轧焊合。ARB 工艺的基本目标是通过循环变形, 在板材上施加较大的塑性变形, 使

材料的组织细化, 强度提高, 同时板材的外观尺寸保持不变。与其他 SPD 技术相比, ARB 工艺的优越性在于, 可以在常规轧制设备上进行变形, 制备大尺寸的超细晶板材, 容易实现工业化生产。近年来 ARB 工艺被广泛应用于纯铝、铝合金和无间隙原子钢 (Interstitial Free, IF) 及少量的变形镁合金^[2-5]。

镁及其合金作为 21 世纪最具潜力的绿色环保结构材料, 具有许多优越性, 在汽车工业、通讯、电子数码产品等领域具有广泛的应用前景。但是, 相对于其他传统的结构材料, 镁合金的强度和延性较低, 成为限制其开发和应用的瓶颈。如果能把 ARB 技术应用于制

备镁合金板材,通过晶粒细化改善镁合金的延性和强度,则可以明显拓宽镁合金的应用领域。目前 ARB 技术在镁合金领域的研究较少,仅涉及镁合金在 ARB 变形过程中的组织演变^[6,7]。作者的初步研究发现^[8],ARB 工艺可以有效细化组织,显著提高 AZ31 的延性。ARB 变形同时也是一种轧制焊合过程,目前,ARB 变形中的焊合过程及其机制尚鲜有报道,但是显然 ARB 材料的界面焊合质量是影响其工业应用性的重要因素,因此,本工作对 AZ31 镁合金板材在 ARB 变形过程中的界面焊合进行了研究,以期揭示界面焊合过程及可能的焊合机制。

1 实验材料与方法

实验购买商业 AZ31 镁合金薄板作为原材料,厚度为 1.3mm。ARB 坯料的尺寸为 75mm×200mm×1.3mm。薄板表面用钢丝刷进行打磨,以去除表面污染层,增加表面层的硬度,然后用丙酮清洗表面以去除油脂等附着物。两块经表面处理后的薄板上下对齐,两端用细钢丝绑定。ARB 变形在常规 $\phi 400\text{mm} \times 600\text{mm}$ 冷轧机上进行,轧辊无润滑。轧制道次压下量为 50%。ARB 变形前坯料在电阻炉中进行预加热,

加热温度为 300℃,保温时间为 5min。高的预加热温度可以提高 AZ31 的变形性能和界面焊合性能,但是同时也会使材料发生再结晶和晶粒长大,因此预加热温度不宜过高。1 道次轧制完成以后,薄板剪切成两段,再重复循环以上工序。不同轧制道次的板材分别命名为 ARB1,ARB2,ARB3 等。

采用 Nova NanoSEM 430 场发射扫描电镜对 ARB 材料的微观金相组织和断口形貌进行观察,观察面为轧制 RD-ND 面。

2 实验结果与讨论

2.1 表面处理对板材物理性能的影响

图 1 给出了轧制态板材经过表面处理后的表面形貌。由图 1(a),(b)可见,经过表面处理,板材表面洁净很多,原始轧制表面的污染物、氧化膜等大部分都被清除了。由图 1(c),(d)可见,表面处理增加了板材表面的粗糙度。粗糙度测试表明,原始表面的粗糙度 $R_a=1.21\mu\text{m}$,而处理后的表面粗糙度 $R_a=1.40\mu\text{m}$ 。表面维氏硬度测试表明,原始表面的 $\text{HV}=69.92$,处理后表面的 $\text{HV}=73.54$,可见表面处理使板材表面形成了硬化层。

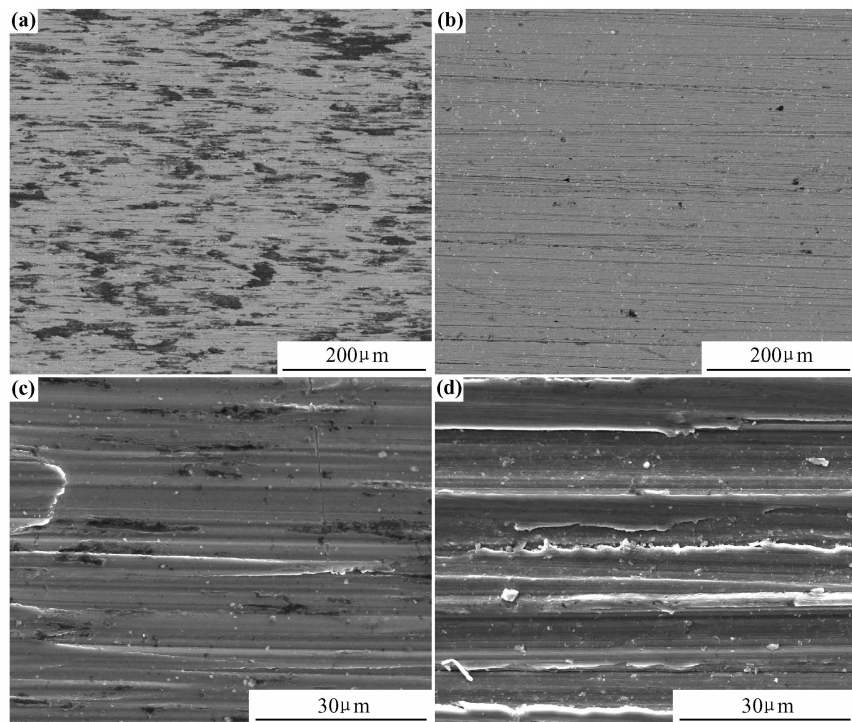


图 1 表面处理前后 AZ31 板材的 SEM 形貌 (a),(c)原始板材表面;(b),(d)处理后的板材表面
Fig. 1 SEM morphology of AZ31 sheets surface (a),(c)initial surface;(b),(d)scratch-brushed surface

2.2 微观组织

图 2 是经过 2 道次和 3 道次 ARB 变形后的微观组

织。根据 ARB 变形原理,经过 2 道次和 3 道次变形后,在厚度方向上分别有 3 层和 7 层,其理论上的位置如图

2 箭头所示。虽然经过腐蚀,但是图 2 中的界面位置并不十分清晰,仅 1/2 厚度处的界面依稀可见,界面处有

一些白色的夹杂物或氧化物颗粒。可见,AZ31 镁合金薄板经过本实验的 ARB 工艺变形,界面焊合良好。

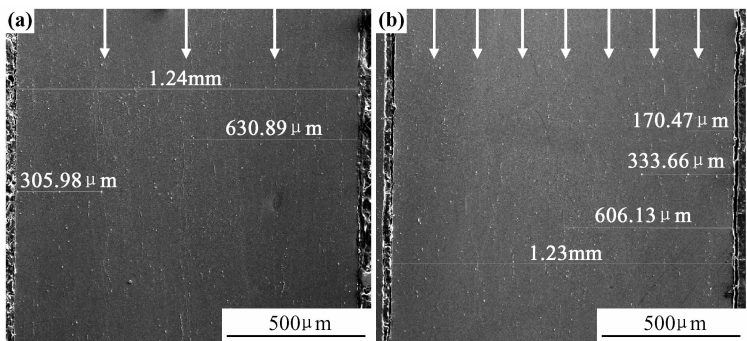


图 2 ARB 变形后 AZ31 薄板的微观形貌 (a)ARB2;(b)ARB3
Fig. 2 Micrographs of RD-ND section of AZ31 sheet after two (a) and three (b) ARB cycles

图 3 为经过 3 道次 ARB 变形的界面附近微观组织 SEM 形貌。由图 3(a)可见,最后道次(ARB3)形成的界面部分已经形成良好的焊合(如箭头所示),界面消失,界面处被形态完好的晶粒所取代;尚有较大部分存在明显的白色界面,但界面显然已经发生了破碎和断裂。由图 3(b)可见,在第 1 道次(ARB1)中形成的

界面,经过后续 2 道次的 ARB 变形,界面已经基本焊合,很少见连续的界面层存在,绝大多数界面区域已经被晶粒取代。由此可见,后续的 ARB 变形可以有效改善之前道次形成的界面层的焊合质量,最后道次的 ARB 界面焊合情况是影响材料力学性能的主要因素。

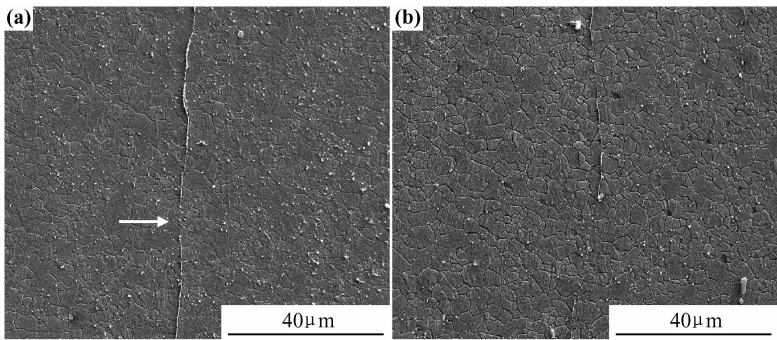


图 3 经过 3 道次 ARB 变形的 AZ31 薄板的不同界面 SEM 形貌
(a)最后道次(ARB3)形成的界面;(b)在第 1 道次(ARB1)中形成的界面
Fig. 3 SEM micrographs of AZ31 after three ARB cycles for the ARB3 interface (a) and the interfaces introduced in ARB1 (b)

为了进一步阐述 ARB 变形过程中 AZ31 镁合金薄板的界面焊合过程,对经过不同道次 ARB 变形的界面进行了观察,以研究其界面焊合机制。AZ31 薄板经过 300℃ 预加热后进行多道次 ARB 变形的界面焊合过程如图 4 所示。从图 4(a)可以看出,初始形成的界面较平直,厚度约 349nm,与晶界尺寸在同一数量级。界面两侧分布着经过剧烈塑性变形的晶粒。界面层的厚度随 ARB 变形而减小,同时发生断裂,经过后续 2 道次 ARB 变形后,尚存的界面层的厚度约 58nm,如图 4(d)所示。由图 4 可见,在 ARB 变形观

察中,AZ31 薄板的界面层焊合包括以下步骤:(1)界面在形成之后,厚度随着后续变形而减薄;(2)在变形过程中,界面层(包括打磨形成的硬化层和氧化膜层)由于塑性比基体金属低,容易发生断裂,在界面上形成裂纹;(3)界面层断裂后,下面的新鲜金属暴露出来,在压力的作用下,上下层的新鲜金属顺着裂纹流动、相互接触,形成物理接触和冶金焊合;(4)在反复循环的 ARB 变形中,断裂的表面层和氧化膜逐步破碎形成颗粒,弥散分布;(5)形成初结合的金属会在后续变形中,在热和压力的共同作用下,进一步改善焊合质量。

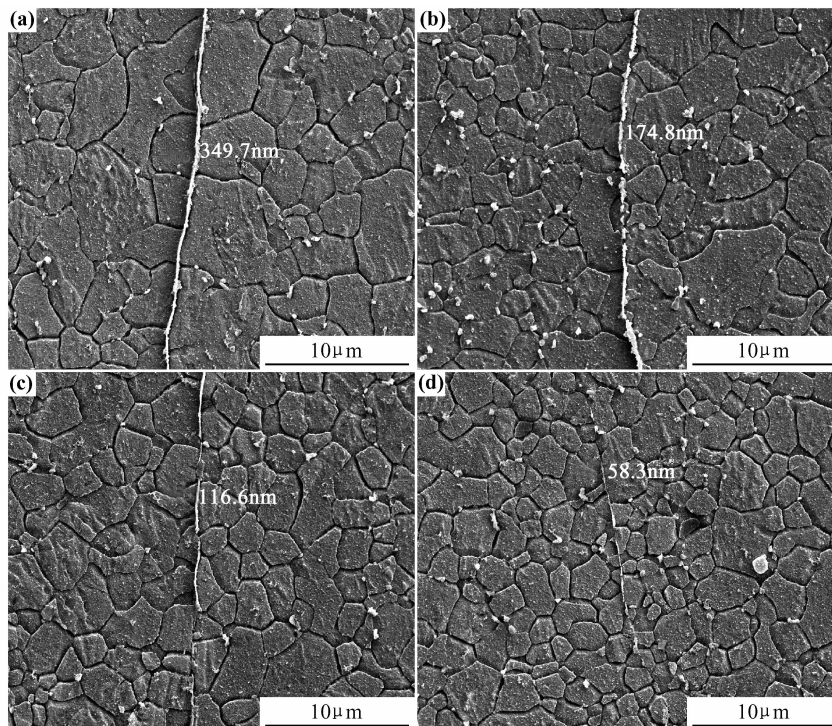


图4 AZ31 薄板在 ARB 变形中的界面焊合过程

(a)初形成的界面;(b),(c)经过 1 道次后续变形的界面;(d)经过 2 道次后续变形的界面

Fig. 4 SEM micrographs of the bonding evolution during ARB

(a)the interface formed after one ARB cycle;(b),(c)the interfaces formed after

two ARB cycles;(d)the interfaces formed after three ARB cycles

2.3 断口形貌

图 5 给出了 ARB 薄板拉伸断口的形貌。由图 5 可见,形成初结合的界面分层清晰可见(图 5(a),(b),(c)的 1/2 厚度处),但是经过后续 ARB 变形的界面显然得到极大的改善,有的界面分层已经完全消失(如图 5(b)箭头所示),有的界面分层尚断断续续可见(如图 5(c)箭头所示)。图 5(c)材料的抗拉强度为 315MPa,断裂伸长率为 19.6%,坯料的抗拉强度和断裂伸长率分别为 315MPa 和 4.27%^[9]。优良的综合力学性能表明,经过 3 道次 ARB 变形,AZ31 薄板的拉伸延性得到显著改善。最后道次的 ARB 界面焊合情况是影响材料力学性能的主要因素,可以通过后续退火,改善最后道次界面焊合质量。图 5(c)材料经过 300℃/2h 退火后,抗拉强度和断裂伸长率分别为 303MPa 和 29.5%,断裂伸长率的大幅提高可部分归功于界面焊合质量得到明显改善。

图 6 给出了高倍下观察的 ARB3 薄板 1/2 厚度处的界面拉伸断口形貌。由图 6 可见,初结合的界面有部分界面已经形成良好的冶金结合,但部分界面明显分层。拉伸断口呈典型的延性断裂特征,焊合的界面部分存在大量韧窝,与基体部分没有明显的区别,说明一旦界面发生焊合,材料将呈现优良的延性。

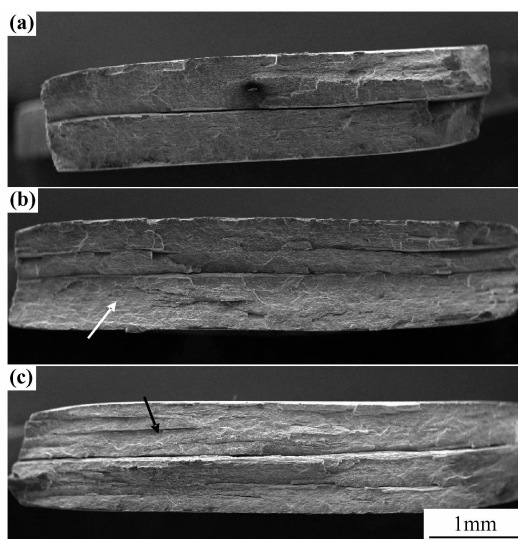


图5 AZ31 镁合金薄板经过 ARB 变形后的拉伸断口形貌

(a)ARB1;(b)ARB2;(c)ARB3

Fig. 5 Tensile fracture surfaces of AZ31 sheets

after one (a), two (b) and three (c) ARB cycles

经过 ARB 变形后的 AZ31 薄板,拉伸断口通常不像原始板材那样,沿厚度方向呈整齐的断面,而是会在 1/2 厚度处发生界面撕裂,如图 7 所示。这说明最后道次引入的界面是 ARB 材料力学性能的薄弱处。

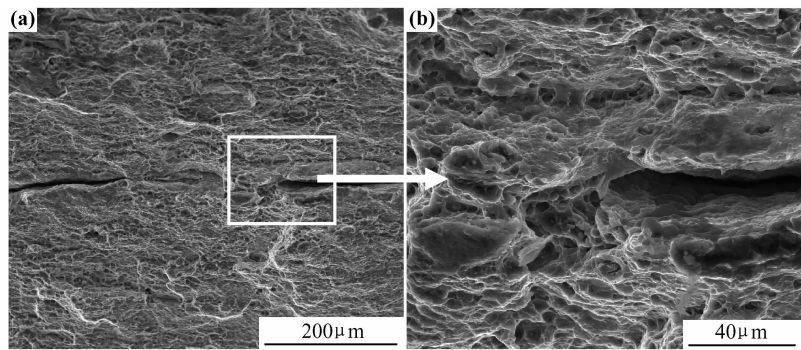


图 6 经过 3 道次 ARB 变形后的 AZ31 镁合金薄板拉伸断口形貌
Fig. 6 Tensile fracture surfaces of ARB-processed AZ31 sheet after three cycles

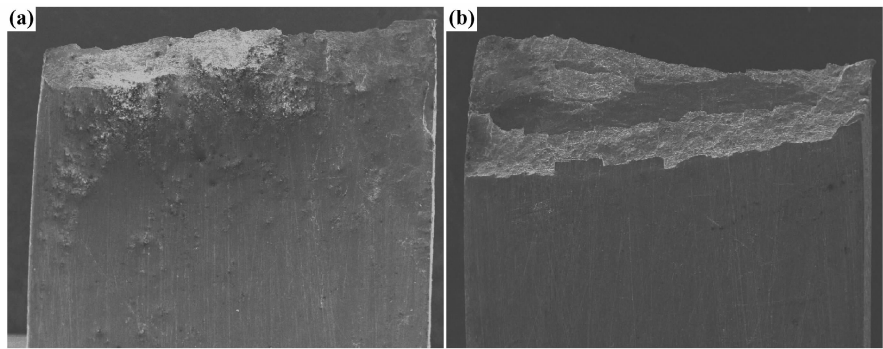


图 7 经过 3 道次 ARB 变形后的 AZ31 镁合金薄板拉伸断口宏观形貌 (a)原始板材;(b)ARB3
Fig. 7 Macrographs of tensile fracture surfaces of AZ31 for initial sheet (a) and the sheet after ARB3 (b)

进一步对拉伸断口的界面撕裂部分进行 SEM 观察,以了解其焊合机理。界面撕裂部分的 SEM 形貌

见图 8。由图 8 可见,断口呈较为平整的未形成良好焊合的部分(图8(a1))和凹凸不平的基体部分(图8

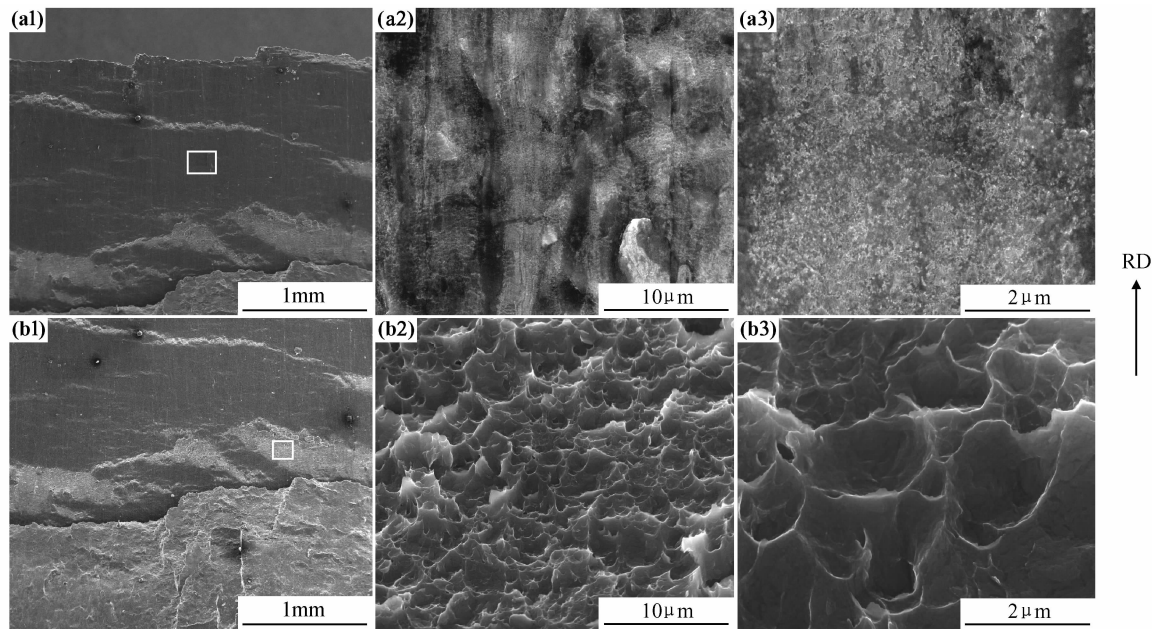


图 8 经过 3 道次 ARB 变形后的 AZ31 镁合金薄板拉伸断口界面撕裂部分的形貌
(a1)尚未形成冶金焊合的界面;(a2),(a3)图(a1)中方框区域的放大;(b1)界面附近基体;(b2),(b3)图(b1)中方框区域的放大
Fig. 8 Tensile fracture near interface of AZ31 sheets after three ARB cycles

(a1)insufficient bonded area;(a2),(a3)the magnification of the framed area in fig. (a1);(b1)matrix near the interface;
(b2),(b3) the magnification of the framed area in fig. (b1)

(b1))两种形貌。在 SEM 下观察,未焊合部分(图 8(a2))存在沿轧制方向的剪切变形痕迹以及部分裂纹。进一步放大断面可见,界面尚处于物理接触阶段,微观上星点点点、高低不平的凹凸形貌(图 8(a3)),显然是上下表面新鲜金属被拉伸剪切变形撕裂的结果,由于尚未达到良好的冶金结合,因此不会出现图 8(b2)中相同放大倍数下的韧窝延性断裂特征。而界面附近的基体部分则呈现典型的延性断裂特征,韧窝较大且分布均匀。

2.4 界面焊合机制

ARB 变形不但是一个累积变形的过程,还是一个轧制界面焊合的过程。目前比较公认的冷轧焊合机制包括^[10-13]薄膜机制,能量势垒机制,扩散焊合机制,再结晶连接机制。Vaidyanath^[10]和 Mohamed^[14]等认为薄膜机制是较低温度下轧制复合的主要焊合机制。薄膜理论的焊合示意图见图 9^[15]。该机制认为,金属表面在钢刷处理过程中会形成一层加工硬化层。该加工硬化薄层比基体的塑性差,在金属的塑性变形过程中,因为塑性协调变形的作用,在硬化层会形成应力集中,发生破裂,并导致底层新鲜金属暴露;界面两侧的新鲜金属在正压力的作用下,通过硬化层的裂缝挤出,由于摩擦力的作用材料的新鲜表面黏结在一起流动,在压应力和切向应力的共同作用下晶粒发生压缩、转动,并相互接触形成牢固的冶金结合。表面破裂源于两种机制:加工硬化表面层的断裂,氧化膜层及其他吸附的水膜层、尘粒层的断裂。

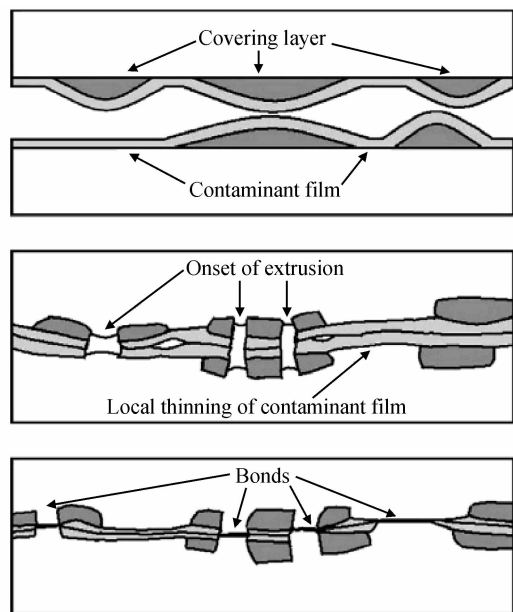


图9 经过表面处理的薄板在轧制焊合过程中的焊合机理
Fig. 9 Bonding mechanism for scratch-brushed surface

焊合形成的两个基本过程可归纳如下:(1)变形前表面处理过程中,通过表面磨刷在薄板表面形成部分加工硬化层。当轧制变形发生时,此脆性层即使变形量较小也会发生断裂,形成大量微裂纹(如图 10 白色箭头所示),使下面的新鲜金属暴露出来,新鲜金属顺着裂纹被挤压,与对面的新鲜金属相遇,形成良好的冶金结合;(2)表面没有硬化层的地方,只有当表面的氧化层发生破裂时,才会出现焊合,这需要一定的变形临界值。

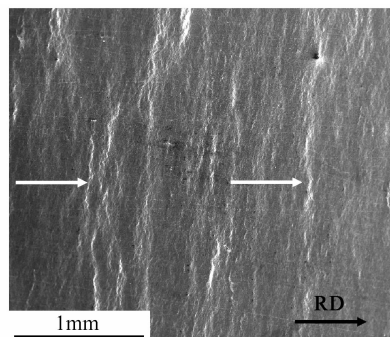


图 10 焊合界面上的微裂纹
Fig. 10 Micro-cracks on the bonding interface

3 结论

(1)在预加热温度为 300℃、道次压下量为 50% 的 ARB 变形工艺中,AZ31 镁合金薄板界面焊合质量较好,ARB 薄板的力学性能与基体相比较得到明显的改善。

(2)后续的 ARB 变形可以有效改善之前形成的界面的焊合质量;最后道次的界面焊合质量是影响材料力学性能的重要因素,可通过后续退火改善界面焊合质量。

(3)ARB 变形过程中 AZ31 薄板的界面焊合机制:相互接触的表面层变形、断裂,在界面上形成裂纹;界面上暴露出新鲜金属在轧制压力的作用下,顺着裂纹流动、相互接触,形成物理接触和冶金焊合;在后续变形中,在热和压力的共同作用下,焊合质量进一步得到改善。

参考文献

- [1] SAITO Y, UTSUNOMIYA H, TSUJI N, et al. Novel ultra-high straining process for bulk materials development of the accumulative roll-bonding (ARB) process[J]. Acta Materialia, 1999, 47(2): 579-583.
- [2] TSUJI N, TOYODA T, MINAMINA Y. Microstructural change of ultrafine-grained aluminum during high speed plastic deformation[J]. Acta Materialia, 2000, 48(12): 3231-3241.

- tion[J]. Mater Sci Eng A, 2003, A350(1-2): 108-116.
- [3] KIM H W, KANG S B, TSUJI N. Elongation increase in ultra-fine grained Al-Fe-Si alloy sheets[J]. Acta Materialia, 2005, 53(6): 1737-1749.
- [4] HOPPEL H W, MAY J, GOKEN M. Enhanced strength and ductility in ultrafine-grained aluminium produced by accumulative roll bonding[J]. Adv Eng Mater, 2004, 6(4): 219-222.
- [5] XING Z P, KANG S B, KIM H W. Structure stability of AA3003 alloy with ultra-fine grain size [J]. J Mater Sci, 2004, 39(4): 1259-1265.
- [6] DEL VALLE J A, PEREZ-PRADO M T, RUANO O A. Accumulative roll bonding of a Mg-based AZ61 alloy [J]. Materials Science and Engineering, 2005, A410-411:353-357.
- [7] PEREZ-PRADO M T, DEL VALLE J A, RUANO O A. Grain refinement of Mg-Al-Zn alloys via accumulative roll bonding [J]. Scripta Mater, 2004, 51(11): 1093-1097.
- [8] ZHAN M Y, LI Y Y, CHEN W P. Improving mechanical properties of Mg-Al-Zn alloy sheet through accumulative roll-bonding [J]. Transactions of Nonferrous Metals Society of China, 2008, 18(2): 309-314.
- [9] ZHAN M Y, LI Y Y, CHEN W P, et al. Microstructure and mechanical properties of Mg-Al-Zn alloy sheets severely deformed by accumulative roll-bonding[J]. Journal of Materials Science, 2007, 42(22): 9256-9261.
- [10] VAIDYANATH L R, GNICHOLAS M, MILNER D R. Pres-

- sure welding by rolling [J]. Brit Weld J, 1959, 6(1):13-28.
- [11] DANESH MANESH, KARIMI TAHERI A. Study of mechanisms of cold roll welding of aluminum alloy to steel strip [J]. J Mater Sci Technol, 2004, 20(8):1064-1068.
- [12] CAVE J A, WILLIAMS J D. The mechanisms of cold pressure welding by rolling [J]. Journal of the Institute of Metals, 1975, 101: 203-207.
- [13] ROOHOLLAH J, MOHAMMAD R T. Effect of friction, annealing conditions and hardness on the bond strength of Al/Al strips produced by cold roll bonding process [J]. Materials and Design, 2010, 31(9): 4508-4513.
- [14] MOHAMED H A, WASHBURN J. Mechanism of solid state pressure welding [J]. Weld J, 1975, 54(9): 302s- 310s.
- [15] BAY N. Cold welding. Part I: characteristic, bonding mechanisms, bond strength [J]. Metal Construct, 1986, 18(6):369-372.

基金项目:国家自然科学基金青年科学基金资助项目(50801027)

收稿日期:2010-12-06;修订日期:2011-11-05

作者简介:詹美燕(1973-),女,博士,副研究员,主要研究方向:高性能变形镁合金的制备及变形机理研究,剧塑性变形工艺及机理研究,联系地址:广州市天河区五山路 381 号华南理工大学材料科学与工程学院(510641),E-mail:myzhan@scut.edu.cn

(上接第 12 页)

中发生两次相变,在 1400℃左右析出含有元素 Fe,Cr,Ni,Co 的面心立方结构的固溶体和富 Cu 的合金液;在 1100℃左右析出面心立方结构富 Cu 相。

参考文献

- [1] YEH J W, CHEN S K, LIN S, et al. Nanostructured high-entropy alloys with multiple principal elements: novel alloy design concepts and outcomes[J]. Advanced Engineering Materials, 2004, 6(5): 299-303.
- [2] 叶均蔚,陈瑞凯.高熵合金[J].科学发展,2004,377(5): 16-21.
- [3] CHEN H Y, TSAI C W, TUNG C C, et al. Effect of substitution of Co by Mn in Al-Cr-Cu-Fe-Co-Ni high-entropy alloys[J]. Annales De Chimie-Science Des Materiaux, 2006, 31(6):685-698.
- [4] WU J M, LIN S J, YEH J W, et al. Adhesive wear behavior of $Al_xCoCrCuFeNi$ high-entropy alloys as a function of aluminum content[J]. Wear, 2006,261(5-6):513-519.
- [5] LIN Y C, CHO Y H. Elucidating the microstructural and tribological characteristics of NiCrAlCoCu and NiCrAlCoMo multicomponent alloy clad layers synthesized in situ[J]. Surface & Coatings Technology, 2009, 203(12):1694-1701.
- [6] HUNG P K, YEH J W, SHUN T T, et al. Multi-principal-element alloys with improved oxidation and wear resistance for thermal spray coating[J]. Advanced Engineering Materials, 2004, 6

(1-2):74-78.

- [7] CHEN T K, SHUN T T, YEH J W, et al. Nanostructured nitride films of multi-element high-entropy alloys by reactive DC sputtering[J]. Surface and Coatings Technology, 2004, 188-189(1-3):193-200.
- [8] 叶均蔚,陈瑞凯,林树均.高熵合金的发展概况[J].工业材料杂志,2005,224:71-79.
- [9] 张勇,周云军,陈国良.快速发展中的高熵溶体合金[J].物理,2008,37(8):601-605.
- [10] RANGANATHAN S. Alloyed pleasures: multimetallc cock-tails[J]. Current Science,2003,85(10):1404-1406.
- [11] 刘源,陈敏,李言祥,等. $Al_xCoCrCuFeNi$ 多主元高熵合金的微观结构和力学性能[J].稀有金属材料与工程,2009,38(9):1062-1067.
- [12] 梁秀兵,魏敏,程江波,等.高熵合金新材料的研究进展[J].材料工程,2009,(12):75-79.
- [13] 胡德林,张帆.三元合金相图[M].西安:西北工业大学出版社,1995.159.

基金项目:哈尔滨工业大学科研创新基金资助项目(HIT.NSRIF.2009090)

收稿日期:2010-08-17;修订日期:2011-05-09

作者简介:任明星(1979-),男,博士,讲师,研究方向:微铸造精密成形,高熵合金材料制备与成形,联系地址:哈尔滨工业大学科学园 B1 栋微纳米技术研究中心 207 室(150001),E-mail:hitrmx@163.com