

行政院國家科學委員會補助專題研究計畫成果報告

※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※

※

※ 利用通道轉角擠型法(ECAE)製作次微米晶粒鎂合金之研究 ※

※

※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※

計畫類別：個別型計畫 整合型計畫

計畫編號：NSC 90-2216-E-009-045-

執行期間： 90年 8月 1日至 91年 7月 31日

計畫主持人：朝 春 光

共同主持人：

計畫參與人員：楊 仁 豪 、 陳 仁 君

本成果報告包括以下應繳交之附件：

- 赴國外出差或研習心得報告一份
- 赴大陸地區出差或研習心得報告一份
- 出席國際學術會議心得報告及發表之論文各一份
- 國際合作研究計畫國外研究報告書一份

執行單位：國立交通大學材料科學與工程研究所

中 華 民 國 九 十 一 年 八 月 三 十 日

利用等通道轉角擠型法(ECAE)製作次微米晶粒鎂合金之研究

A study on the Submicrocrystalline of AZ31 Magnesium Alloys Produced by Equal Channel Angular Extrusion

Jen-Hao Yang and Chuen-Guan

楊仁豪、朝春光

交通大學材料科學與工程研究所

本實驗係以 AZ31 鎂合金經 ECAE(Route C)後，分別對晶粒細化、常溫機械性質與超塑性進行研究。結果顯示：經 ECAE N=6 之後，大部分晶粒均被細化，晶粒由原先的 12.6 μm 細化至 1.4 μm 。因細化之效應使得室溫下的 UTS 由 N=0 時之 251Mpa 增加至 N=6 之 350Mpa。高溫超塑性方面，在 N=6，400 $^{\circ}\text{C}$ 應變速率為 10^{-3}s^{-1} ，可得最佳伸長量為 317%。

1. 前言

鎂為實用結構材料中比重最低的金屬(比重為 1.79)。此外，在自然界中的蘊藏量豐富，因可回收，而具環保效益，鎂合金因此成為近幾年來最具潛力的輕金屬合金。尤其在 3C 產業要求輕、薄、短、小，鎂合金得以漸漸取代部分鋁合金等輕金屬合金和工程塑膠等，鎂合金在汽車工業、航太工業、民生機械方面上的運用也越來越廣。

目前鎂合金在工業上大多以鑄造用為主，主要因為鎂金屬為六方最密堆積結構(h.c.p)，其滑移系統太少，導致塑性變形能力太差，在低溫下不太能塑性變形。然而當金屬或合金的晶粒小於 10 μm ，材料在低溫高強度^{[1][2]}或者高溫超塑性^[3]方面都有很好的性質。製備具有超塑性的材料可利用一些細化晶粒的途徑來達成，如機械合金法(Mechanically Alloying)、扭轉應變(Torsion Straining)、往復式擠型(Reciprocating Extruding)以及等通道轉角擠型(Equal Channel Angular Extrusion)等^[4]。

由 Segal^{[5][6]}發展出一套等通道轉角擠型(Equal Channel Angular Extrusion ECAE)的方式，其利用純剪(pure shear)應力使材料經過一個等截面積的通道而產生較大的應變量

(strain)，施予材料所需的應力也較小，而擠製前後的截面積不變，所以可以一直重複擠製，使其產生非常大的應變量，進而得到次微米級(Submicrometer)甚至奈米級(Nanometer)晶粒，使材料在機械性質方面的表現優異。

因 AZ31 含合金元素較少，延性佳，可適用於低溫擠型。本文利用等通道轉角擠型(ECAE)將 AZ31 鎂合金晶粒細化，探討擠型次數與晶粒細化的關係，並將細晶的鎂合金做高溫拉伸，進而瞭解晶粒、溫度、應變速率與伸長量之關係。

2. 實驗方法

本實驗所採用之原材料為擠型後鍛造級鎂合金 AZ31，其合金成分經 ICP-AES 偵測，如表 3-1 所示。經銑床加工形成截面積為 16mm x 16mm 高度為 65mm 之試片，供後續等通道轉角擠型使用。

本實驗係以 50 噸之萬能試驗機為擠壓機，將模具及加熱系統置於萬能試驗機上，擠製溫度為 180 $^{\circ}\text{C}\pm 3^{\circ}\text{C}$ ，擠製速度控制在 4.5~5.0mm/min，擠製方式採用 Route C 方式進行，擠製次數為奇數時則為剪切變形，偶

數時則恢復原來晶型。擠製次數以 $N=1, N=2, N=4, N=6, N=10$ 。

將 AZ31 原材及經等通道轉角擠型 $N=1, N=2, N=4, N=6$ 之試片切割成適當大小，經研磨後，再以氧化鋁粉溶液 (Al_2O_3) $0.3\mu m$ 及 $0.05\mu m$ 拋光，最後以浸蝕液 (5ml 醋酸+5ml 水+2.1g 苦味酸+35ml 乙醇) 浸蝕，浸蝕時間為 1~5 秒，浸蝕後之試片，利用光學顯微鏡觀察晶粒分佈狀態及晶粒大小。本實驗之晶粒大小係採用截距法求之，以求數據之準確性，而晶粒分佈狀態是以 Image-Pro 影像分析軟體分析。

為瞭解鎂合金經等通道轉角擠型後之硬度變化，利用維克式微硬度機量測材料的微硬度值。試驗條件為：荷重為 50 克，持壓時間為 20 秒，每一試片測 12 點，扣除最大和最小兩點後取 10 點做平均值。

將經 ECAE 之試片，分成 $N=1, N=2, N=4, N=6$ 及未擠型之試片分別做成平行部 $4 \times 13mm$ 之拉伸試片。拉伸機器為 Instron 8501 拉伸試驗機，在室溫環境中應變速率為 $1.67 \times 10^{-3} (S^{-1})$ ，以便求得抗拉強度 (U. T. S) 與延伸率 (Elongation) 及應力應變 ($\sigma-\varepsilon$) 曲線圖。

將不同 ECAE 擠型次數之試片做成平行部 $3 \times 6mm$ 高溫拉伸試片，在 Instron 8501 為拉伸試驗機架上—高溫爐，使試片能在高溫環境下作超塑性拉伸測試。將 $N=0$ 及 $N=6$ 之試片在 $300^\circ C$ 及 $400^\circ C$ 的環境下，初始應變速率分別為 $8 \times 10^{-4}/S$ 、 $10^{-3}/S$ 、 $1.5 \times 10^{-3}/S$ 、 $2 \times 10^{-3}/S$ 、 $3 \times 10^{-3}/S$ 、 $5 \times 10^{-3}/S$ 、 $10^{-2}/S$ ，以探討在不同溫度與不同應變速率下，擠型材與未擠型材之超塑性關係。

將常溫及高溫拉伸破斷之試片靠近斷裂尖端處切下，並以碳膠固定在基座上利用 Hitach S-2500 型的掃描式電子顯微鏡觀察

拉伸破裂時之斷裂面。

3. 結果與討論

3.1 組織變化

AZ31 鎂合金其原來的晶粒大小如圖 1 所示：原晶粒大小是不均勻的，大晶粒周圍被小晶粒包圍。擠製 6 次後，如圖 2 所示，試片內部幾乎都以新的細小晶粒為主，以截距法求取晶粒大小約為 $1.4\mu m$ ，這顯示原本晶粒大小為 $12.6\mu m$ 的 AZ31 鎂合金，經過等通道轉角擠型六次後，晶粒可被細化至 $1.4\mu m$ 左右。針對擠製次數與晶粒變化的關係，我們定義 $5\mu m$ 以下之晶粒為小晶粒，利用影像分析軟體所做的晶粒細化率曲線如圖 3 所示，由曲線上可清楚知道，一開始的擠型並無法使整個材料的晶粒均勻細化，但擠製到最後，材料細化的程度會較均勻。如此可判定，利用等通道轉角擠型的製程不但可細化晶粒而且隨著擠製次數的增加，晶粒的分佈及大小均會比原先未細化時均勻。

3.2 常溫拉伸試驗

圖 4 為 AZ31 經 ECAE (Route C) 後，不同的擠型次數與應力-應變曲線圖。由圖可知，經 ECAE 後之試片，隨著擠型次數的增加，材料的 U. T. S 也跟著增加，且擠型 6 次的試片加工硬化率增加得很快。強度快速提升，在擠型 1 次時 ($\varepsilon < 0.67$)，改變較多，之後就趨緩。擠型次數與延伸率之關係，因原材 AZ31 為擠型材，常溫拉伸時有明顯的塑性變形區，雖然強度較低，但伸長率仍大於 20%，隨著擠型次數的增加，強度提高，其延性有下降的趨勢，但 $N=6$ 時仍有 8%。

3.3 微硬度分析

圖 5 為擠型次數與微硬度值之關係，由圖可發現，隨著擠型的次數增加，硬度值也

隨之增加，但在擠製 10 次時，硬度值呈下降的趨勢。隨著前 6 次的擠製，硬度值由 $Hv=61.35$ 增加到 $Hv=83.65$ ，增加的比例為 36 % 左右。這與文獻針對鋁合金在常溫下做等通道轉角擠型時，硬度值動輒增加 2~3 倍有所不同，因本實驗在高溫擠型，高溫擠型的鎂合金擁有再結晶晶粒，這些再結晶晶粒內剛開始時存在的差排也較少。所以硬度增加較少。另外本實驗擠製 10 次時硬度值卻下降，可能亦與高溫擠型有關，經過 10 次擠製後硬度值會下降是因為擠製 6 次到 10 次時晶粒沒有繼續變小的現象，但是晶粒內部差排確有可能增加，隨著差排增加，差排間會交互作用，導致硬度試驗時正差排會與負差排互相抵消，微硬度測試時硬度會有下降的趨勢。

3.4 超塑性之探討

由圖 6 可知，不論是未擠型或擠型 6 次之試片做超塑性實驗時，提升超塑性成型的溫度均可有效提升伸長率，且相同的拉伸溫度時，擠型 6 次之伸長率也比未擠型時的伸長率高出許多，這顯示 AZ31 鎂合金提高超塑性成型溫度至 400°C 與晶粒細化皆可有效提升伸長率。圖 7 為應變速率與流變應力之關係，隨著應變率的提升，流變應力隨之增加，而在 300°C 所做的超塑性實驗，不論是未擠型或經擠型 6 次之試片的流變應力皆比在 400°C 所做流變應力高，且相同溫度下，未擠型之流變應力也比擠型 6 次之流變應力高，這些現象說明了除了提升塑性成型的溫度之外，晶粒細化的影響也能有效降低超塑性成型所須的應力。而溫度增加所能降低應力的效應比晶粒細化所降低應力的效應大了許多。經 ECAE (Route C) 的製程，晶粒可被細化至 $1.4\mu\text{m}$ 左右，但在超塑性實驗時無法大大提升伸長率，這可能與在高溫下晶粒發生成長

有關。圖 8 為 $N=6$ 時在 300°C ，應變為 10^{-3}s^{-1} 下之破斷面，圖中明顯看到許多巨大的孔洞，其斷裂行為屬於洞穴結構。

4. 結論

1. AZ31 鎂合金經 180°C ECAE 後晶粒有細化之現象，且隨著擠型次數的增加，細化的晶粒愈多愈均勻，擠型 6 次時晶粒尺寸約為 $1.4\mu\text{m}$ 。
2. AZ31 鎂合金經 180°C ECAE 後，室溫抗拉強度(UTS)從 $N=0$ 之 251Mpa 提升到 $N=6$ 之 350Mpa 。
3. ECAE $N=6$ 之試片在應變速率為 10^{-3}s^{-1} 的超塑性實驗中，當溫度 300°C 時，伸長量為 274%，當溫度 400°C 時，伸長量為 317%。

誌謝

本研究承蒙國科會的經費補助(計劃編號 NSC90-2216-E009-045)，特此致謝。

參考文獻

1. T. Mukai, K. Ishikawa and K. Higashi, *Materials Science and Engineering*, A204, 1995, pp. 12-18.
2. M. Furukawa, Z. Horita, M. Nemoto, R. Z. Valiev, T.G. Langdon, *Acta Mater.*, 44, 1996, pp. 4619-4629.
3. T.G. Langdon, *Key Engineering Materials*, 97-98, 1994, pp. 109-124.
4. 張榮桂, 清大材料科學工程研究所碩士論文, 2000.
5. V.M. Segal, *Materials Science and Engineering*, A197, 1995, pp. 157-164.
6. V.M. Segal, K.T. Hartwig and R.E. Goforth, *Materials Science and Engineering*, A224, 1997, pp.107-115.



圖 1 AZ31 鎂合金原材金相圖

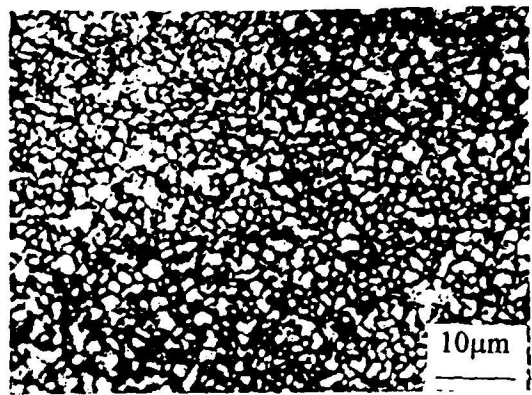


圖 2 180°C, N=6 之橫截面金相圖

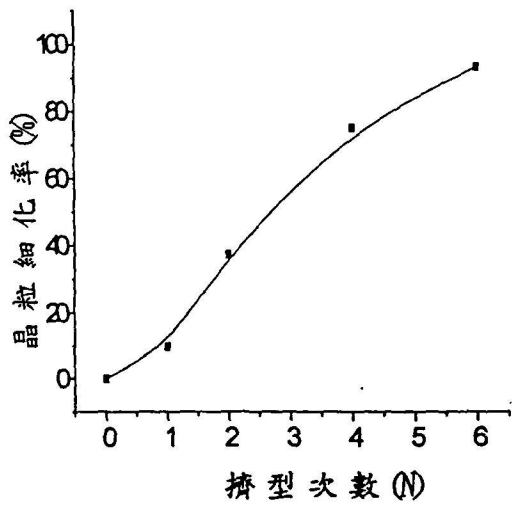


圖 3 180 °C 之擠型次數與晶粒細化之關係

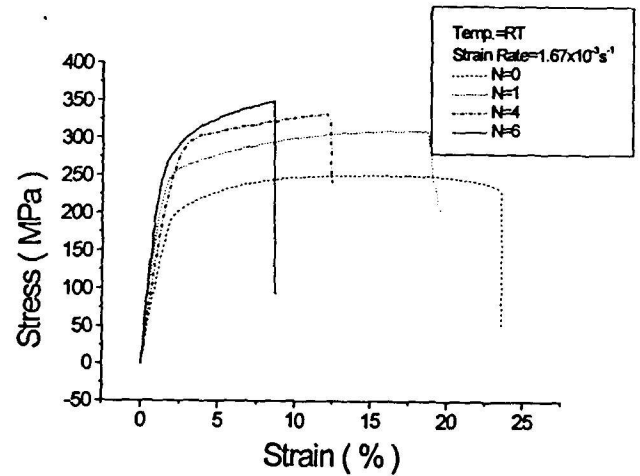


圖 4 常溫下不同擠型次數之應力-應變圖

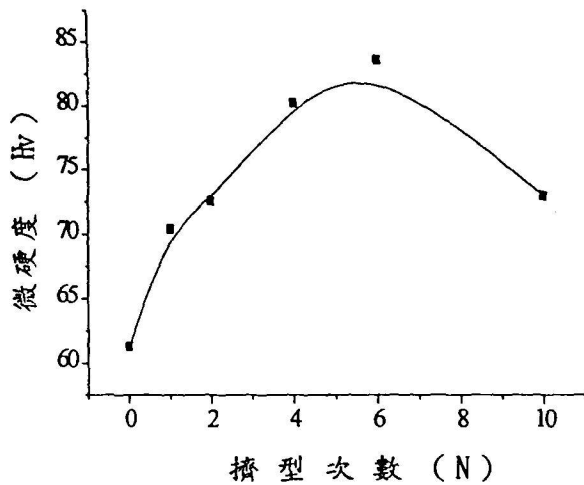


圖 5 擠型次數與微硬度之關係

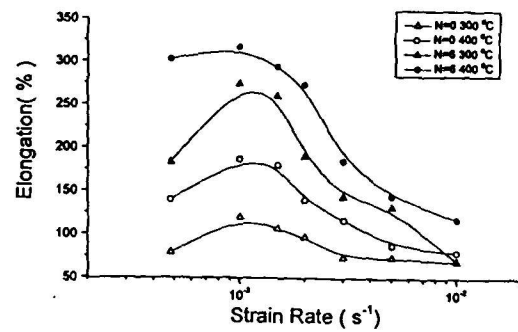


圖 6 應變速率與伸長率之關係

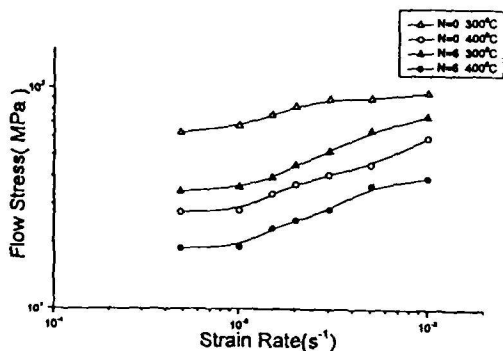


圖 7 應變速率與流變應力之關係

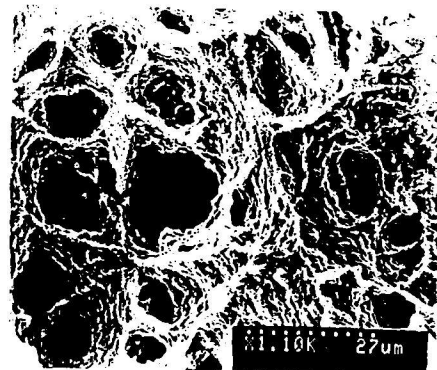


圖 8 180 °C ECAE N=6 在 $10^{-3} s^{-1}$ 下拉伸之破斷面 拉伸溫度 300 °C