

熔体温度对 Al-18Mg₂Si 复合材料组织与性能的影响

陈淑英, 邵秉川, 陈智麟, 常国威

(辽宁工业大学, 辽宁 锦州 121001)

摘要: 研究了熔体温度对原位自生 Al-18Mg₂Si (质量分数, %) 复合材料组织和力学性能的影响。结果表明: 随着熔体温度的提高, Al-18Mg₂Si 复合材料中, 初生 Mg₂Si 由粗大的树枝状变成多边形、块状, 有的成为颗粒状。熔体温度为 870 °C 时, 初生 Mg₂Si 最细小, 平均晶粒尺寸为 12 μm (形状因子最大); 超过 870 °C 后, 晶粒尺寸略有增大 (形状因子减小)。随着熔体温度的提高, 共晶 Mg₂Si 由片层状变为颗粒状, 而后又变成颗粒状和棒状的混合组织, 共晶团尺寸先减小后增大。复合材料的抗拉强度、延伸率、硬度随熔体温度的提高先增大后减小, 并在 870 °C 过热时, 力学性能达到最佳值。DTA 分析表明, 随着熔体温度的提高, 合金的凝固开始温度先降低后升高, 形核过冷度呈先增大后减小的变化趋势。熔体温度达到 870 °C 时, 形核过冷度最大, 复合材料的硬度最大, 耐磨性最好。

关键词: Al-18Mg₂Si 复合材料; 熔体温度; 初生 Mg₂Si; 力学性能

中图分类号: TB333

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2016)09-2373-06

与传统的钢铁材料相比, 颗粒增强铝基复合材料具有较高的比强度、比刚度、良好的热稳定性和耐磨性, 因而其开发研究一直是材料界关注的热点^[1,2]。金属间化合物 Mg₂Si 具有高熔点、高硬度、低密度和高弹性模量等优点, 成为铝基复合材料的理想增强相。若在铝基体中原位生成 Mg₂Si 颗粒, 则复合材料具有很好的热力学稳定性和界面结合性, 因而可以显著提高复合材料的室温和高温力学性能^[3,4]。但是 Mg₂Si 的形貌通常呈粗大的树枝状, 棱角分明, 严重地割裂了铝基体, 容易在 Mg₂Si 相的尖端和棱角处引起应力集中, 导致复合材料力学性能降低。因此控制 Mg₂Si 的形貌和尺寸是提高铝基复合材料力学性能的重要因素。

变质处理是目前改变初生 Mg₂Si 形貌的主要手段。研究表明, 添加 P^[5]、Sr^[6]、Bi^[7]、Sb^[8]、Ti^[9] 等元素可以改变初生 Mg₂Si 的形貌。挤压变形也可以细化初生 Mg₂Si^[10]。熔体过热处理也是一种简单有效的细化晶粒的方法, 司乃潮等^[11], 邹敏明等^[12], 张蓉等^[13] 分别研究了熔体过热处理对 Al-4.7Cu 合金、镍基高温合金、过共晶 Al-Si 合金凝固组织的影响, 取得了较好的细化效果。本实验以 Al-18Mg₂Si 为研究对象, 研究熔体温度对其初生和共晶 Mg₂Si 形态、尺寸以及力学性能的影响规律。

1 实验

收稿日期: 2015-08-26

基金项目: 辽宁省高等学校杰出青年学者成长计划 (LJQ2014062); 国家自然科学基金青年基金 (51204092)

作者简介: 陈淑英, 女, 1974 年生, 博士, 副教授, 辽宁工业大学材料科学与工程学院, 辽宁 锦州 121001, 电话: 0416-4199650, E-mail: jinzhouchenshuying@126.com

采用 Al-20Si 中间合金和纯 Al、纯 Mg 为原材料, 原位合成 Al-18Mg₂Si 复合材料, 合金的名义化学成分如表 1 所示。将 Al-20Si 中间合金、纯铝放入石墨坩埚, 在电阻炉中进行加热, 合金全部熔化后取出坩埚加入纯 Mg。待 Mg 全部熔化后, 将坩埚放回炉中升温至过热温度 (720、770、820、870、920、970 °C), 并保温 20 min。取出坩埚后用 0.5% C₂Cl₆ 进行精炼除渣, 保温 5 min 后浇注到温度为 200 °C 的金属型中。

金属型冷却后将试样取出, 制成拉伸试样, 拉伸试样的尺寸如图 1 所示。在 CMT5305 电子万能拉伸试验机上进行拉伸试验, 拉伸速度为 2 mm/min。在拉伸试样的端部截取金相试样, 经打磨、抛光之后, 用 0.5% 氢氟酸水溶液进行腐蚀, 采用 Axiovert200MAT 金相显微镜, S-3000N 扫描电子显微镜观察试样的显微组织。采用 D/max-2500/pc X 射线衍射仪进行物相分析, 扫描速度为 2 °/min。采用平均截线法测量晶粒尺寸。采用 HB-3000B 布氏硬度计测量复合材料硬度。利用 NETZSCH-STA409CD 综合热分析仪进行差热分

表 1 Al-18Mg₂Si 复合材料的名义化学成分
Table 1 Chemical compositions of Al-18Mg₂Si composites (wt%)

Mg	Si	P	S	Ca	Mn	Al
11.36	6.63	0.023	0.04	0.03	0.022	Bal.

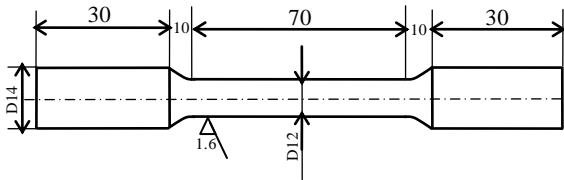


图 1 拉伸试样示意图

Fig.1 Schematic plan of the tensile sample

析，研究熔体温度对形核过冷度的影响。磨损试验在 MRH-01A 环块磨擦试验机上进行，试样尺寸为 10 mm×10 mm×16 mm，载荷为 50 N，试样磨损前后均用乙醇清洗，然后用电子天平称量磨损前后的质量，计算磨损量。

2 实验结果

2.1 熔体温度对 Al-18Mg₂Si 复合材料初生 Mg₂Si 的影响

图 2 为原位自生 Al-18Mg₂Si 复合材料的 XRD 图谱。可以看出，复合材料由 α-Al 和 Mg₂Si 两相组成。图 3 为 Al-18Mg₂Si 复合材料的铸态组织，结合图 2 和 Al-Mg-Si 相图可知，图中黑色相为初生 Mg₂Si，灰色基体为 α-Al 和 Mg₂Si 组成的共晶组织。

从图 3 可以看出，Al-18Mg₂Si 合金中初生 Mg₂Si 的形态随熔体温度的提高而变化。熔体温度为 720 °C 时，初生 Mg₂Si 呈现粗大的树枝状，分布不均匀；熔体温度为 770 °C 时，树枝状的 Mg₂Si 尺寸减小，少量

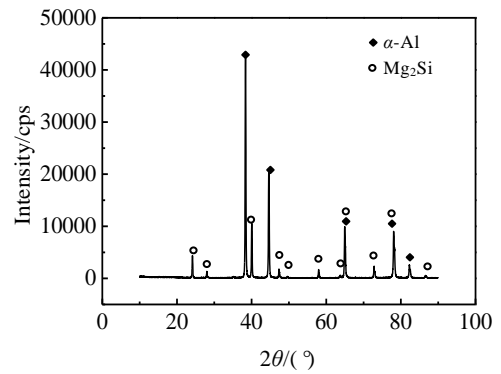


图 2 原位自生 Al-18Mg₂Si 复合材料的 XRD 图谱

Fig.2 XRD pattern of in-situ Al-18Mg₂Si composite

Mg₂Si 变成多边形；熔体温度提高到 820 °C 时，树枝晶 Mg₂Si 消失，Mg₂Si 基本上呈四边形状；熔体温度为 870 °C 时，Mg₂Si 尺寸更加细小，尖角变钝，一部分 Mg₂Si 变成了颗粒状，分布也更加均匀；进一步提高熔体温度，如图 3e 和 3f，初生 Mg₂Si 的形状没有太大变化，但是尺寸变大，并且出现了偏聚现象。

图 4 为熔体温度对 Al-18Mg₂Si 复合材料中初生 Mg₂Si 平均晶粒尺寸的影响。可以看出，初生 Mg₂Si 的平均晶粒尺寸随熔体温度的提高呈先减小后增大的趋势。熔体温度为 720 °C 时，初生 Mg₂Si 的平均晶粒尺寸为 35 μm。熔体温度为 870 °C 时，初生 Mg₂Si 最细小，平均晶粒尺寸为 12 μm，与 720 °C 相比，平均晶粒尺寸减小了 66%。熔体温度为 920 和 970 °C 时，

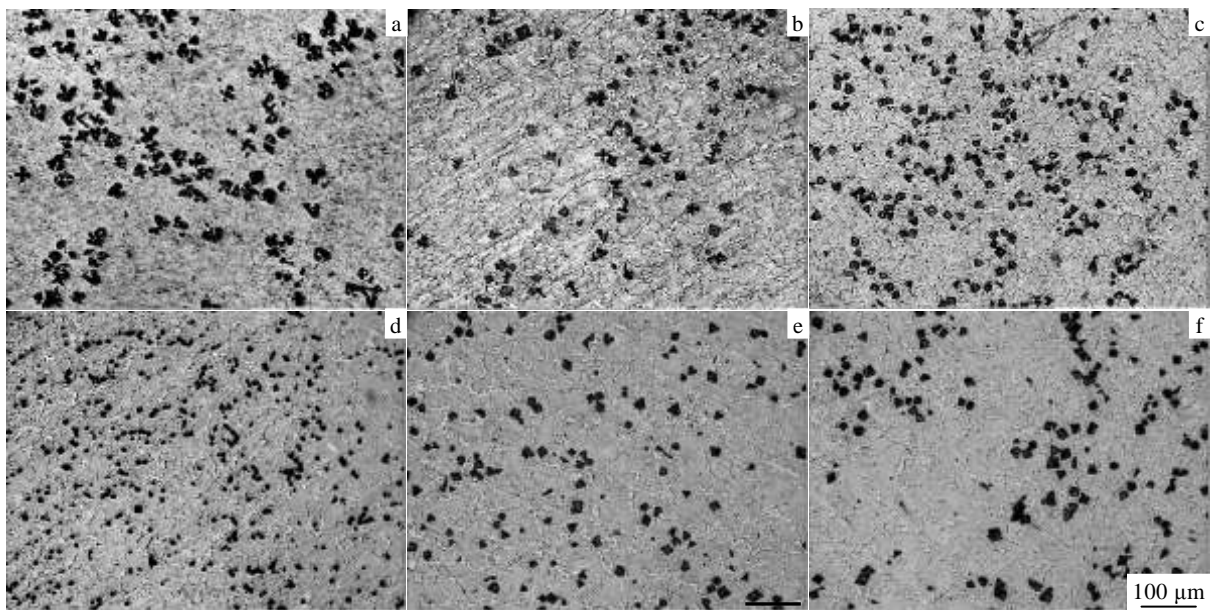


图 3 Al-18Mg₂Si 合金在不同熔体温度下的铸态显微组织

Fig.3 Casting microstructures of Al-18Mg₂Si at different melt temperatures: (a) 720 °C, (b) 770 °C, (c) 820 °C, (d) 870 °C, (e) 920 °C, and (f) 970 °C

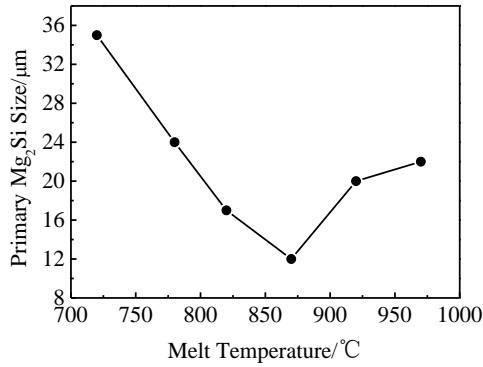


图 4 熔体温度对 Al-18Mg₂Si 复合材料中初生 Mg₂Si 尺寸的影响

Fig.4 Effects of melt temperature on primary Mg₂Si size of Al-18Mg₂Si composite

初生 Mg₂Si 的平均晶粒尺寸又分别增大到 20 和 22 μm。这说明熔体温度为 870 °C 时，对初生 Mg₂Si 的细化效果最好。

采用金相图像分析软件，对组织中初生 Mg₂Si 进行分离识别，采用计点法测量出初生 Mg₂Si 边界上的点数作为初生 Mg₂Si 的周长，测量出内部点数和边界点数之和作为初生 Mg₂Si 的面积。初生 Mg₂Si 的形状因子 $SF=4\pi A/L^2$ ，其中 A 为初生 Mg₂Si 的面积，L 为初生 Mg₂Si 的周长。当熔体温度分别为 720、770、820、870 和 920 °C 时，初生 Mg₂Si 形状因子分别为 0.53，0.61，0.82，0.91，0.74 和 0.71。可以看出，熔体温度

为 870 °C 时，初生 Mg₂Si 的 SF 最大，说明初生 Mg₂Si 被粒状化的效果最好。

2.2 熔体温度对 Al-18Mg₂Si 复合材料共晶组织的影响

图 5 为不同过热温度下 Al-18Mg₂Si 复合材料的高倍 SEM 照片。可以看出，当熔体温度为 720 °C 时，共晶 Mg₂Si 基本呈片层状，片层间距较大。随着熔体温度的提高，共晶 Mg₂Si 明显细化，在 820 和 870 °C 时，在整个共晶团内 Mg₂Si 基本呈颗粒状存在。熔体温度为 870 °C 时共晶团尺寸最小，在相同放大倍数下可以同时看到几个共晶团存在(图 5d)，而且共晶团之间 α-Al 相增多。进一步提高熔体温度时(图 5e、5f)，共晶团尺寸增大，共晶团心部的 Mg₂Si 呈颗粒状，边缘的 Mg₂Si 呈粗大的棒状。

2.3 熔体温度对 Al-18Mg₂Si 复合材料力学性能的影响

图 6 为 Al-18Mg₂Si 复合材料抗拉强度和延伸率随熔体温度的变化曲线。可以看出，复合材料的抗拉强度和延伸率均随熔体温度的提高，呈先增大后减小的变化规律。熔体温度为 870 °C 时，复合材料的力学性能最佳，抗拉强度、延伸率分别为 241 MPa 和 3%，比熔体温度为 720 °C 时，分别提高了 21.7% 和 114%。抗拉强度的提高是由于在此熔体温度下初生 Mg₂Si 呈颗粒状、尖角钝化，共晶组织非常细小。延伸率的提高除了这个原因外，主要是由于共晶团之间 α-Al 相增多，提高了材料的塑性。超过 870 °C 后，抗拉强度和

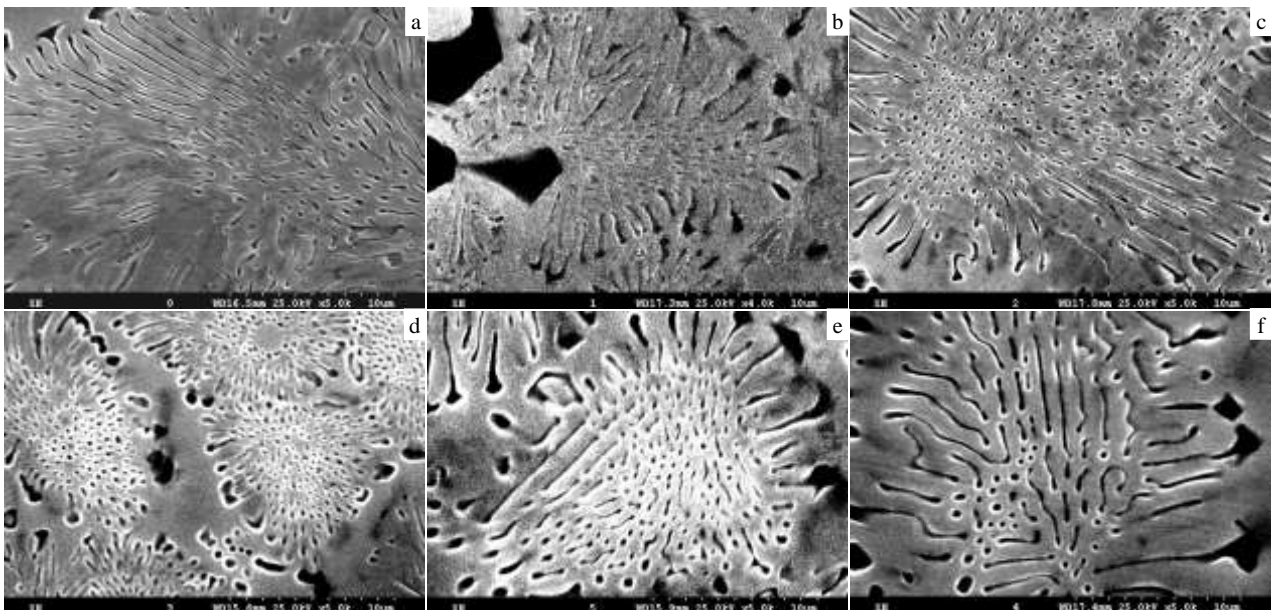


图 5 Al-18Mg₂Si 合金不同熔体温度下的高倍 SEM 照片

Fig.5 SEM images of Al-18Mg₂Si alloy at different melt temperatures: (a) 720 °C, (b) 770 °C, (c) 820 °C, (d) 870 °C, (e) 920 °C, and (f) 970 °C

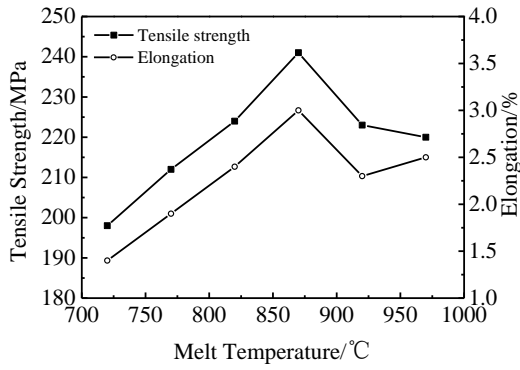


图 6 Al-18Mg₂Si 合金力学性能随熔体温度的变化曲线

Fig.6 Mechanical properties of Al-18Mg₂Si alloy as a function of the melt temperature

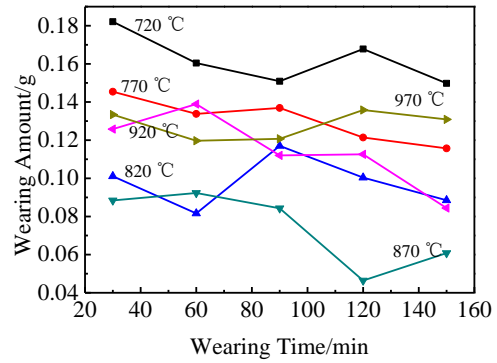


图 7 不同过热条件下 Al-18Mg₂Si 复合材料磨损量随时间的变化

Fig.7 Wearing amounts of Al-18Mg₂Si alloy as a function of the time under different superheating

延伸率均减小，这是因为初生 Mg₂Si 和共晶组织又有所粗化(图 3)。

不同过热处理条件下，Al-18Mg₂Si 复合材料磨损量随时间的变化曲线如图 7 所示，硬度和总磨损量如表 2 所示。从图 7 可以看出，熔体温度为 870 °C 时，复合材料的磨损量在大多数时刻下最小。熔体温度为 720 °C 时，磨损量最大。结合表 2 可以看出，随着熔体温度的提高，试样的布氏硬度先增大后减小，在 870 °C 时 HB 硬度达到最大值 936 MPa。试样硬度越高，耐磨性越好，在相同条件下的磨损量越少。从表 2 可以看出，870 °C 过热时硬度比 720 °C 提高了 21.9%，总的磨损量较少了 54.1%。继续提高熔体温度，由于初生 Mg₂Si 和共晶 Mg₂Si 的粗化、共晶团之间 α-Al 相的增多，导致试样的硬度下降，耐磨性降低。

表 2 不同过热条件下复合材料的硬度和磨损量

Table 2 Brinell hardness and wearing amount of compositions under different superheating

Temperature/°C	720	770	820	870	920	970
Hardness, HB/MPa	768	835	882	936	853	866
Wearing amount/g	0.811	0.6532	0.4886	0.3722	0.5737	0.6405

在初生 Mg₂Si 长大的过程中，其周围液相中 Al 的浓度增加，当熔体温度足够高，固液界面处的过冷度足够大时，α-Al 就在初生 Mg₂Si 的周围形核生长，结果导致初生 Mg₂Si 来不及分叉就被 α-Al 相包围，因此初生 Mg₂Si 长成了多边形和颗粒状。

3.2 过热温度对共晶 Mg₂Si 的影响

根据经典的凝固理论，临界晶核半径与过冷度的关系为：

$$r^* = \frac{2\sigma}{\Delta G_V} = \frac{2\sigma T_m}{L_m \Delta T} = \frac{2\sigma T_m}{L_m (T_m - T_1)} \quad (1)$$

式中， r^* 为临界晶核半径； ΔG_V 为固/液两相单位体积吉布斯自由能的差； σ 为单位表面积的界面能； T_m 为平衡凝固温度； L_m 为结晶潜热； ΔT 为过冷度； T_1 为开始凝固温度。从式(1)可以得出，开始凝固温度越低，临界晶核半径越小，导致临界晶核数量越多。

在 NETZSCH-STA409CD 综合热分析仪上进行差热试验。在试验过程中，对试样以 20 °C/min 的升温速率分别升温至 720、870、970，保温 5 min。然后以 10 °C/min 的降温速率冷却试样至 450 °C，试验过程中以高纯氩气作为保护气体。不同熔体温度下 Al-18Mg₂Si 的热分析曲线如图 8 所示。图中显示的是共晶反应的吸热峰与放热峰。从图中可以看出，随着熔体温度的提高，凝固开始温度呈先降低后升高的变化趋势。720

3 结果分析

3.1 过热温度对初生 Mg₂Si 的影响

张蓉等人^[13]研究了熔体过热处理对 Al-Si 过共晶合金凝固组织的影响，发现熔体过热处理可以改善初生 Si 的尺寸和分布。其认为随着熔体过热温度的提高，熔体中存在的 Si 原子团尺寸逐渐减小，这些小的 Si 原子团在凝固过程中可以作为初生 Si 的结晶核心，进而细化了初生 Si。Mg₂Si 与 Si 有相似的物理性质和凝固特性^[14]，因此可以得出，提高熔体的过热温度，将导致熔体中初生 Mg₂Si 原子团慢慢溶解，尺寸逐渐减小，这些细小的原子团在随后的凝固过程中成为初生 Mg₂Si 的结晶核心，使初生 Mg₂Si 得到细化。但是熔体温度过高时，Mg₂Si 原子团进一步溶解，甚至完全消失，形成均匀熔体，从而减少或消除了熔体中可充当异质核心的原子集团，异质形核能力减弱，初生 Mg₂Si 粗化。

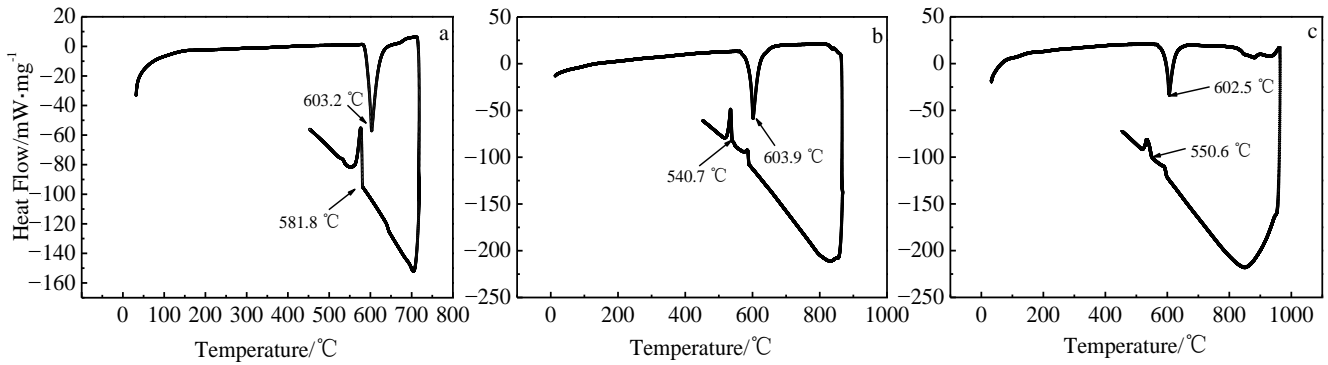


图8 熔体温度为720、870和970 °C时试样的DTA曲线

Fig.8 DTA curves of the samples at 720 °C (a), 870 °C (b) and 970 °C (c)

°C时,凝固开始温度为581.8 °C,过冷度为21.4 °C。熔体温度为870 °C时,凝固开始温度为540.7 °C,过冷度为61.2 °C。当熔体温度提高到970 °C时,凝固开始温度为550.6 °C,过冷度为51.9 °C。根据式(1)可知,凝固开始温度越低,过冷度越大,临界晶核半径越小,数量越多。这一结果与图5a、5d、5f相一致。

图5a中共晶Mg₂Si表现出小平面生长的特征,其形貌为粗大的针片状。当熔体温度为870 °C(图5d)时,共晶Mg₂Si表现为非小平面生长的特性,其形貌为细小的颗粒状。当过热温度为970 °C(图5f)时,共晶Mg₂Si又呈片层状。这说明改变熔体温度将导致晶体生长方式的变化。晶体生长方式取决于 α 因子^[15]:

$$\alpha = \frac{H_0}{RT_m} \left(\frac{\eta}{\gamma} \right) \quad (2)$$

其中, H_0 为结晶潜热, R 为常数, T_m 为熔化点温度, γ 为面配位数, η 为体配位数。在这些参数中只有结晶潜热随熔体过热温度的提高而减小^[15],因此提高熔体温度时, α 值减小,使共晶Mg₂Si由小平面生长向非小平面生长转变,即由片层状变成了颗粒状。但是当熔体温度过高时,浇注温度的提高导致凝固时过冷度减小,使共晶Mg₂Si晶核数量减少,由颗粒状长成了棒状。

4 结 论

1) 提高熔体温度,原位自生Al-18Mg₂Si复合材料中初生Mg₂Si由粗大的树枝状变成多边形、块状,有的成为颗粒状。熔体温度为870 °C时,初生Mg₂Si最细小,平均晶粒尺寸为12 μm(形状因子最大),比熔体温度为720 °C时减小了66%。超过870 °C后,晶粒尺寸略有增大(形状因子减小)。

2) 随着熔体温度的提高,共晶Mg₂Si由片层状变为颗粒状,而后再变成颗粒状和棒状的混合组织。共

晶团尺寸先减小后增大。温度为870 °C时,共晶团尺寸最小。

3) Al-18Mg₂Si复合材料的抗拉强度、伸长率、硬度随熔体温度的提高先增大后减小,并在870 °C时,力学性能达到最佳值。

4) 随着熔体温度的提高,共晶Mg₂Si开始凝固温度呈先降低后升高的变化趋势,导致共晶Mg₂Si尺寸先减小后增大。

参考文献 References

- [1] Wu Renjie(吴人洁). *Acta Metall Sin(金属学报)*[J], 1997, 33(1): 78
- [2] Georgatis E, Lekatou A, Karantzalis A E et al. *Journal of Materials Engineering and Performance*[J], 2013, 22(3): 729
- [3] Tang S Q, Zhou J X, Tian C W et al. *Trans Nonferrous Met Soc China*[J], 2011, 21(9): 1932
- [4] Jiang Q C, Wang H Y, Wang Y et al. *Materials Science and Engineering A*[J], 2005, 392(1-2): 130
- [5] Qin Q D, Zhao Y G, Zhou W et al. *Mater Sci Eng*[J], 2007, A447(1-2): 1986
- [6] Qin Q D, Zhao Y G, Cong P J. *J Alloy Compd*[J], 2008, 454(1-2): 142
- [7] Guo E J, Ma B X, Wang L P. *J Mater Process Technol*[J], 2008, 206(1-3): 161
- [8] Ren B, Liu Z X, Zhao R F et al. *Trans Nonferrous Met Soc China*[J], 2010, 20(8): 1367
- [9] Soltani N, Bahrami A, Pech-canul M I. *Metallurgical and Materials transactions A*[J], 2013, 44(9): 4366
- [10] Song Peiwei(宋佩维). *The Chinese Journal of Nonferrous Metals(中国有色金属学报)*[J], 2012, 22(7): 1863
- [11] Si Naichao(司乃潮), Sun Keqing(孙克庆), Wu Qiang(吴强). *The Chinese Journal of Nonferrous Metals(中国有色金属学*

- 报)[J], 2007, 17(4): 547
- [12] Zou Minming(邹敏明), Zhang Jun(张 军), Liu Lin(刘 林) *et al.* *Journal of Materials Engineering*(材料工程)[J], 2008(5): 71
- [13] Zhang Rong(张 蓉), Sheng Shujuan(沈淑娟), Zhao Zhilong(刘志龙) *et al.* *Nonferrous Metals*(有色金属)[J], 2002, 54(3): 19
- [14] Zhang J, Fan Z, Wang Y G *et al.* *Materials Science and Technology*[J], 2000, 16(7): 913
- [15] Jian Zengyun(坚增运), Zhou Jing(周 晶), Chang Fang'e(常芳娥) *et al.* *Journal of Xi'an Technological University*(西安工业大学学报)[J], 2009, 29(2): 138

Influences of Melt Temperature on Microstructures and Properties of in-situ Al-18Mg₂Si Composites

Chen Shuying, Shao Bingchuan, Chen Zhilin, Chang Guowei

(Liaoning University of Technology, Jinzhou 121001, China)

Abstract: The effects of the melt temperature on the microstructures and properties of in-situ Al-18Mg₂Si composites were investigated. The results show that the coarse dendrite primary Mg₂Si phases transform into the polygons and lumps and some transform into small particles with the rising of the melt temperature. The primary Mg₂Si is the smallest with the average grain size of 12 μm and its shape factor is the maximum when the melt temperature is 870 °C. The grain size of the primary Mg₂Si increases slightly when the temperature is over 870 °C, and its shape factor decreases. The lamellar eutectic Mg₂Si transforms into small particles, and then changes into the mixed microstructure of small and rodlike particles as the melt temperature increases. The size of the eutectic group decreases first and then increases. The tensile strength, the elongation and the hardness increase first and then decrease with the rising of the melt temperature. The mechanical properties achieve the best values when the temperature is 870 °C. The DTA analysis shows that the solidification onset temperature of the alloy decreases first and then increases, while the nucleation condenser depression first increases and then decreases, as the melt temperature is raised. The nucleation condenser depression is the largest at 870 °C; in the meantime, the hardness of the composites achieves its maximum value and the wear-resisting property is the best.

Key words: Al-18Mg₂Si composites; melt temperature; primary Mg₂Si; mechanical properties

Corresponding author: Chen Shuying, Ph. D., Associate Professor, School of Materials Science and Engineering, Liaoning University of Technology, Jinzhou 121001, P. R. China, Tel: 0086-416-4199650, E-mail: jinzhouchenshuying@126.com