

Mg-8.07Al-0.53Zn-1.36Nd 镁合金 微观组织及裂纹演变行为

崔晓明, 白朴存, 刘 飞, 侯小虎, 张晓婷, 杜赵新

(内蒙古工业大学, 内蒙古 呼和浩特 010051)

摘 要: 利用 XRD、SEM、TEM、EDS 等测试方法对 Mg-8.07Al-0.53Zn-1.36Nd 镁合金微观组织结构进行表征与分析, 并采用原位拉伸试验研究了合金显微组织对裂纹萌生及扩展行为的影响。结果表明: 试验合金组织中主要包括 α -Mg 基体, β -Mg₁₇Al₁₂, $\alpha+\beta$ 共晶相, Al₁₁Nd₃ 针状相和 Al₂Nd 颗粒相。Al₂Nd 存在孪晶结构, 孪晶面为 {11 $\bar{1}$ }, Al₁₁Nd₃ 存在连续的凹凸界面结构。合金室温原位拉伸试验结果表明: 裂纹主要在粗大的 β -Mg₁₇Al₁₂ 相内部萌生, 裂纹扩展方式包括沿晶扩展和穿晶扩展。裂纹穿晶扩展主要归因于沿晶界分布的 Al₁₁Nd₃、Al₂Nd 相与周围组织界面结合能力较强, Al₁₁Nd₃ 凹凸界面对基体与共晶组织的啮合作用显著。

关键词: Mg-Al-Zn-Nd 合金; 微观组织; 原位拉伸; 裂纹演变

中图分类号: TG146.2⁺2

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2017)03-0728-07

镁合金作为最轻的工程结构材料, 具有密度小, 比强度和比刚度高、导热性好、电磁屏蔽性和抗辐射能力强等优点, 被广泛应用于汽车制造、航空航天、电子通讯等领域^[1-3]。AZ91 镁合金是工业生产中应用最为广泛的铸造镁合金, 但较差的室温力学性能成为其进一步应用与发展的瓶颈之一, 利用合金化作用是改善镁合金力学性能的有效手段之一。已有研究结果^[4-7]表明稀土 Nd 对改善镁合金综合力学性能较好, 加入 Nd 的合金中能够形成结构稳定的稀土铝化物, 抑制 Mg₁₇Al₁₂ 相的析出。

人们对添加稀土 Nd 提高 AZ91 镁合金组织及力学性能的研究开展了大量的试验工作, 取得了一定的研究成果。刘生发^[8]研究发现加入 Nd (0%~0.8%) (质量分数) 的 AZ91 镁合金组织得到细化, 形成了新的粒状或针状 Al₃Nd 化合物。宋雨来^[9]研究认为 AZ91 镁合金加入 0.3%~1.0% 的 Nd 后, 晶界处析出的 Al₁₁Nd₃ 相提高了合金的力学性能。Tong^[10]等报道了 AZ91 加入 1%Nd 后, 合金中形成了 Al₂Nd 相, 合金化后的抗拉强度及屈服强度均得到提高。

目前, 在原位观察 Mg-Al-Zn-Nd 合金裂纹扩展行为研究方面的报道较少。因此, 本研究在前期试验的基础上, 采用扫描电镜原位动态观察技术研究了室温

Mg-8.07Al-0.53Zn-1.36Nd 铸态合金的裂纹萌生及扩展行为, 探讨了微观组织结构对裂纹演变的影响规律和作用机理。

1 实 验

选用商用 AZ91 镁合金和 Mg-20%Nd 中间合金为原材料。利用真空电磁感应熔炼炉制备了 Mg-8.07Al-0.53Zn-1.36Nd 合金, 熔炼过程中抽真空并通氩气保护, 采用金属型铸造成型。使用 HCS-140 高频红外碳硫分析仪对合金进行成分分析。采用 S-3400N 扫描电镜 (SEM) 及其配套的能谱仪观察试验合金微观组织及断口形貌, 分析组织中各相合金元素成分及含量。使用日本理学 D/MAX-2500/PC 型 X 射线衍射仪进行物相分析 (XRD)。利用 Gatan-691 型离子剪薄仪对合金试样进行 TEM 样品制备, 采用 JEM2010 透射电子显微镜 (TEM) 及配套的能谱仪对试验合金进行显微组织结构及能谱 (EDS) 分析。

室温原位拉伸试样尺寸见图 1, 对预制缺口的合金试样进行机械研磨和电解抛光后, 使用 FEI Quanta 650 扫描电镜真空环境下的 Gatan DEBEN/MT10204 2 kN 拉伸台进行原位拉伸, 拉伸速率设置为 0.5 mm/min。

收稿日期: 2016-03-12

基金项目: 内蒙古自治区自然科学基金项目 (2015MS0526); 国家自然科学基金项目 (11362014); 高等学校博士学科点专项科研基金 (博导类) (20131514110004)

作者简介: 崔晓明, 男, 1981 年生, 博士生, 讲师, 内蒙古工业大学材料科学与工程学院, 内蒙古 呼和浩特 010051, 电话: 0471-6575752, E-mail: cuixiaoming2010@qq.com

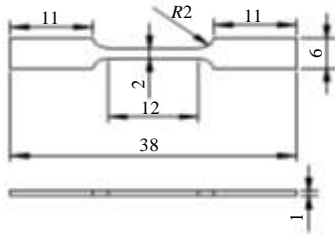


图 1 拉伸试样图

Fig.1 Geometry and size of tensile specimen

2 结果与讨论

2.1 XRD 及 SEM 分析

图 2a 为试验合金 XRD 图谱。结合 PDF 卡片分析可知合金中主要物相组成包括 α -Mg, β -Mg₁₇Al₁₂, Al₂Nd, Al₁₁Nd₃, 此结果与课题组之前得到的试验合金析出相结构稳定性的计算结果相一致^[11]。图 2b 为试验合金 SEM 照片, 对图中选定点进行 EDS 分析见表 1。可以看出 A 点为 Mg 基体, 同时基体中固溶少量 Al 元素。B 点岛状相主要合金元素包括 Mg、Al、Zn 等, 去除基体 Mg 元素含量的影响, 判定其为 β -Mg₁₇Al₁₂ 相, C 点白色针状相及 D 点颗粒相主要由 Mg、Al、Nd 元素组成, 除去这两相周围 Mg₁₇Al₁₂ 中 Mg、Al 元素的影响并结合 XRD 结果, 初步确定其分别为 Al₁₁Nd₃ 和 Al₂Nd 相。对合金 SEM 结果进一步观

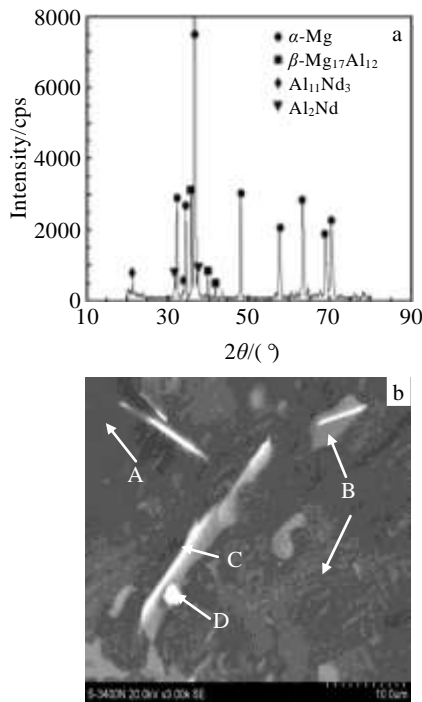


图 2 试验合金 XRD 图谱及 SEM 照片

Fig.2 XRD pattern (a) and SEM image (b) of the as-cast alloy

表 1 图 2b 中试验合金分析点 EDS 分析结果

Table 1 EDS analysis of the points in experimental alloy in Fig.2b

Points	ω/%				at%			
	Mg	Al	Zn	Nd	Mg	Al	Zn	Nd
A	95.9	4.1	-	-	96.29	3.71	-	-
B	66.8	29.8	3.4	-	70.40	28.27	1.33	-
C	60.0	16.9	2.0	21.1	75.48	19.10	0.96	4.47
D	29.7	29.9	-	40.4	46.86	42.39	-	10.74

察发现, 合金中存在片层状 Mg₁₇Al₁₂ 与其周围 α -Mg 形成的共晶组织, 晶界处的部分岛状 β -Mg₁₇Al₁₂ 与稀土相依附存在, 部分针状相向基体内部析出。

2.2 TEM 分析

Al₂Nd 相为面心立方结构 (fcc), 晶格常数 $a=b=c=0.8$ nm, 试验合金中 Al₂Nd 相 TEM 照片及选区电子衍射花样 (SAED) 结果见图 3。图 3a 为颗粒状 Al₂Nd 相的形貌照片, 可以看出 Al₂Nd 相平均尺寸约 2 μ m, 对图 3a 中颗粒相进行不同晶带轴选区电子衍射 (SAED) 结果见图 3b、3c。分别对获得的这 2 套选区电子衍射花样进行标定, 确定此颗粒相为 Al₂Nd 相, 晶带轴方向分别为 $[\bar{1}12]$ (图 3b) 和 $[\bar{1}11]$ (图 3c)。此结果进一步验证了颗粒相 SEM 及 EDS 结果。

对 Al₂Nd 相 TEM 形貌 (图 4a) 进一步观察发现, Al₂Nd 相中存在孪晶结构, 图 4a 中方形选定区域清晰可见 Al₂Nd 孪晶沿孪晶面对称存在。Al₂Nd 孪晶形貌对应的选取电子衍射花样 (SAED) 如图 4b 所示, 对 Al₂Nd 孪晶衍射斑点进行标定, 确定晶带轴方向为 $[011]$, 孪晶面为 $\{11\bar{1}\}$ 。

Al₂Nd 相存在孪晶结构可能是由合金存在较大的组织应力造成的。由于金属型铸造的冷却速度比较快, 当合金冷却至室温时, 合金中存在的组织应力处于不平衡状态, 有自发向外释放的趋势, 当该应力超过 Al₂Nd 相临界剪切应力时, 会诱发 Al₂Nd 相孪晶结构的形成。

Al₁₁Nd₃ 相为正交结构, 其晶格常数为 ($a=0.4359$ nm, $b=1.2924$ nm, $c=1.0017$ nm, $\alpha=\beta=\gamma=90^\circ$), 图 5 为 Al₁₁Nd₃ 相 TEM、EDS 及 SEAD 结果。图 5a 为晶界处的针状相 TEM 照片, 由图中针状相 EDS (图 5c) 结果可知, 该相 Al、Nd 元素含量比例较大, 同时含有少量的 Mg、Zn 元素, 对该针状相 SAED 标定后确定其为 Al₁₁Nd₃ 相, 晶带轴方向为 $[110]$ (图 5d), 此结果与针状相 SEM 及 EDS 结果相符。进一步观察发现晶界处的 Al₁₁Nd₃ 针状相长度约 4 μ m, 最大宽度约 400 nm, 针状 Al₁₁Nd₃ 相沿 $[00\bar{2}]$ 长度方向上端面与 α -Mg 基体结合界面平齐, 宽度方向上断续相间呈明显的凹凸状, 此时 Al₁₁Nd₃ 沿 $[\bar{1}10]$ 宽度方向上发生吸附

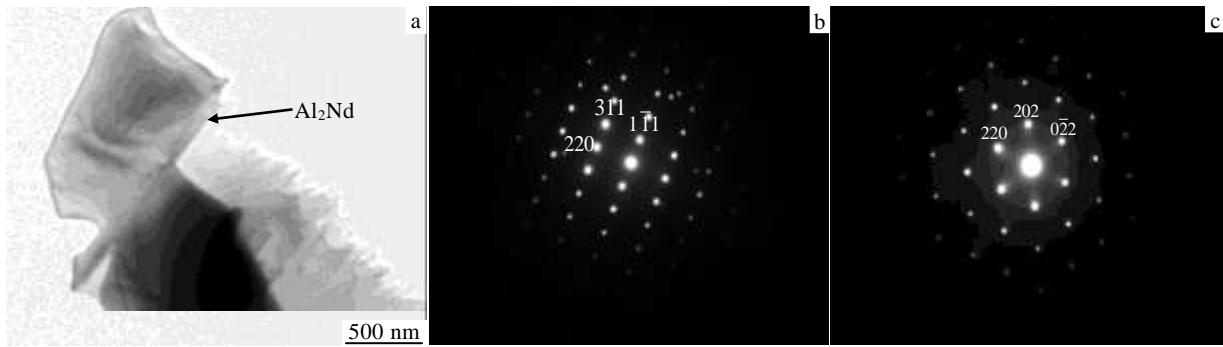


图 3 Al₂Nd 相 TEM 照片及其选区电子衍射花样

Fig.3 TEM image of the Al₂Nd phase (a) and SAED pattern of the Al₂Nd in $[\bar{1}12]$ zone axis (b) and $[\bar{1}11]$ zone axis (c)

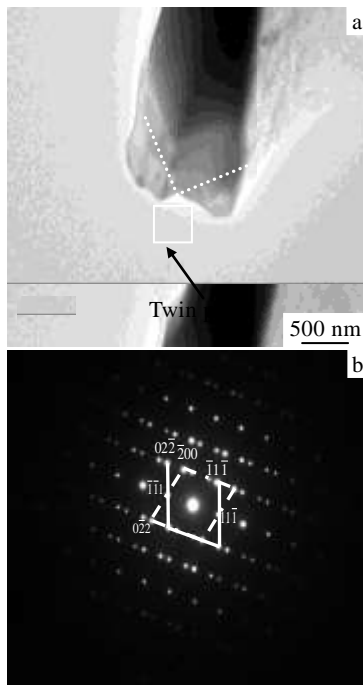


图 4 Al₂Nd 相孪晶形貌及其[011]晶带轴选区电子衍射花样

Fig.4 Twin morphology (a) and SAED pattern in [011] zone axis (b) of the Al₂Nd phase

生长，即在 Al₁₁Nd₃ 宽度方向上，所有转移到凹凸界面上的原子都将组合到晶体中来，晶体即使在很小的过冷度下也能快速长大，但是受到 Al₁₁Nd₃ 凹凸界面前沿 Al、Nd 原子扩散程度不均匀性影响，导致城墙状 Al₁₁Nd₃ 形成，从 Al₁₁Nd₃ 相界面形貌变化可以反映出 Al₁₁Nd₃ 针状相趋于短棒状生长。图 5b 为晶粒内部 Al₁₁Nd₃ 针状相 TEM 照片。可以看出 Al₁₁Nd₃ 相长度约 2.5 μm，最大宽度约 500 nm，针状相断裂边缘形状吻合较好，Al₁₁Nd₃ 相内部能发现位错线存在，从断裂形貌判断该相为脆性相。

2.3 室温原位拉伸测试结果分析

合金室温原位拉伸过程见图 6 所示。图 6a 为合金试样载荷与位移关系曲线，从图中箭头选定的位置进行原位拉伸过程观察，不同选定位置所对应的拉伸过程见图 6b~6o 所示。图 6b 为试样在外加载荷达到 200 N 时的背散射电子照片。此时试样处在弹性变形阶段，可以看出试样预留缺口前沿位置无裂纹源形成。当载荷继续增大(图 6c)时，在试样缺口处由于应力集中促发微小裂纹源的形成，试样中部基本没有变化，对图 6c 中选定区域放大观察见图 6d。可以清晰的看出合金试样基体 α-Mg 中弥散分布数量较多的第二相（针状相 Al₁₁Nd₃、颗粒状 Al₂Nd、岛状 Mg₁₇Al₁₂ 相），合金组织较致密，选定图 6d 中 A、B 椭圆区域（离异共晶 Mg₁₇Al₁₂ 相）作为比较观察区域。继续增大外加载荷(图 6e)，缺口处的裂纹长大，部分处在裂纹源前沿(图 6e 中放大区域)和试样中部(图 6f 椭圆选定区域 A'、B')的 Mg₁₇Al₁₂ 相，由于受到应力集中的作用产生细小微裂纹，此时试样中部图 6f(图 6e 中选定区域)没有观察到明显的塑性变形特征，并且稀土铝化物处无微裂纹形成。继续增大外力，主裂纹迅速扩展(图 6g)，在主裂纹两侧呈现明显的滑移带并形成次裂纹，次裂纹主要是由于 Mg₁₇Al₁₂ 相形成的微裂纹进一步扩展造成的。对图 6g 中选定区域进行放大(图 6h)观察发现，在主裂纹的两侧的岛状 Mg₁₇Al₁₂ 相破碎形成的微裂纹宽化，针状 Al₁₁Nd₃ 相与颗粒状 Al₂Nd 相断裂，Al₁₁Nd₃ 沿长度方向产生多次断裂，断裂后的稀土铝化物形成微裂纹的宽化程度较小，且稀土铝化物与基体界面结合情况较好，这说明合金中的针状相 Al₁₁Nd₃ 与颗粒状相 Al₂Nd 能够有效抵抗外加载荷的变化。此外，滑移线的运动又受到这些稀土铝化物的阻碍，从而进一步提高合金的抗拉强度。随着拉伸的继续进行，主裂纹前段呈现“Z”字型扩展，见图 6i 中方

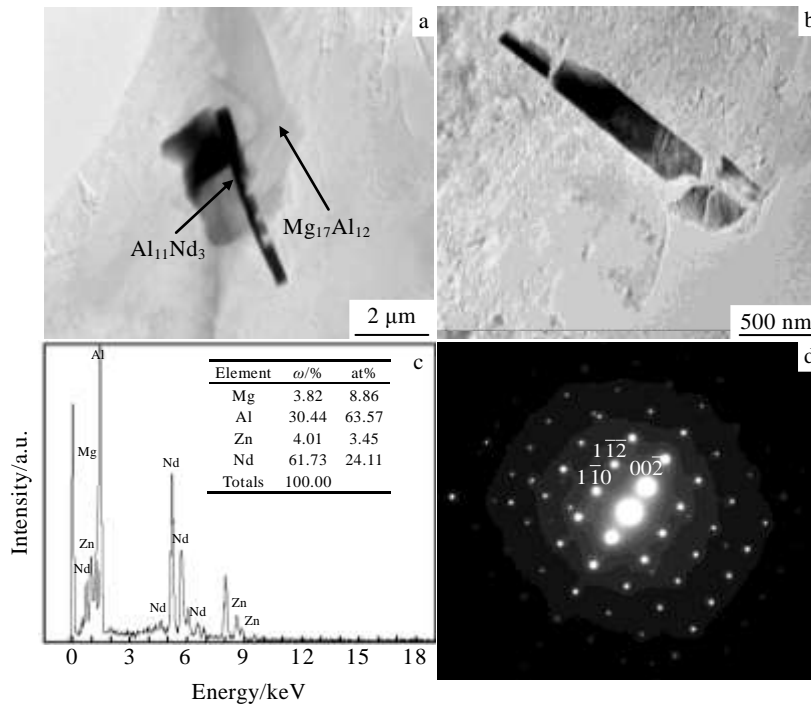


图 5 Al₁₁Nd₃相 TEM、EDS 结果及[110]晶带轴选区电子衍射花样

Fig.5 TEM images, EDS and SAED of Al₁₁Nd₃ phase: (a) TEM image of Al₁₁Nd₃ in grain boundary, (b) TEM image of Al₁₁Nd₃ in grain, (c) EDS analysis, and (d) SAED pattern of Al₁₁Nd₃ phase in [110] zone axis

框选定区域, 紧邻主裂纹前沿基体内表现出明显的塑性变形区域(形成滑移带), 当主裂纹扩展到该区域时, 裂纹路径沿滑移面(台阶)向前扩展, 从而形成“Z”字型裂纹前端, 这种蜿蜒扩展的裂纹能够提高合金的疲劳强度^[12]。当“Z”字型裂纹继续向前扩展, 经过晶粒 1 和晶粒 2 时, 从主裂纹路径可以看出, 裂纹扩展包括穿晶和沿晶 2 种方式, 靠近主裂纹晶粒中形成的微裂纹相互连接, 为主裂纹的扩展开辟了通道, 主裂纹扩展到近邻晶粒 3 时, 其并没有沿着晶粒晶界向前扩展而是穿晶通过晶粒内部失稳区域(见图 6j 蓝色曲线包围区域), 图中红色箭头指向为裂纹扩展方向, 晶界处较粗大 α+β 共晶组织(黄线选定区域)中的岛状 β-Mg₁₇Al₁₂ 相断裂, 且共晶组织与基体界面结合能力较差产生裂纹而分离, 进一步观察发现晶界处形成的针状相 Al₁₁Nd₃ 与颗粒状相 Al₂Nd 将共晶组织与基体紧密连接, 特别是 Al₁₁Nd₃ 具有的凹凸界面结构增大了其与周围组织的啮合面积, 进一步阻碍了初晶 α-Mg 与共晶组织中的 Mg 互相分离。因此, 界面处需要提供较大的外界载荷才能萌生或扩展裂纹, 这导致主裂纹穿晶扩展。继续提供外力主裂纹前端组织存在应力集中区域, 使得试样表面褶皱不平出现失稳(图 6k 选定区 C、D), 该区域还存在位向不同的滑移带, 进一步观察裂纹分别通过选定区 C、D 时断裂行为(图

6m 与 6n) 发现, 图 6m 中针状相 Al₁₁Nd₃ 阻碍了基体的滑移, 迫使针状相沿长度方向断裂成几乎等距离(约 2 μm) 若干段, 这主要是由于 Al₁₁Nd₃ 凹凸界面结构处受到应力集中后产生断裂, 每小段 Al₁₁Nd₃ 与基体界面结合紧密并沿变形方向滑移一段距离, 这说明针状相 Al₁₁Nd₃ 与基体界面结合强度高于 α+β 共晶组织与基体的结合强度。图 6n 中的裂纹继续穿过失稳区前进, 使得脆硬相 β-Mg₁₇Al₁₂ 破碎分离, 拉伸继续进行试样迅速断裂, 试样断口(图 6o) 沿裂纹方向呈现非齐断面, 进一步观察断口处选定区域(图 6p), 对该图中方块选定区域观察发现, 右下方的黑色孔洞应该是 β-Mg₁₇Al₁₂ 相破碎脱离后造成的, 附近剩余的 β-Mg₁₇Al₁₂ 暴露在主裂纹右侧的断口基体表面上方, 而且沿受力方向断裂, 这说明主裂纹通过尺寸较大的 β-Mg₁₇Al₁₂ 时又产生了二次微裂纹, 在外力的作用下二次微裂纹向周围 β-Mg₁₇Al₁₂ 扩展, 释放了 β-Mg₁₇Al₁₂ 与周围基体产生的应力集中, 微裂纹继续向基体扩展, 在剪切力的作用下基体形成滑移台阶, 通过 β-Mg₁₇Al₁₂ 微裂纹的扩展在基体滑移台阶边缘汇集最终形成韧窝, 而交滑移的作用将导致断口处形成撕裂脊。

图 7 为裂纹扩展路径示意图, 由于晶界处共晶组织中的 β 相容易萌生微裂纹, 主裂纹经过时共晶组织

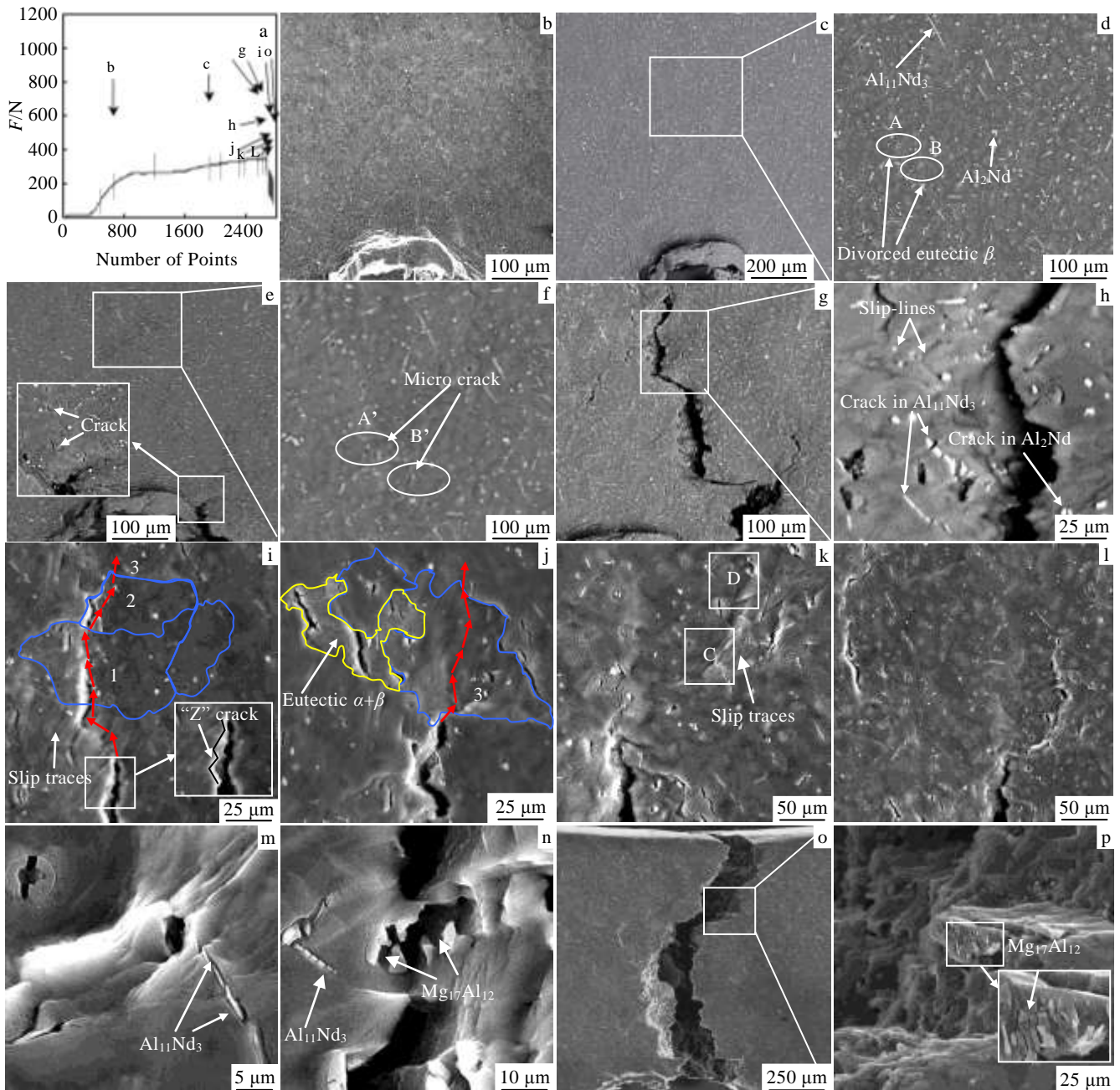


图 6 合金试样室温原位拉伸过程

Fig.6 In situ tension test of the alloy at room temperature: (a) load-position curve; (b) SEM image of the position b in Fig.6a; (c) SEM image of the position c in Fig.6a; (d) the enlarged image of selected area in Fig.6c; (e) SEM image at $F=340$ N; (f) the enlarged image of selected area in Fig.6e; (g, h, i, j, k, l) SEM images of the position g, h, i, j, k, l in Fig.6a; (m) the enlarged image of selected area C in Fig.6k; (n) the enlarged image of selected area D in Fig.6k; (o) SEM image of fractured specimen; (p) the enlarged image of selected area in Fig.6o

破碎，共晶组织与基体界面结合能力较差而发生脱离，造成裂纹的沿晶扩展，当晶界处共晶组织中析出稀土铝化物时，这些化合物对共晶组织与基体起到较好的啮合作用，提高了晶界处共晶组织的力学稳定性，造成晶粒内部形成失稳区，导致裂纹穿晶扩展。

图 8 为合金断口 SEM 及 EDS 分析结果。从图 8a 可以看出合金断口中存在撕裂棱和韧窝，对断口选定点的 EDS 测试结果(图 8b)分析发现，该点包括 Mg、Al、Zn、Nd，表明该处应为晶界位置。因此，合金断裂方式为沿晶断裂+准解理断裂。

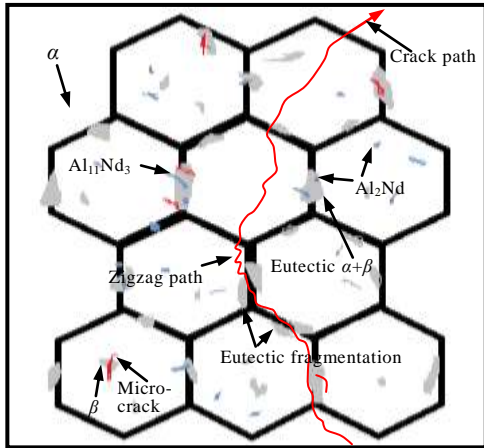


图 7 合金裂纹扩展示意图

Fig.7 Schematic diagram of crack propagation in the alloy

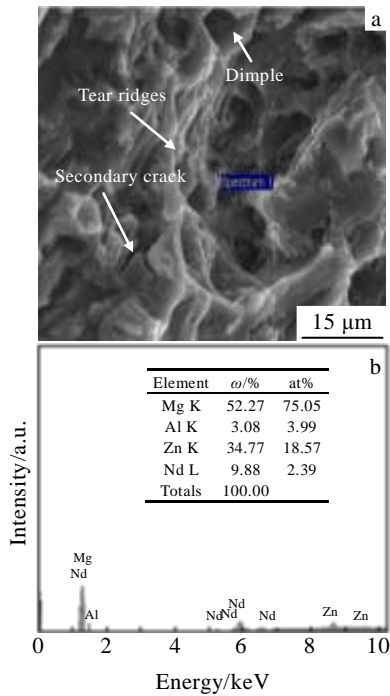


图 8 合金断口 SEM 照片及 EDS 分析结果

Fig.8 SEM image (a) and EDS analysis (b) of the alloy

3 结 论

1) Mg-8.07Al-0.53Zn-1.36Nd 合金主要物相组成包括 α-Mg 基体, β-Mg₁₇Al₁₂, α+β 共晶相, Al₁₁Nd₃

针状相和 Al₂Nd 颗粒相。Al₂Nd 存在孪晶结构, 孪晶面为{11 $\bar{1}$ }, Al₁₁Nd₃ 存在凹凸界面结构。

2) 试验合金室温原位拉伸测试发现, 裂纹主要在粗大的 β-Mg₁₇Al₁₂ 内部萌生, 裂纹扩展方式包括沿晶扩展和穿晶扩展。导致穿晶扩展方式的原因包括沿晶界分布的 Al₁₁Nd₃ 与 Al₂Nd 相与周围组织界面结合能力较强, 钉扎效果显著, Al₁₁Nd₃ 针状相的凹凸界面结构对共晶组织与基体啮合作用较强, 提高了合金晶界处共晶组织与基体界面的力学稳定性。

参考文献 References

[1] Polmear I J. *Material Science and Technology*[J], 1994, 10: 1

[2] Liang S M, Chen R S, Blandin J J *et al. Material Science and Engineering A*[J], 2008, 480(3): 365

[3] Cui Xiaoming(崔晓明), Bai Puncun(白朴存), Hou Xiaohu(侯小虎) *et al. Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2014, 43(9): 2281

[4] Zhang Dingfei(张丁非), Chen Xia(谌夏), Pan Fusheng(潘复生) *et al. Journal of Functional Materials*(功能材料)[J], 2014, 45(5): 5001

[5] Zhao Yuanhua(赵源华), Chen Yungui(陈云贵), Zhao Dong(赵冬) *et al. Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2010, 39(8): 1470

[6] Wang Yaxiao, Fu Junwei, Yang Yuansheng. *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*[J], 2012, 22(6): 1322

[7] Mahmudi R, Kabirian F, Nematollahi Z. *Materials and Design* [J], 2011, 32(5): 2583

[8] Liu Shengfa(刘生发), Wang Huiyuan(王慧源), Kang Liugen(康柳根) *et al. The Chinese Journal of Nonferrous Metals*(中国有色金属学报)[J], 2006, 16(3): 464

[9] Song Yulai(宋雨来), Liu Yaohui(刘耀辉), Zhu Xianyong(朱先勇) *et al. Journal of Jilin University*(吉林大学学报)[J], 2006, 36(3): 289

[10] Tong Guodong, Liu Haifeng, Liu Yaohui. *Trans Nonferrous Met Soc China*[J], 2010, 20(2): s336

[11] Cui Xiaoming(崔晓明), Bai Puncun(白朴存), Hou Xiaohu(侯小虎) *et al. Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2016, 45(4): 1045

[12] Mitsuhiro Okayasu, Shuhei Takeuchi. *Materials Science and Engineering A*[J], 2014, 600: 211

Microstructure and Crack Evolution Behavior of Mg-8.07Al-0.53Zn-1.36Nd Magnesium Alloy

Cui Xiaoming, Bai Pucun, Liu Fei, Hou Xiaohu, Zhang Xiaoting, Du Zhaoxin
(Inner Mongolia University of Technology, Hohhot 010051, China)

Abstract: Microstructure of Mg-8.07Al-0.53Zn-1.36Nd magnesium alloy was characterized by XRD, SEM, TEM and EDS. The effect of microstructure on the behavior of crack initiation and propagation was investigated by in situ tensile tests. Results show that the microstructure of the Mg-8.07Al-0.53Zn-1.36Nd consists of α -Mg matrix, β -Mg₁₇Al₁₂, eutectic phase $\alpha+\beta$, needle-like Al₁₁Nd₃ and particle Al₂Nd phase. The twin structure exists in the Al₂Nd phase, and the twin plane is $\{11\bar{1}\}$. Moreover, a continuous concave and convex interface structure of the Al₁₁Nd₃ has been found. The crack initiation mainly occurs in the β -Mg₁₇Al₁₂ phase, and the crack propagation modes include intergranular and transgranular expansion. Crack transgranular expansion is attributed to the strong binding ability between Al₁₁Nd₃ or Al₂Nd phases and the surrounding structure. In addition, the continuous concave and convex interface structure of the Al₁₁Nd₃ provides a significant meshing effect on the matrix and eutectic structure.

Key words: Mg-Al-Zn-Nd alloy; microstructure; in situ tension; crack evolution

Corresponding author: Cui Xiaoming, Candidate for Ph. D., Lecturer, School of Materials Science and Engineering, Inner Mongolia University of Technology, Hohhot 010051, P. R. China, Tel: 0086-471-6575752, E-mail: cuixiaoming2010@qq.com