
**СТРУКТУРА,
ФАЗОВЫЕ ПРЕВРАЩЕНИЯ И ДИФФУЗИЯ**

УДК 539.422.5

**ВЛИЯНИЕ ТЕМПЕРАТУРЫ ОТЖИГА НА МИКРОСТРУКТУРУ
И МЕХАНИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ГОРЯЧЕКАТАНЫХ ПЛАСТИН
КОМПОЗИТА Al/Mg–8Li–3Al–1Zn/Al**

© 2019 г. Пен Цзы^а, Сюдун Ма^а, Жуйчжи Ву<sup>а, б, *, **, Легань Хоу^а,
Цзинхуай Чжан^а, Синьлинь Ли^а, Милинь Чжан^{а, б}</sup>

^аЛаборатория сверхлегких материалов и технологии поверхности, Министерство образования,
Харбинский технический университет, Харбин, КНР

^бЕстественнонаучный факультет, Университет Хейхе, Хейхе, 164300 КНР

*e-mail: rzwu@hrbeu.edu.cn

**e-mail: ruizhiwu2006@yahoo.com

Поступила в редакцию 11.09.2017 г.

После доработки 15.05.2018 г.

Принята к публикации 21.11.2018 г.

Пластины Al/Mg–Li/Al композита были получены путем горячей прокатки на 50% уменьшения по толщине при 673 К и были отожжены при 473–673 К в течение 1 ч. Микроструктура и механические свойства пластин композита были изучены после отжига при различных температурах. Результаты исследований показали, что были получены пластины композита с хорошей поверхностью сочленения. После отжига при 623 К, на границе раздела Al/композит сформировался диффузионный слой, состоящий из фаз Al_3Mg_2 , $Al_{12}Mg_{17}$, $AlLi$ и $MgLiAl_2$, причем силы межфазного сцепления возрастали с увеличением температуры отжига. Микротвердость указанной границы раздела быстро увеличивается в процессе отжига при температурах выше 573 К. Относительное удлинение испытываемых на растяжение пластин композита после отжига при более высоких температурах было больше в сравнении со случаем меньших температур. После отжига при температурах выше 573 К было отмечено уменьшение прочности на растяжение.

Ключевые слова: пластины композита, горячая прокатка, отжиг, диффузионный слой, сцепление материала по границе раздела

DOI: 10.1134/S0015323019050140

1. ВВЕДЕНИЕ

Сплавы Mg–Li становятся все более привлекательными, имея преимущество в небольшом удельном весе, хорошей обрабатываемости, отличных литейных свойствах, хорошей циклической вязкости и экранировке электромагнитных полей, высокой удельной жесткости и специальной прочности и т.д. [1]. Они находят широкое применение в аэрокосмической и оборонной промышленности, в области электронных коммуникаций [2, 3]. Вместе с этим сплавы системы Mg–Li не лишены недостатков, таких как, например, слабое сопротивление коррозии [4]. Известно, что алюминий и его сплавы обладают неплохой устойчивостью к коррозии благодаря формированию на их поверхности инертного оксидного слоя и находят широкое применение как материалы со сравнительно малым удельным весом [5, 6]. Соответственно ожидается, что композитный материал Al/Mg–

Li/Al со структурой сэндвича будет обладать всеми преимуществами как Mg–Li, так и сплавов Al.

Одним из эффективных способов всестороннего улучшения свойств материала является его получение в виде пластинчатого композита [7]. Существует много способов изготовления пластин композита. Среди них такие как сварка взрывом, пакетная прокатка, литье композита с последующей прокаткой, вакуумная диффузионная сварка и т.п. [8–10]. Из перечисленных методов пакетную прокатку отличают простота технологического процесса, безопасность и низкая себестоимость производства [11].

В композитной пластине, изготовленной пакетной прокаткой, поверхность сопряжения представляется ключевым элементом, определяющим уровень прочности сцепления. Другим из самых существенных параметров, определяющих прочность сцепления слоев композитного материала,

является температура отжига после стадии его прокатки.

Что касается Mg-сплав/Al пластинчатого композита, в работе [12] для производства пластин сплава Mg–9.5Li–2Al, плакированного чистым алюминием, применили горячую прокатку. Результаты свидетельствуют, что сила сцепления слоев композита между собой возрастает с повышением температуры постдеформационного отжига и достигает своего максимального значения в 20 МПа, когда температура отжига равна 623 К. Авторы [13] при создании пластин композита сплав чистый-Al/Mg–9.5Li использовали холодную прокатку; результаты показывают, что в результате постдеформационного отжига при 523 К и выше, на границах раздела составляющих образуется Al_3Mg_2 -фаза. Микроструктура и механические свойства пластин композита 5052/Mg–9.5Li–2.1Al после их отжига при различных температурах были исследованы в [14]. Результаты свидетельствуют, что после постдеформационного отжига при 623 К пластины композита демонстрировали наилучшие (из возможных) механические свойства.

Вместе с тем эволюция микроструктуры интерфейсов при отжигах при разных температурах выяснена не до конца. Сплав Mg–8Li обладает дуэплексной структурой (α -Mg и β -Li) и демонстрирует хорошую пластичность при неплохой прочности. Al и Zn обычно используются в качестве легирующих элементов для улучшения механических свойств сплава Mg–Li. В данной статье в качестве объекта исследования был выбран сплав Mg–8Li–3Al–1Zn. Этот сплав был плакирован алюминием в процессе горячей “пакетной” прокатки. Пластины композита подвергали отжигу при различных температурах. При этом было изучено влияние температуры на микроструктуру и механические свойства итогового продукта.

2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Сплав Mg–8Li–3Al–1Zn был выплавлен в индукционной печи в защитной атмосфере аргона. При приготовлении сплава были использованы магний промышленной чистоты (ПЧ), литий (ПЧ), алюминий (ПЧ), цинк (ПЧ). Компоненты загружали в графитовый плавильный тигель. После полного расплавления материалов расплав разливали в изложницы. Чтобы исключить ликвацию, свежелитые сплавы подвергали гомогенизации при 473 К в течение 12 ч под защитой порошка MgO. Затем слиток разрезали на заготовки толщиной 4 мм. Химический состав сплава был установлен методами атомно-эмиссионной спектроскопии с индуктивно связанной плазмой как 8.35% Li, 3.26% Al, 1.27% Zn (вес. %) и остальное Mg. Пластины из 1050Al были получены в рамках промышленной методики. Их исходная толщина

составила 10 мм. Химический состав алюминиевого сплава 1050Al был установлен методами атомно-эмиссионной спектроскопии с индуктивно связанной плазмой как 0.04% Cu, 0.03% Mn, 0.03% Mg, 0.04% Zn, 0.03% Ti, 0.05% V (вес. %) и остальное Al. Толщина пластин 1050Al при холодной прокатке составила 90% исходной. Затем холоднокатанные пластины толщиной 1 мм из сплава 1050Al и пластины толщиной 4 мм из сплава Mg–8Li–3Al–1Zn были взяты для пакетной прокатки. Все пластины были разрезаны на прямоугольники 5 мм × 10 мм, с последующей механической и химической очисткой их поверхности. Затем для горячей пакетной прокатки при 673 К, пластины из соответствующего материала были фиксированы друг к другу заклепками, в последовательности 1050Al/Mg–8Li–3Al–1Zn/1050Al. Уменьшение толщины пакета пластин в процессе горячей пакетной прокатки составило 50% (от 6 до 3 мм, 15% за один проход). Благодаря тому, что температура рекристаллизации сплава Mg–8Li–3Al–1Zn была вблизи 573 К, а размер образцов мал, они прошли отжиг при 473–673 К уже в течение 1 ч. После отжига образцы оставили остывать на воздухе.

Микроструктуру образцов изучали в оптическом микроскопе (ОМ) марки LEICA DMRIM и электронном микроскопе (РЭМ) марки JEOL JSM 6480A. Перед просмотрами, сторону пластин сплава Mg–8Li–3Al–1Zn подвергали травлению с использованием водного раствора спирта, пикриновой и уксусной кислот. Сторона из сплава 1050Al проходила травление с использованием реактива Келлера. Фазовый состав интерфейсов образцов определяли методами ЭДС (энергодисперсионной спектроскопии), на приборе JEOL INC250, и рентгеновской дифракции, на приборе марки Rigaku TTR-III. Длина “линии” сканирования составляла 42 мкм, причем ее средняя точка совпадала как раз со средней точкой границы раздела (т.е. интерфейса). Измерение механических свойств образцов проведены на универсальном электронном тестере (марки WDW3050) для проведения испытаний на растяжение со скоростью 0.96 мм/мин при комнатной температуре по стандартной китайской методике (англ.) спецификации GB/T 228.1-2010. Микротвердость измеряли тестером марки HXS-1000Z, при нагрузке 50 г и времени выдержки 15 с. Значения микротвердости 1050Al и Mg–8Li–3Al–1Zn-составляющих сплавов снимали с мест, отстоящих друг от друга на 20 мкм. Размеры образцов для измерения силы сцепления по границе раздела показаны на рис. 1. Сила сцепления может быть рассчитана из уравне-

ния $\tau_{\max} = \frac{F_{\max}}{wL_0}$, где $\tau_{\max}$ – сила сцепления, $F_{\max}$ – растягивающая нагрузка, w – ширина образцов, L_0 – расстояние между прорезами.

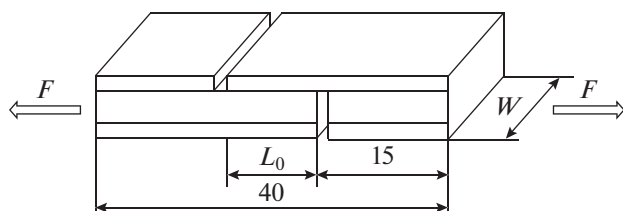


Рис. 1. Схематическое изображение образца для тестирования силы сцепления.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

3.1. Влияние температуры отжига на микроструктуру

На рис. 2 представлены ОМ-изображения микроструктуры Mg–8Li–3Al–1Zn-составляющей в состояниях свежескатаном и последующем отожженном при различных температурах в течение 1 ч. Сплав Mg–8Li–3Al–1Zn состоит из двух фаз. Блочная α (Mg)-фаза (светлые места изобра-

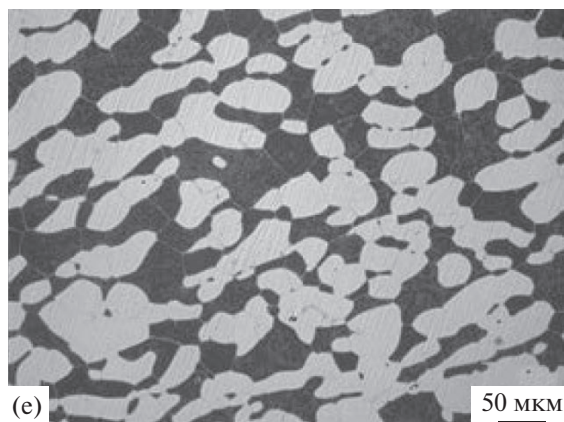
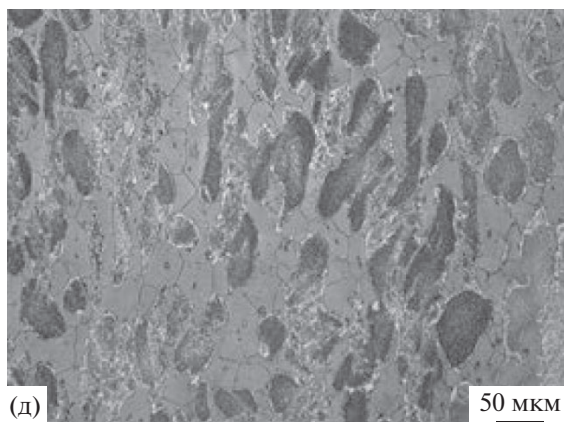
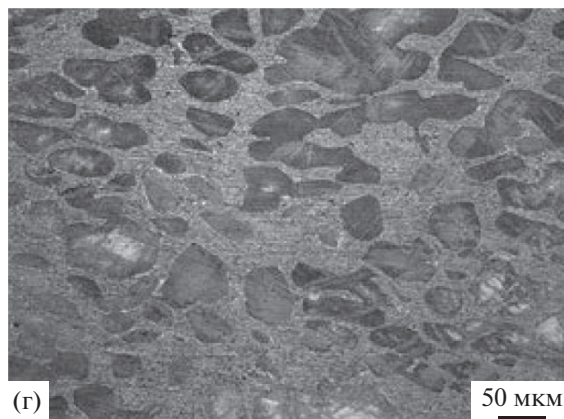
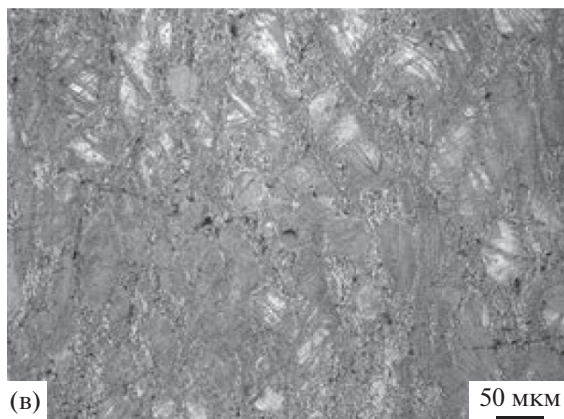
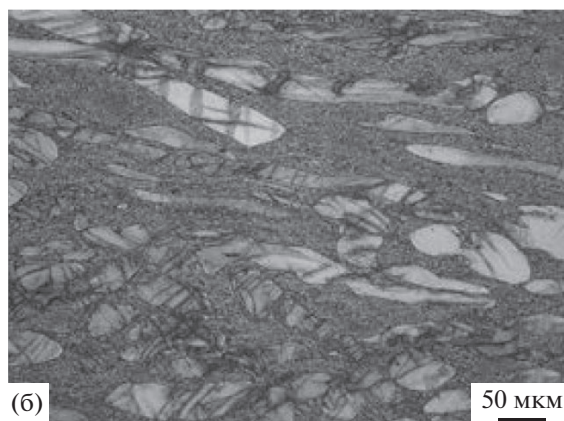
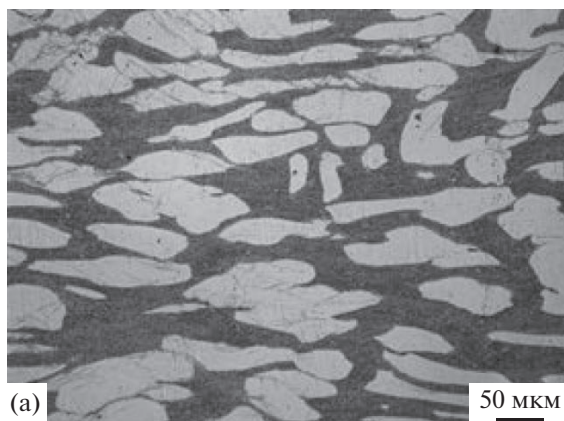


Рис. 2. ОМ изображения микроструктуры Mg–8Li–3Al–1Zn-составляющей в свежескатаном состоянии (а) и после отжига при 473 (б), 523 (в), 573 (г), 623 (д) и 673 К (е) в течение 1 ч.

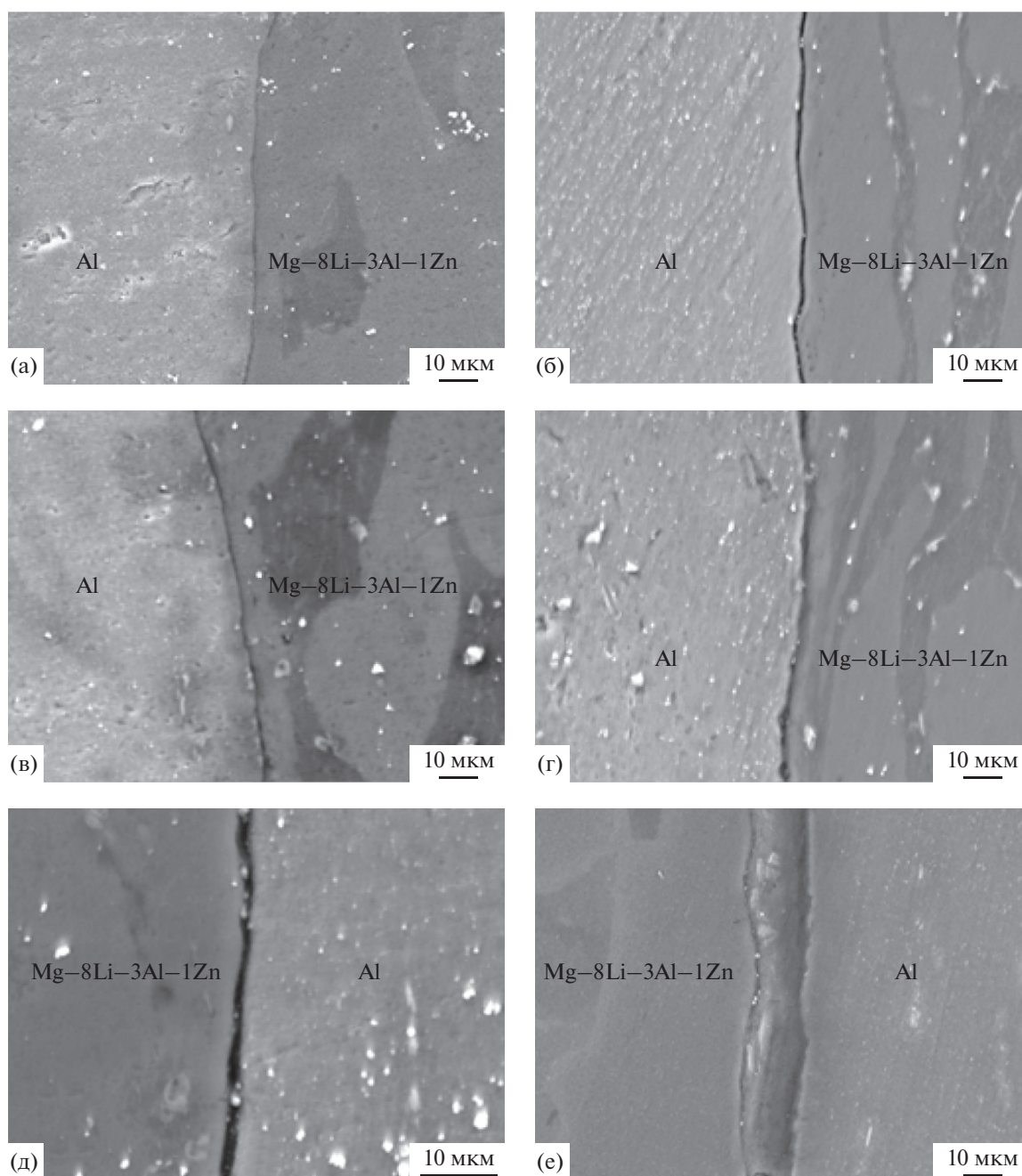


Рис. 3. РЭМ-изображения Al и Mg на интерфейсе пластины композита в свежескатанном состоянии (а) и после отжига при 473 (б), 523 (в), 573 (г), 623 (д) и 673 К (е) в течение 1 ч.

жения) равномерно распределена в $\beta(\text{Li})$ -фазе (серые места) [15]. Наблюдается небольшое количество двойников в свежескатанном сплаве (рис. 2а). Когда отжиг производили при 473 К, массивные двойники отжига формировались в $\alpha(\text{Mg})$ -фазе (рис. 2б). Количество двойников отжига уменьшалось при увеличении температуры отжига (рис. 2в и 2г), что можно объяснить тем, что двойники постепенно поглощались зернами рекристаллизации. Когда выбор температуры достигал

623 К, двойники почти исчезали. Между тем протекала рекристаллизация, и размер зерна становился больше с увеличением температуры отжига (рис. 2д и 2е).

На рис. 3 и 4 представлены РЭМ-изображения микроструктуры и ЭДС распределения (соответственно) химических элементов Al и Mg вблизи интерфейса пластин 1050Al/Mg-8Li-3Al-1Zn/1050Al композита в условиях сразу после прокатки и последующего отжига при разных

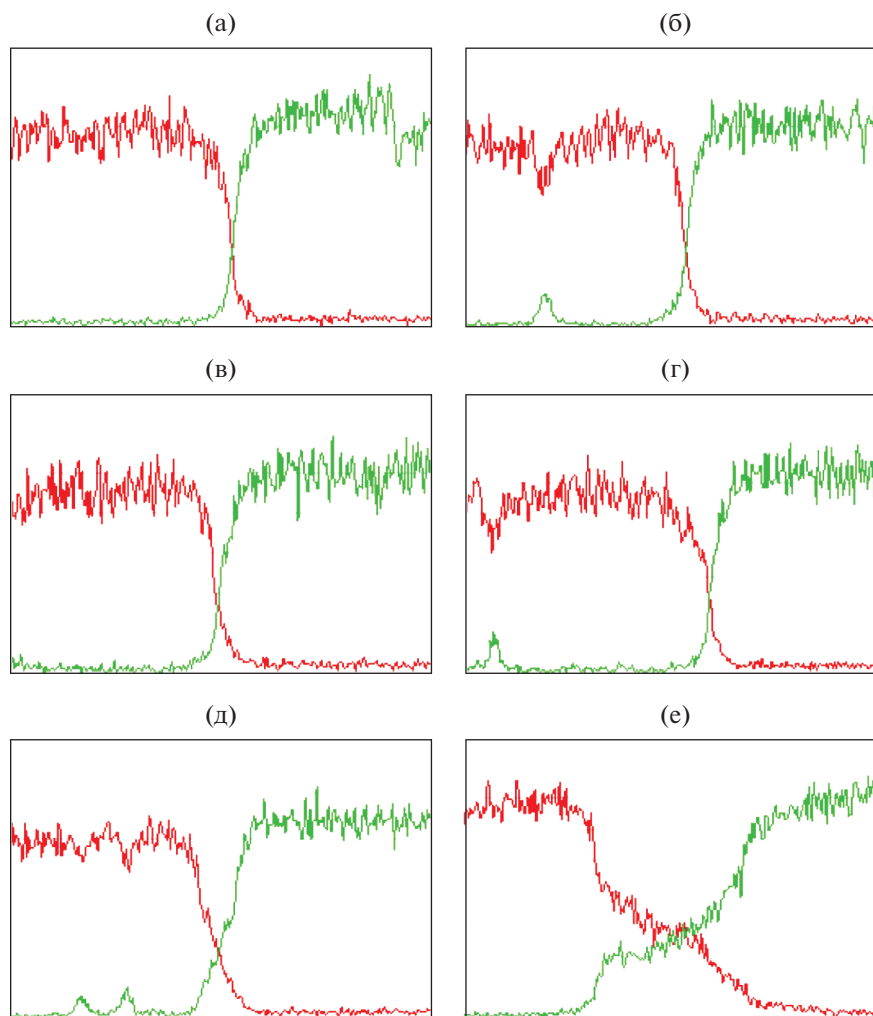


Рис. 4. ЭДС-распределения химических элементов Al (красный) и Mg (зеленый) вблизи интерфейса пластины композита в свежескатанном состоянии (а) и после отжига при 473 (б), 523 (в), 573 (г), 623 (д) и 673 К (е) в течение 1 ч.

температурах в течение 1 ч. Видно, что на границе сопряжения отсутствуют трещины и какие-либо дефекты строения. Когда температура отжига превышала 573 К, в районе сопрягающего интерфейса было отмечено появление некоторых трещин и дефектов строения. При температуре отжига 623 К на интерфейсе было отмечено присутствие диффузионного слоя малой толщины. Когда температура отжига была равна 673 К, был отмечен быстрый рост этого диффузионного слоя. При меньших температурах отжига диффузия была подавлена, и причиной тому была известная поверхностная энергия. С увеличением температуры отжига подвижные атомы преодолевают энергетический барьер, препятствующий их проникновению через интерфейс, что и приводит к образованию диффузионного слоя вблизи него. Поскольку коэффициент диффузии $D = D_0 e^{-Q/RT}$, связь между величиной диффузионного потока и температурой, при которой он наблюдается, экспоненциаль-

на. Поэтому переходный слой вблизи интерфейса быстро расширяется с ростом температуры.

Распределение химических элементов вблизи интерфейса пластины 1050Al/Mg–8Li–3Al–1Zn/1050Al композита представлено на рис. 4. При температурах отжига выше 573 К между атомами Mg и Al отмечена взаимная диффузия. Для выявления присутствия фаз вблизи интерфейса, с поверхности разделенных пластин композита были сняты рентгенограммы. Результаты представлены на рис. 5: фазы, формирующиеся вблизи интерфейсов пластин композита, включают $Mg_{17}Al_{12}$, Al_3Mg_2 , AlLi и $MgLiAl_2$. Фазы $Mg_{17}Al_{12}$, AlLi и $MgLiAl_2$ формируются вблизи интерфейса со стороны сплава Mg–8Li–1Zn, а со стороны сплава 1050Al возникают фазы Al_3Mg_2 , AlLi и $MgLiAl_2$. Итак, можно заключить, что диффузия атомов магния, лития и алюминия имеет место при температуре отжига 673 К.

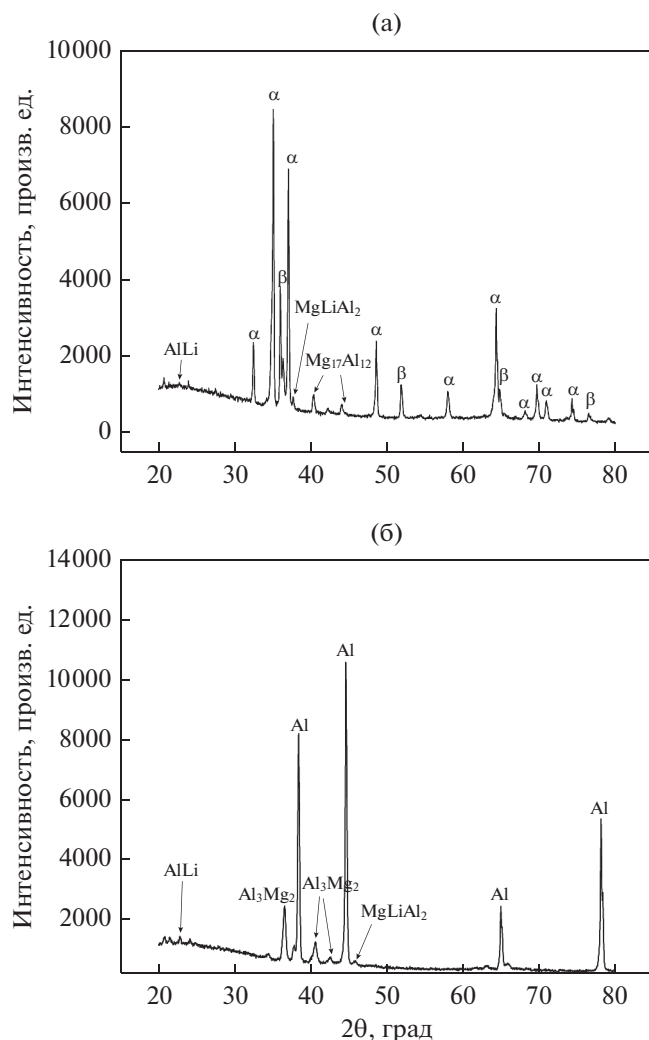


Рис. 5. Рентгенограммы с освобожденной поверхности пластинчатого слоя композита после его отжига при 673 К в течение 1 ч.

3.2. Влияние температуры отжига на прочность сцепления по плоскости интерфейса

На рис. 6 представлена зависимость прочности сцепления по интерфейсу от температуры отжига. С ростом температуры отжига увеличивается и сила сцепления. На прочность сопряжения по интерфейсам (для образца композита) оказывают влияние два основных фактора. Во-первых, остаточное напряжение, возникающее между твердофазно сопряженными разнородными частями одного материала, может быть уменьшено или вообще устранено посредством отжига [16]. Такое остаточное напряжение, возникающее в процессе деформирования слоистого композита, крайне отрицательно сказывается на его прочности сопряжения по составным частям. Тем самым увеличение температуры отжига может приводить к

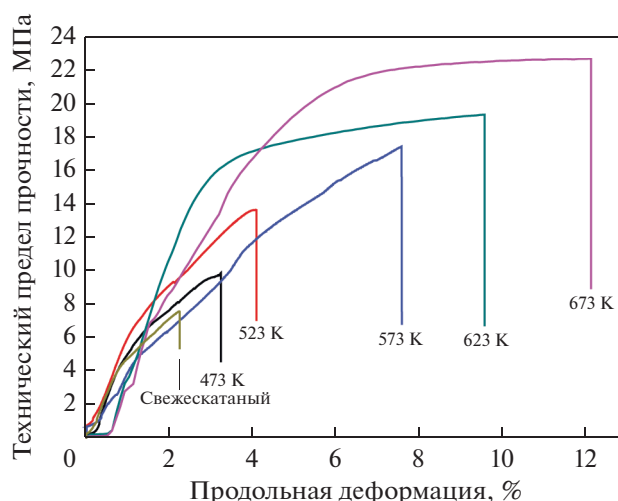


Рис. 6. Прочность сопряжения по интерфейсам для образцов в свежескатанном состоянии и после отжига при 473, 523, 573, 623 и 673 К.

увеличению обсуждаемой прочности. Во-вторых, по достижении температурой отжига определенной величины, инициируется протекание диффузионно-контролируемых реакций, что приводит к улучшению сцепления разнородных слоев композита. Поэтому сила сцепления разнородных слоев в пластинчатом образце композита возрастает по мере увеличения температуры отжига в определенном интервале температур.

3.3. Влияние температуры отжига на микротвердость пластинчатого образца композита

На рис. 7 представлена микротвердость пластинчатого образца композита и микротвердость в области его интерфейсов как функция температуры отжига. Микротвердость областей материала композита как со стороны Mg-8Li-3Al-1Zn , так и со стороны Al -составляющей уменьшается в обоих случаях с увеличением температуры отжига. Это может быть обусловлено снижением уровня внутренних напряжений в процессе отжига. Микротвердость областей интерфейсов снижается с увеличением температуры отжига, когда он производится при температурах ниже 573 К, но возрастает при температурах отжига выше 573 К. Это может происходить вследствие конкуренции процессов зарождения и роста интерметаллидных фаз, с одной стороны, и релаксации внутренних напряжений, с другой. Факторы интерметаллидов и внутренних напряжений позитивно сказываются на величине микротвердости. При температуре отжига меньше 573 К, влияние уменьшения внутренних напряжений на величину микротвердости ощутимее, нежели в случае процессов зарождения и роста интерметаллидных фаз, ответ-

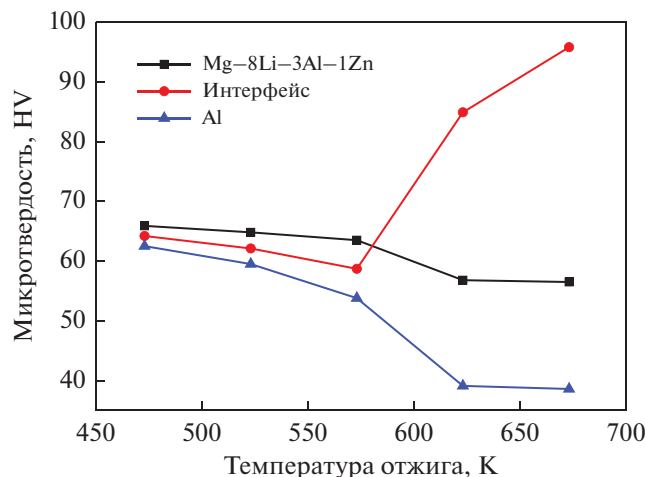


Рис. 7. Микротвердость в области интерфейсов композита как функция температуры отжига.

ственных за тенденцию к понижению изменения микротвердости. При температурах отжига выше 573 К влияние зарождения и роста интерметаллидных фаз на величину микротвердости ощутимее, чем влияние внутренних напряжений, ответственных за реализацию тенденции к повышению изменения микротвердости.

3.4. Влияние температуры отжига на свойства при растяжении

На рис. 8 представлены зависимости прочности на растяжение и относительного удлинения пластинчатого образца исследуемого композита при растяжении от температуры отжига. При температурах отжига ниже 573 К, относительное удлинение образца достигало тем больших значений, чем выше была температура отжига. При этом предел прочности на растяжение оставался практически неизменным. Такое возрастание удлинения может быть отнесено на счет того, что в окрестности интерфейсов отсутствовало зарождение и формирование каких-либо интерметаллидных фаз, и протекала релаксация внутренних остаточных напряжений. Более того, благодаря комплексному эффекту твердения и размягчения материала, индуцированных двойникованием и возвратом, предел прочности на растяжение оставался неизменным. Напротив, когда температуру отжига задавали выше 623 К, предел прочности на растяжения испытывал значительное снижение с увеличением температуры отжига. Повышение относительного удлинения при растяжении мы приписываем процессам возврата и рекристаллизации, протекавшим в чистом Al и Mg-8Li-3Al-1Zn составляющей, а также исчезновению твердения, обуславливавшегося двойниками. Наблюдавшееся снижение предела прочности на рас-

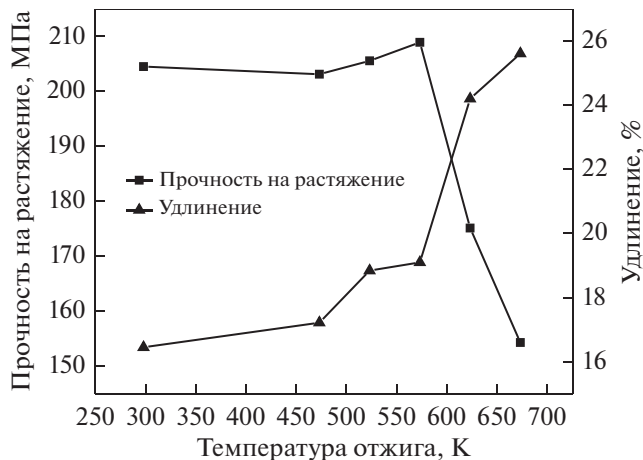


Рис. 8. Прочность на растяжение и относительное удлинение пластинчатого образца композита до и после отжига в течение 1 ч при разных температурах.

тяжение объясняется формированием непрерывного диффузионного слоя на границе раздела разнородных составляющих композита. Слой, состоящий из хрупкой интерметаллидной фазы Al_3Mg_2 , отличался посредственной пластичностью, при этом он легко разрушался и разламывался.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

1. Пластинчатые образцы композита Al/Mg-8Li-3Al-1Zn/Al были успешно синтезированы с применением горячей прокатки на 50% при температуре 673 К. На границах сопряжения разнородных составляющих композита не было отмечено наличия трещин и прочих дефектов строения.

2. При подъеме температуры часового отжига выше 573 К, вблизи этих границ сопряжения имели место фазовые превращения с формированием переходного слоя интерметаллидных фаз — главным образом Al_3Mg_2 , $Al_{12}Mg_{17}$, $AlLi$ и $MgLiAl_2$.

3. С увеличением температуры отжига был отмечен рост прочности композита Al/Mg-8Li-3Al-1Zn/Al по интерфейсам его пластинчатых образцов.

4. При температурах отжига меньше 573 К, удлинение увеличивалось с увеличением температуры отжига. При этом предел прочности на растяжение оставался неизменным. Если температура отжига превышала 623 К, удлинение возрастало, а предел прочности на растяжение заметно снижался с увеличением температуры отжига.

Авторы выражают благодарность за оказанную грантовую поддержку Национальному фонду естественных наук (51671063, 51771060), Исследовательскому фонду высшего образования и аспирантуры (20132304110006), Фонду естественных

наук пров. Хейлудзянь (ZD2017010), Фонду фундаментальных исследований университетов Центрального Китая (HEUCFG171003), а также Харбинскому муниципальному фонду финансирования научно-исследовательских разработок и прикладных технологий в рамках проектов № 2015AE4AE005, 2015RQXXJ001 и 2016AB2AG013.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Wang X.J., Xu D.K., Wu R.Z., Chen X.B., Peng Q.M., Jin L., Xin Y.C., Zhang Z.Q., Liu Y., Chen X.H., Chen G., Deng K.K., Wang H.Y. What is going on in magnesium alloys? // *J. Mater. Sci. Technol.* 2017.
2. Wu R., Yan Y., Wang G., Murr L.E., Han W., Zhang Z., Zhang M. Recent progress in magnesium–lithium alloys // *Int. Mater. Rev.* 2015. V. 60. P. 65–100.
3. Zheng H.P., Yang J.L., Wu R., Wang T.Z., Ma X.D., Hou L.G., Zhang M.L., Betsofen S., Krit B. Influence of Annealing Temperature on the Microstructure and Mechanical Properties of Al/Mg/Al Composite Sheets Fabricated by Roll Bonding. // *Adv. Eng. Mater.* 2016. V. 18. P. 1792–1798.
4. Yang L., Jiang Q., Zheng M., Hou B., Li Y. Corrosion behavior of Mg–8Li–3Zn–Al alloy in neutral 3.5% NaCl solution // *J. Magnesium Alloys.* 2016. V. 4. P. 22–26.
5. Talachi A.K., Eizadjou M., Manesh H.D., Janghorban K. Wear characteristics of severely deformed aluminum sheets by accumulative roll bonding (ARB) process // *Mater. Charact.* 2011. V. 62. P. 12–21.
6. Macwan A., Patel V.K., Jiang X.Q., Li C., Bhole S.D., Chen D.L. Ultrasonic spot welding of Al/Mg/Al tri-layered clad sheets // *Mater. Des.* 2014. V. 62. P. 344–351.
7. Cheon Y.J., Kin H.G. An equivalent plate model for corrugated-core sandwich panels // *J. Mater. Sci. Technol.* 2015. V. 29. P. 1217–1223.
8. Chen C.Y., Chen H.L., Hwang W.S. Influence of Interfacial Structure Development on the Fracture Mechanism and Bond Strength of Aluminum/Copper Bimetal Plate // *Mater. Trans.* 2006. V. 47. P. 1232–1239.
9. Sheng L.Y., Yang F., Xi T.F., Lai C., Ye H.Q. Influence of heat treatment on interface of Cu/Al bimetal composite fabricated by cold rolling // *Composites Part B.* 2011. V. 42. P. 1468–1473.
10. Guo Y., Qiao G., Jian W., Zhi H. Microstructure and tensile behavior of Cu–Al multi-layered composites prepared by plasma activated sintering // *Mater. Sci. Eng. A.* 2010. V. 527. P. 5234–5240.
11. Luo C., Liang W., Chen Z., Zhang J., Chi C., Yang F. Effect of high temperature annealing and subsequent hot rolling on microstructural evolution at the bond-interface of Al/Mg/Al alloy laminated composites // *Mater. Charact.* 2013. V. 84. P. 34–40.
12. Guo Y.L., Chen Z.Q., Luo H., Liang W., Wang H.X. Effect of the annealing temperature on the microstructure and bonding property of the Mg–Li/Al composite // *J. Plasticity Engineering.* 2014. V. 113–116 and 122.
13. Matsumoto H., Watanabe S., Hanada S. Fabrication of pure Al/Mg–Li alloy clad plate and its mechanical properties // *J. Mater. Process. Technol.* 2005. V. 169. P. 9–15.
14. Chen Z., Liang W., Yu B., Zhou B. Interfacial Microstructure and Mechanical Properties of Al5052/Mg–9.5Li–2Al Alloy Clad Plates // *Rare Met. Mater. Eng.* 2015. V. 44. P. 587–591.
15. Zhang J., Zhang Y., Wu G., Liu W., Zhang L., Ding W. Microstructure and mechanical properties of as-cast and extruded Mg–8Li–3Al–2Zn–0.5Nd alloy // *Mater. Sci. Eng. A.* 2015. V. 621. P. 198–203.
16. Zhang N., Wang W.X., Cao X.Q., Wu J.Q. The effect of annealing on the interface microstructure and mechanical characteristics of AZ31B/AA6061 composite plates fabricated by explosive welding // *Mater. Des.* 2015. V. 65. P. 1100–1109.