

焊后退火 Al-Mg 界面金属间化合物生长行为

金玉花， 甘瑞根， 邵庆丰， 李常锋*

(兰州理工大学 甘肃省有色金属先进加工与再利用省部共建国家重点实验室,兰州 730050)

摘 要:研究了6061Al铝合金和AZ31B镁合金的搅拌摩擦搭接焊(FSLW)接头微观组织及焊后热处理过程中接头界面金属间化合物(IMC)生长行为. 结果表明,在接头界面处,金属间化合物层由连续的 β -Al₃Mg₂(靠近铝侧)相和 γ -Al₁₂Mg₁₇(靠近镁侧)相组成. IMC层的厚度随着时间延长或者温度的提高而增加,并且 β -Al₃Mg₂相生长快于 γ -Al₁₂Mg₁₇相. 整个IMC层的生长厚度与退火时间的平方根成线性关系,其生长受扩散机制影响. 随着温度从300℃增加到400℃,IMC层生长的扩散系数从 $2.88 \times 10^{-14} \text{ m}^2/\text{s}$ 增加到 $3.67 \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$. 界面IMC层的生长激活能为82.5 kJ/mol.

关键词:搅拌摩擦焊; 退火; 金属间化合物; 激活能

中图分类号: TG 453.9 **文献标识码:** A **doi:**10.12073/j.hjxb.20150808001

0 序 言

在搅拌摩擦搭接焊(FSLW)工艺中,材料同时受到搅拌针的机械搅拌和焊接热循环的双重作用. 由于受机械搅拌与温度场的分布不均匀的影响,材料易产生残余应力,从而对焊件的服役性能如疲劳、断裂等行为产生影响^[1-2]. 通常焊后热处理能够降低焊件的残余应力、改善微观组织和增加接头界面的冶金结合^[3]. 界面IMC在焊接过程中的形态及生长速度对接头缺陷的萌生及发展、性能优劣性等十分重要影响. 因此研究FSW异种材料之间IMC的形成和生长规律对了解接头失效机理,改善搅拌摩擦焊接头可靠性具有重要意义.

目前为止,许多研究人员对Al/Mg异种材料接头界面金属间化合物进行了研究^[4-7]. 如Xiao等人^[7]研究了1060铝合金与镁在573 K与673 K温度下界面处的IMC的生长行为. 发现 β -Al₃Mg₂的生长受体扩散控制而 γ -Al₁₂Mg₁₇的生长受体扩散和晶界扩散共同控制,并且得出了在673 K温度下IMC生长厚度与时间之间的关系式. 而目前对于搅拌摩擦焊焊后热处理界面IMC的生长行为的研究甚少. 因此文中着重从温度场对Al/Mg界面IMC在热处理过程中的生长规律,从而对焊接接头在不同焊后退火条件下IMC厚度研究提供理论支撑.

1 试验方法

焊接试验选用6061铝合金和AZ31B镁合金轧制板材,其尺寸200 mm×90 mm×2 mm,其化学成分如表1所示.

表1 AZ31B镁合金和6061铝合金化学成分(质量分数,%)
Table 1 Chemical compositions for AZ31B Mg and 6061 Al alloy

材料	Mg	Al	Si	Zn	Fe	Cu	其它
AZ31B	余量	3.0	0.03	0.8	0.005	—	0.3
6061	0.15	余量	0.6	0.25	0.7	0.25	0.3

焊前利用钢丝刷去母材表面的氧化层,利用丙酮去除表面的油污,把铝板置于镁板的上层,然后利用夹具对两板进行固定. 采用锥台形搅拌头进行焊接试验. 锥台形搅拌头基本尺寸为:轴肩直径18 mm,轴肩面内凹(内凹角2°),搅拌针长度为3 mm,搅拌针根部直径为6 mm,端部直径为4 mm. 焊接工艺参数选用转速为700 r/min和焊接速度为50 mm/min. 搅拌摩擦搭接焊示意图如图1所示. 将得到的样品沿垂直于焊缝方向分割成若干,置于300,350和400℃的气氛炉中退火,温度严格控制在±1℃的误差内. 退火保温时间分别为30,60,90,120和180 min. 退火后,样品自然冷却至室温. 借助金相显微镜(OM)对搭接接头界面形貌进行观察;借助扫描电镜(SEM)对矩形区域IMC的形貌和分布进行观察和分析(图2). 通过电子探针(EPMA)

收稿日期: 2015-08-08
基金项目: 国家自然科学基金资助项目(51265030);2013年甘肃省高等学校基本科研业务费;2013年兰州理工大学博士基金;兰州市科技局项目(2013-4-20)
*参加此项研究工作的还有王希靖

及能谱(EDS)对 Mg/Al 接头界面显微组织及元素分布进行观察和分析,并利用 X 射线衍射(XRD)来进一步确定各 IMC 层的相. IMC 厚度的测定是通过将扫描电镜图片导入 Nano Measurer 软件中,在同张图片随机测量 20 次厚度值后取其平均值.

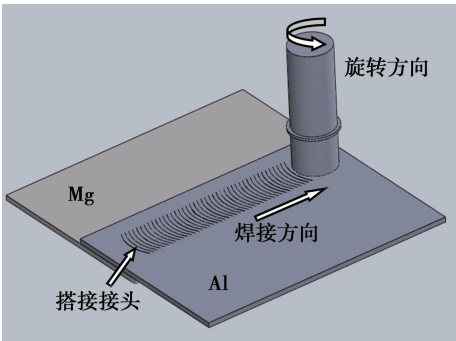


图 1 搅拌摩擦搭接焊示意图
Fig. 1 Schematic diagram of FSLW

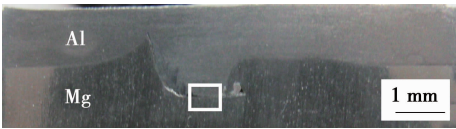


图 2 焊接接头横截面
Fig. 2 Cross section of welded joint

2 试验结果与分析

2.1 退火过程中 Al/Mg 接头的微观结构

界面 IMC 的形成分为两个阶段,如图 3 所示. FSLW过程中,铝与镁的冶金反应形成的初始 IMC 层;焊后退火过程中,Al/Mg 之间固态扩散形成的 IMC 层. 由图 3a 可知,焊接接头良好且界面接头处形成的双层初始 IMC 的总厚度为 1.8 μm . 结合面扫图图 3b,可以看到具有明显衬度不同的两层 IMC. 另外,可以观察到 B 层的厚度厚于 A 层. 然而,在面扫过程中,氧所占的百分比平均为 2.5%,在镁侧与 B 层交界处尤其高. 氧的主要来源是焊接过程处于大气氛围中,易与大气中的氧发生反应.

对不同参数下的 A,B 层进行能谱点扫分析,其 IMCs 中主要元素的成分分析结果见表 2. 将图 3b 对应的试样的表面进行 XRD 分析. 由图 4 分析可知,在该参数下的搅拌摩擦搭接焊接头的 IMC 层主要由 $\beta\text{-Al}_3\text{Mg}_2$ 和 $\gamma\text{-Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ 组成. 结合 EDS 与 XRD 分析结果,可以确定靠近镁侧的 IMC 为 $\gamma\text{-Al}_{12}\text{Mg}_{17}$, 而靠近铝侧的 IMC 为 $\beta\text{-Al}_3\text{Mg}_2$.

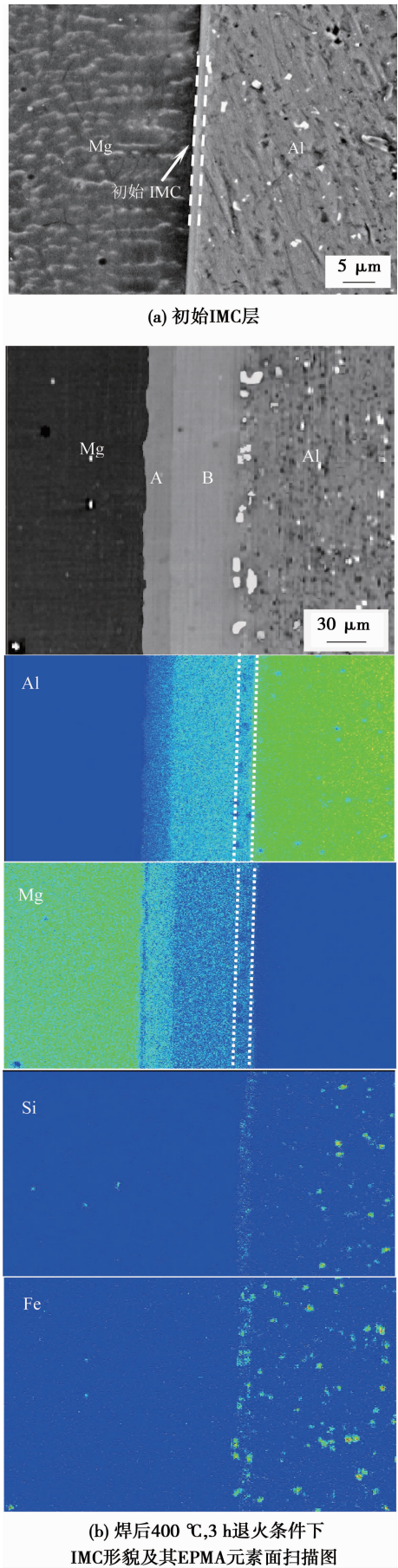


图 3 不同阶段界面 IMC 的形貌
Fig. 3 Microstructure morphology of IMC at different stages

表 2 EDS 对不同退火条件下的 A 和 B 位置的化学成分 (质量分数,%)

Table 2 Compositions measured by EDS at A and B location for different annealing conditions

退火条件	位置	Mg	Al
300 ℃/0.5 h	A	60.78	39.22
	B	39.21	60.79
300 ℃/1.5 h	A	58.97	41.03
	B	40.02	59.98
300 ℃/3 h	A	59.12	40.88
	B	37.84	62.16
350 ℃/0.5 h	A	57.58	42.42
	B	40.11	59.89
350 ℃/1.5 h	A	62.42	37.58
	B	36.41	63.59
350 ℃/3 h	A	58.22	41.78
	B	39.88	60.12
400 ℃/0.5 h	A	56.78	43.22
	B	38.21	61.79
400 ℃/1.5 h	A	60.35	39.65
	B	38.67	61.33
400 ℃/3 h	A	59.89	40.11
	B	37.25	62.75

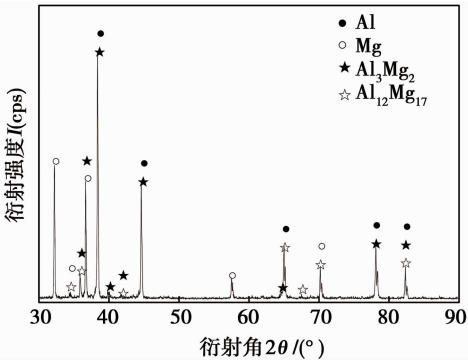


图 4 Al/Mg 接头界面扩散层的 X 衍射图

Fig. 4 XRD of diffusion layers of Al/Mg interface

在退火过程中,外界提供了铝、镁基体和界面 IMC 析出、扩散与重新组合所需要的能量,界面 IMC 的形貌会发生变化. 图 5 为 IMC 在不同退火条件下的微观形貌. 由图 5 可知,界面 IMC 层的厚度随着退火温度 and 时间的增加而生长,且 β - Al_3Mg_2 相层的厚度总是厚于 γ - $\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ 相层. 在长时间的退火过程中, β - Al_3Mg_2 和 γ - $\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ 之间保持动态平衡,两者共同作用使 IMC 的厚度增加. 另外,在图 3b 中,可以明显的看到在 β - Al_3Mg_2 与铝基体之间存在白色的颗粒. 经 EPMA 面扫分析,白色颗粒主要由 Si 和 Fe 原子富集形成. 同时,在图 5 中也注意到在 β - Al_3Mg_2 与铝基体之间还有许多微小的孔存在. 这主要是因为 Al 和 Mg 原子的扩散速率不相同导致界面出现原子的缺失.

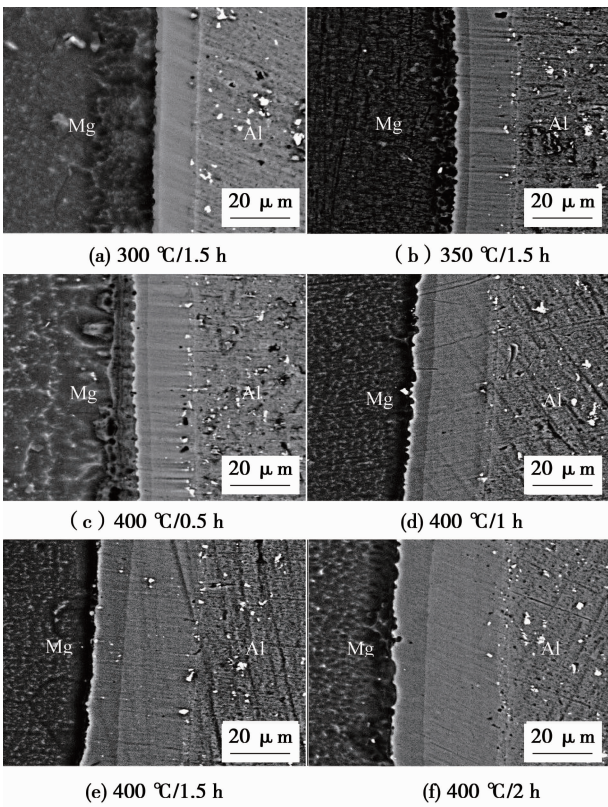


图 5 不同温度及退火时间 Al/Mg 界面的微观形貌

Fig. 5 Microstructure morphology of Al/Mg interface annealing at different temperature and different time

2.2 Al/Mg 界面退火过程中的生长行为及其激活能

对 300,350 和 400 ℃ 温度下的不同退火时间的 IMC 的厚度进行测量,并利用 origin 软件进行拟合,其结果如图 6 所示,其图形近似为抛物线形状,说明在退火过程中,Al/Mg 界面 IMC 的生长主要由扩散机制决定. 应用 Fick 扩散定律描述退火过程中 IMC 的生长,其厚度随温度和退火时间变化遵循以下规律,即

$$d = d_0 + \sqrt{Dt} \tag{1}$$

式中: d 是 IMC 的总厚度 (μm); d_0 是焊后 IMC 的厚度 (μm); t 是退火时间 (s); D 是扩散系数 (m^2/s).

从图 5 中,可以更加直观的了解到了,IMC 的厚度随着时间的延长而增加;退火时间恒定时,温度越高,界面 IMC 生长的越快. 由式(1)可知,IMC 的生长与扩散系数有关,扩散系数越大,IMC 的生长越快. 通过 origin 软件,将 300,350 和 400 ℃ 温度下金属间化合物的厚度与 $t^{1/2}$ 的关系拟合,结果见图 7. 根据式(1)可知,三条直线斜率的平方分别为 300, 350 和 400 ℃ 温度下 IMC 的扩散系数,具体数值如表 3 所示. 另外,从图 6 中可以看出,在 300 和 350 ℃ 退火条件下随着退火时间的延长,IMC 的生长变化呈放缓趋势,原因可能由以下两方面:第一,已形

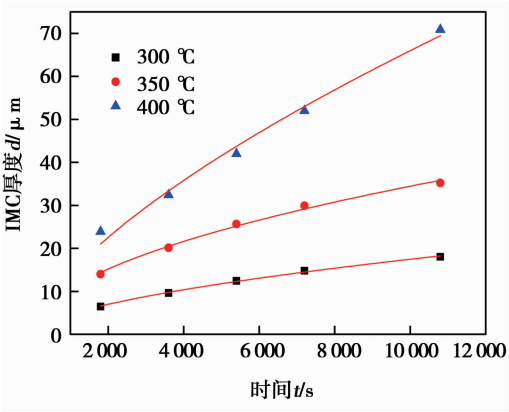


图 6 IMC 厚度随退火时间的变化

Fig. 6 IMC thickness changing with annealing time

成的 IMC 层对扩散起阻碍作用,降低了扩散速率;第二:正如图 3b 的能谱图所示,随着退火时间的延长,Si 和 Fe 等元素的在 β -Al₃Mg₂ 和铝基体之间富集增多,阻碍 Al 和 Mg 元素之间的互相扩散,从而使得扩散速率降低. 但在 400 °C 条件下,IMC 生长放缓的趋势并不明显. 主要是因为温度的升高,有利于 Al 和 Mg 原子之间的扩散. 它对扩散反应层厚度的影响要大于硅和铁对扩散层的阻碍作用.

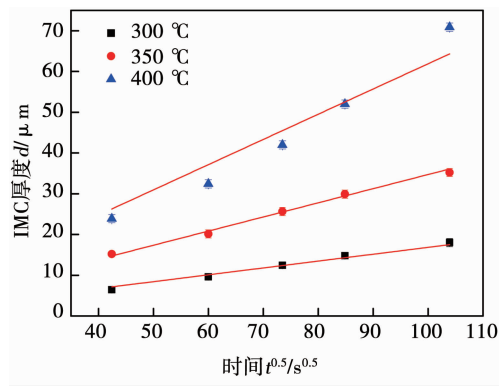


图 7 金属间化合物生长厚度与 $t^{1/2}$ 的关系

Fig. 7 Relationship between IMC thickness and $t^{1/2}$

表 3 扩散系数 (D) 和线性相关系数 (R ²)			
Table 3 Diffusion coefficient (D) and linear correlation coefficient (R ²)			
温度 T/°C	扩散系数 D/(10 ⁻¹⁴ m ² ·s ⁻¹)	拟合度 R ²	
300	2.88	0.99	
350	11.9	0.99	
400	36.7	0.97	

激活能也在一定程度上反映了 IMC 的生长速率. IMC 生长的激活能可用 Arrhenius 方程进行计

算,即

$$D = D_0 \exp(-Q/rT)$$

(2)

式中: D_0 为扩散常数 (m^2/s); Q 是激活能 (kJ/mol); r 是气体常数 ($r = 8.314 \text{ J/mol}$); T 是热力学温度 (K). 将式(2)两边取对数得

$$\ln D = \ln D_0 - Q/rT$$

(3)

图 8 为界面 IMC 层生长的 Arrhenius 图,经计算得 $Q = 82.5 \text{ kJ/mol}$, $D_0 = 2.26 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$. 试验所得出的 IMC 层生长激活能要比 Donggang 等人^[8]得到的数值小. 其原因主要是:材料在搅拌头的作用下产生大的塑形变形,生成新的界面和高密度的位错,同时发生动态再结晶并细化焊合区 (NZ) 组织. 由于搅拌摩擦焊的冷却速率较快,NZ 区并不能发生完全的再结晶,从而导致接头在室温下处于热力学不稳定状态,以存储能的形式保留在 NZ 区. 因此存储能的存在使得在受热条件下对 IMC 的生长产生一定的影响.

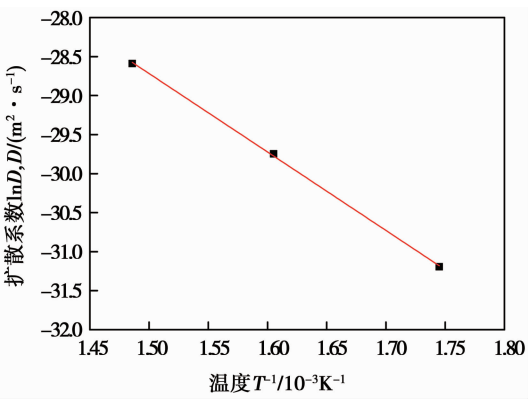


图 8 $\ln D$ 与 T^{-1} 的关系

Fig. 8 Relationship between $\ln D$ and T^{-1}

3 结 论

- (1) 6061Al 铝合金和 AZ31B 镁合金的搅拌摩擦搭接焊接头微观组织中有约 2 μm 厚的金属间化合物膜产生.
- (2) 在搅拌摩擦焊焊后退火过程中,界面 IMC 显著长大,IMC 层由 γ -Al₁₂Mg₁₇ 和 β -Al₃Mg₂ 组成,随着温度的升高,其生长基本符合抛物线规律,生长动力学与退火时间的平方根呈线性关系,生长受扩散机制控制.
- (3) 在搅拌摩擦预变形的条件下,界面 IMC 的生长速率加快,300,350 和 400 °C 扩散系数分别为 2.88×10^{-14} , $1.19 \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ 和 $3.67 \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$, 激活能为 82.5 kJ/mol.

参考文献：

[1] Woo W, Feng Z, Wang X L, *et al.* Neutron diffraction measurments of residual stresses in friction stir welding: a review[J]. *Science and Technology of Welding and Joining*, 2011, 16(1): 23-32.

[2] Prime M B, Gnäupel-Herold T, Baumann J A, *et al.* Residual stress measurements in a thick, dissimilar aluminum alloy friction stir weld[J]. *Acta Materialia*, 2006, 54(15): 4013-4021.

[3] Malarvizhi S, Raghukandan K, Viswanathan N. Effect of post weld aging treatment on tensile properties of electron beam welded AA2219 aluminum alloy[J]. *The International Journal of Advanced Manufacturing Technology*, 2008, 37(3-4): 294-301.

[4] 刘 鹏, 李亚江, 王 娟. Mg/Al 异种材料扩散焊界面组织结构及力学性能[J]. *焊接学报*, 2007, 28(6): 45-48.

Liu Peng, Li Yajiang, Wang Jun. Microstructure and properties near interface zone of diffusion bonded joint for Mg/Al dissimilar materials [J]. *Transactions of the China Welding Institution*, 2007, 28(6): 45-48.

[5] Panteli A, Robson J D, Brough I, *et al.* The effect of high strain

rate deformation on intermetallic reaction during ultrasonic welding aluminium to magnesium[J]. *Materials Science & Engineering A*, 2012, 556: 31-42.

[6] 尚 晶, 王克鸿, 田宏军, 等. 冷金属过渡搭接焊镁铝异种金属接头组织及性能[J]. *焊接学报*, 2011, 32(12): 41-45.

Shang Jing, Wang Kehong, Tian Hongjun, *et al.* Study on cold metal transfer welded lap joints of Mg/Al dissimilar metals[J]. *Transactions of the China Welding Institution*, 2011, 32(12): 41-45.

[7] Xiao L, Wang N. Growth behavior of intermetallic compounds during reactive diffusion between aluminum alloy 1060 and magnesium at 573-673K[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2015, 456: 389-397.

[8] Li Donggang, Wang Kai, Wang Qiang, *et al.* Diffusion interaction between Al and Mg controlled by a high magnetic field[J]. *Applied Physics A*, 2011, 105: 969-974.

作者简介: 金玉花,女,1971 年出生,博士,副教授,硕士研究生导师. 主要从事有色金属连接技术及其相关理论研究和教学工作. 发表论文 10 余篇. Email: yhj8686@163.com

[上接第 62 页]

Zhu Jialei, Jiao Xiangdong, Jin Feng, *et al.* Research on local dry automatic under water welding system[J]. *Electric Welding Machine*, 2009, 39(8): 10-13.

[2] 蒋力培, 王中辉, 焦向东, 等. 水下焊接高压空气环境下 GTAW 电弧特性[J]. *焊接学报*, 2007, 28(6): 1-4.

Jiang Lipai, Wang Zhonghui, Jiao Xiangdong, *et al.* Characteristics of GTAW arc in underwater welding under high-pressure air condition [J]. *Transactions of the China Welding Institution*, 2007, 28(6): 1-4.

[3] 梁 明, 王国荣, 钟继光. 采用微型排水罩的药芯焊丝水下焊接焊缝自动跟踪系统[J]. *机械工程学报*, 2007, 43(3): 148-153.

Liang Ming, Wang Guorong, Zhong Jiguang. Vision-based seam tracking system of the underwater flux-cored arc welding[J]. *Chinese Journal of Mechanical Engineering*, 2007, 43(3): 148-153.

[4] 杜健辉, 石永华, 王国荣, 等. 基于 PCA_Nu-SVR 的水下焊缝偏差识别方法[J]. *焊接学报*, 2011, 32(3): 21-24.

Du Jianhui, Shi Yonghua, Wang Guorong, *et al.* Seam offset identification of underwater arc welding using PCA_Nu-SVR[J]. *Transactions of the China Welding Institution*, 2011, 32(3): 21-24.

[5] Hu J, Tsai H L. Heat and mass transfer in gas metal arc welding. part I: the arc[J]. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2007, 50(5): 833-846.

[6] Choo R T C, Szekeely J, Westhoff R C. On the calculation of the free surface temperature of gas-tungsten-arc weld pools from first principles; part I. modeling the welding arc [J]. *Metallurgical Transations B*, 1992, 23 (3): 357-369.

作者简介: 高延峰,男,1974 年出生,博士,副教授. 主要从事焊接自动化方面的研究工作. 发表论文 30 余篇. Email: gaoyf@nchu.edu.cn