复合材料学报 第25卷 第6期 12月 2008年
Acta Materiae Compositae Sinica Vol. 25 No. 6 December 2008

文章编号：1000-3851(2008)06-0156-04

硅酸铝短纤维增强 AZ91D 复合材料的界面微观结构及力学性能

刘贯军*[1]，李文芳[2]，马利杰[1]，彭继华[2]
（1. 河南科技学院 机电学院，新乡 453003；2. 华南理工大学 机械工程学院，广州 510640）

摘　要： 以晶化的硅酸铝短纤维$(Al_2O_3-SiO_2)_{sf}$为增强体、用磷酸铝为预制体粘结剂，通过挤压浸渗工艺制备了$(Al_2O_3-SiO_2)_{sf}$/AZ91D 镁基复合材料。通过光学显微镜、TEM 和 HREM 分析研究了复合材料的界面微观结构和界面反应产物。结果表明：用挤压浸渗法制备的硅酸铝短纤维增强 AZ91D 镁基复合材料的界面厚度约为 100 nm，界面上除有一定数量的 MgO 颗粒和少量的 $MgAl_2O_4$ 和 Mg_2Si 颗粒外，还有少量的 MgP_4 等反应产物存在；硅酸铝增强纤维与镁合金基体之间形成了较强界面结合，界面微观结构比较理想。力学性能测试表明，与 AZ91D 基体合金相比，复合材料的室温抗拉强度提高了约 18%，弹性模量提高了约 58%。

关键词： 镁基复合材料；硅酸铝纤维；磷酸铝粘结剂；界面结构；力学性能
中图分类号： TB32　　**文献标志码：** A

Interface microstructure and mechanical property of $(Al_2O_3-SiO_2)_{sf}$/AZ91D composite

LIU Guanjun*[1], LI Wenfang[2], MA Lijie[1], PENG Jihua[2]
(1. Department of Mechanical and Electronic Engineering, Henan Institute of Science and Technology, Xinxiang 453003, China;
2. College of Mechanical Engineering, South China University of Technology, Guangzhou 510640, China)

Abstract: The magnesium alloy matrix composite was fabricated by the squeeze cast with the preform made of crystallized aluminum silicate short fibers as the reinforcement and aluminum phosphate as the binder. The interface microstructure and reaction products were investigated by optical microscope, TEM and HREM. It is shown that the thickness of the interface of the metal matrix composite (MMC) is about 100 nm, and there are not only lots of MgO grains and a small quantity of $MgAl_2O_4$ and Mg_2Si nano grains, but also a small quantity of MgP_4 nano grains on the interface. The stronger interface binding force and ideal interface structure are formed between the magnesium alloy matrix and the alumina silicate fibers. Compared with the properties of the AZ91D alloy, the tensile strength of the MMC increases by 18% at room-temperature, and the Young's modulus increases by 58%.

Keywords: magnesium matrix composite; alumina silicate fiber; alumina phosphate binder; interface microstructure, mechanical property

镁合金是最轻的金属结构材料，镁基复合材料具有很高的比强度和比刚度[1-2]，被誉为 21 世纪的“绿色”节能环保材料[3]，具有广阔的应用前景。但由于目前相对昂贵的原材料及生产成本，镁基复合材料的应用范围仅局限于运动器材、航空航天和国防等领域。事实上，对于镁基复合材料来说，其成本高的主要原因之一是所用的增强体（如氧化铝纤维、碳化硅晶须和短纤维、碳（石墨）纤维、碳化硼纤维等）价格太高。为了开发相对廉价的镁基复合材料，寻找新的更好性价比的复合材料增强体势在必行。硅酸铝短纤维来源丰富，价格低廉，经过晶化处理的硅酸铝短纤维物理和力学性能能够满足要求[4]，具备作为镁基复合材料增强体的潜力。虽然，硅酸铝短纤维增强铝基复合材料的研究已经比较深入[5-9]，但与镁合金复合的研究报道甚少。本文作者等[10]在研究了硅酸铝短纤维增强 AZ91D 基复合材料的界面反应和界面结合状况后，认为用硅酸铝短纤维增强 AZ91D 基复合材料是可行的。本文中在此基础上利用分析透射电镜和高分辨透射电镜对该复合材料的界面反应产物和界面微观结构进

收稿日期： 2007-12-05；**收修改稿日期：** 2008-03-31
基金项目： 河南科技学院博士科研启动基金
通讯作者： 刘贯军，博士，教授，研究方向为金属基复合材料　E-mail：lguanj@126.com

行了更深入的研究。

1 实验材料及方法

1.1 复合材料制备

硅酸铝短纤维增强镁基复合材料的制备步骤：(1) 制备出疏密均匀、有一定强度要求的硅酸铝短纤维预制体；(2) 通过挤压浸渗法制备镁基复合材料。预制体的制备过程中粘结剂的选用非常重要，因为粘结剂除了提高预制体的强度和稳定预制体的形状以外，还能够调整复合材料的界面结构，改善其界面结合状况，从而从根本上保证复合材料的力学性能。本文中使用磷酸铝($AlPO_4$)粘结剂[11]。挤压浸渗阶段，镁合金的浇铸温度、预制体和模具的预热温度以及挤压浸渗压力等工艺参数对获得组织致密均匀、体积分数符合要求的复合材料具有重要影响。通过试验确定预制体预热温度为 600℃、模具预热温度为 550～570℃、挤压浸渗压力为 20～30 MPa，并在此基础上对镁合金的浇铸温度初步优化为 700℃，获得了相对理想的复合材料界面结构和力学性能。图 1 为硅酸铝短纤维体积分数为 20%的复合材料(多数纤维直径为 5～15 μm，长度约 30～200 μm)的光学显微组织。

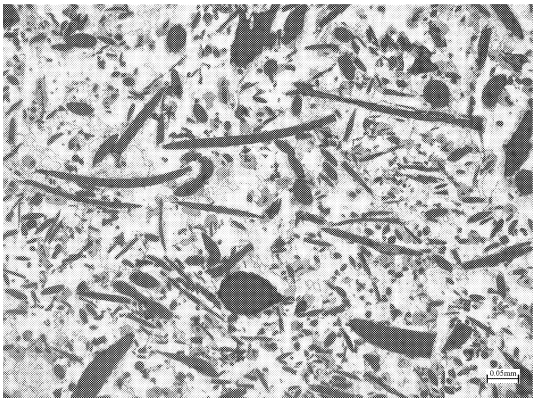


图 1 20 vol%$(Al_2O_3-SiO_2)_{sf}$/AZ91D 复合材料显微组织

Fig. 1 Microstructure of 20 vol%$(Al_2O_3-SiO_2)_{sf}$/AZ91D composite

1.2 实验方法

复合材料制备后，首先在 Leica 光学显微镜下观察光学组织。然后通过取样、机械研磨、离子减薄等方法制得直径为 3 mm 的透射电镜样品，分别在 JEOL2000 分析电镜和 JEOL2000EX－Ⅱ高分辨透射电镜下对复合材料界面结构进行观察。复合材料的力学性能测试在 SANS CMT5504 型电子拉伸试验机中进行，试样尺寸为 3 mm×6 mm×30 mm。拉伸试验后，在 LEO 1530VP 场发射扫描电镜下对试样断口进行形貌观察。

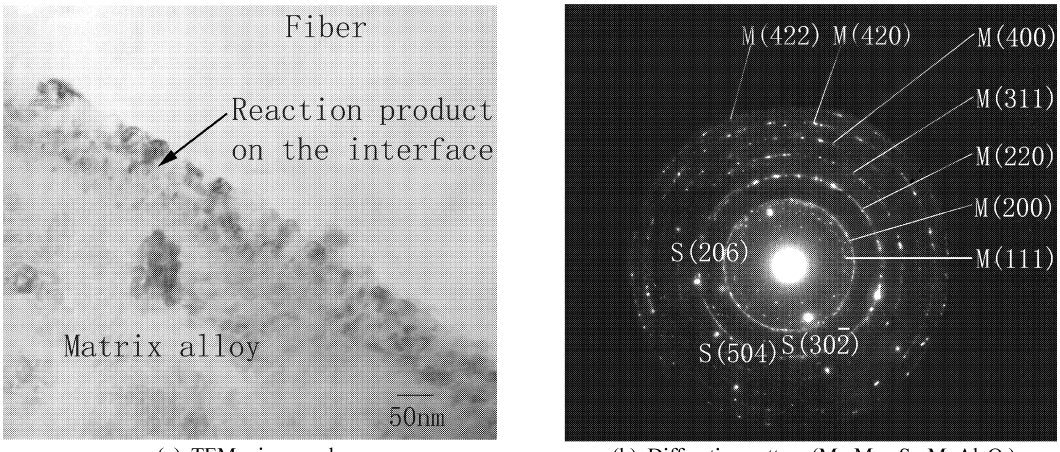
2 实验结果与分析

2.1 复合材料界面结构的 TEM 观察与分析

在金属基复合材料中，界面对复合材料内载荷的传递、微区域应力和应变分布、残余应力、增强机制和断裂过程等力学性能有着极为重要的作用和影响。界面结构和性能是基体和增强体性能能否充分发挥的关键。图 2(a)是硅酸铝短纤维增强 AZ91D 镁基复合材料中的基体金属与硅酸铝纤维增强体之界面在纤维纵剖面上的 TEM 照片。从图中可以看出，界面层的厚度约为 100 nm，界面区反应产物的颗粒尺寸从几个纳米到十几纳米不等，而且界面区域相对清晰。图 2(b)为界面(纤维表层)部分反应产物的衍射花样，显示图 2(a)中界面区的纳米颗粒绝大多数为 MgO 颗粒，同时有少量 $MgAl_2O_4$ 颗粒(正交晶系)存在。前期研究表明[10]，在硅酸铝短纤维增强 AZ91D 镁基复合材料的制备过程中，界面反应产物中除了 MgO、$MgAl_2O_4$ 颗粒外，还有 Mg_2Si(密排六方结构)、MgP_4(简单单斜晶格结构)等颗粒。但是，它们在图 2(b)所示的衍射花样中没有明显表现，主要是这些界面反应产物颗粒细小，数量又少的缘故。这种较薄的界面层对复合材料的界面结构和性能是有益的。

2.2 复合材料界面结构的 HREM 观察与分析

由于某些界面反应产物颗粒细小，数量少且分散，用一般分析电镜进行电子衍射，很难看清其衍射花样。本文中借助高分辨电子显微镜(HREM)对该复合材料的界面结构进行了观察和分析。图 3 是 Mg_2Si 沿硅酸铝纤维表面分布的高分辨图像，显示 Mg_2Si 相与莫来石(Mullite)纤维的界面结构(本文中的莫来石纤维是硅酸铝纤维被晶化处理后的结果)和具有密排六方(Primitive Hexagonal)晶格的 Mg_2Si 相在$[1\bar{1}0\bar{1}]$晶向的晶体结构高分辨像。由图 3 可见：(1) 界面反应生成的 Mg_2Si 相是沿纤维表面分布的；(2) Mg_2Si 相与莫来石纤维之间存在部分共格(或半共格)关系，即具有密排六方晶格结构的 Mg_2Si 相的$(12\bar{1})$面(面间距为 0.2621 nm)与具有简单正交(Primitive orthorhombic)晶格结构的莫来石相的(220)面(面间距为 0.2694 nm)部分共格(或半共格)。



(a) TEM micrograph　　(b) Diffraction pattern (M—Mg ; S—$MgAl_2O_4$)

图 2　20 vol%$(Al_2O_3-SiO_2)_{sf}$/AZ91D 复合材料的界面 TEM 分析

Fig. 2　TEM analysis of the interface of 20 vol%$(Al_2O_3-SiO_2)_{sf}$/AZ91D composite

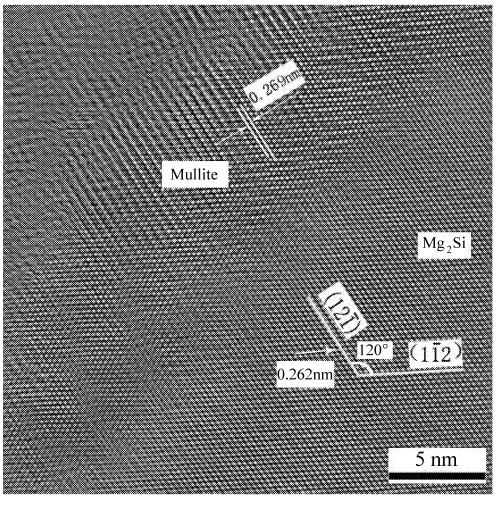


图 3　Mg_2Si 沿硅酸铝纤维表面分布的高分辨像

Fig. 3　HREM of Mg_2Si distributed on the surface of the mullite fiber

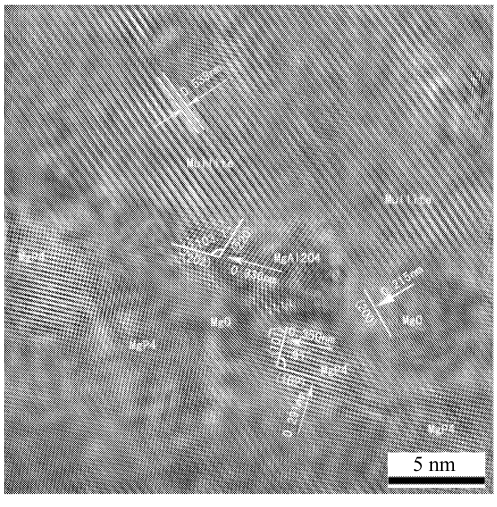


图 4　$(Al_2O_3-SiO_2)_{sf}$/AZ91D 复合材料界面的高分辨图像

Fig. 4　HREM image of the interface of $(Al_2O_3-SiO_2)_{sf}$/AZ91D

图 4 是硅酸铝短纤维增强 AZ91D 镁基复合材料界面上另一处的高分辨图像。在这个界面上可以发现更多的反应产物，即除了几个纳米大小的 MgO 颗粒和尖晶石 $MgAl_2O_4$ 颗粒外，还有为数不少的 MgP_4 颗粒。但是，从该图中，看不出这些界面反应产物之间以及与莫来石纤维之间存在共格关系，就是说，它们之间很可能是以非共格的形式结合的。

对比图 3 和图 4 可以看出，图 3 所示 Mg_2Si 的颗粒尺寸远大于图 4 中所示的 MgO、MgP_4、$MgAl_2O_4$ 等颗粒尺寸。这主要是在同一个界面反应中与 $MgAl_2O_4$ 一起生成的 Mg_2Si 的摩尔数比前者多(是前者的 2 倍)的缘故。也可能由于某种原因，Mg_2Si 生成的比较集中。

2.3　复合材料的力学性能

对纤维体积分数为 20%的复合材料和同等条件下的 AZ91D 合金进行初步拉伸试验(拉伸试样主要尺寸为 2 mm×4 mm×20 mm)，常温下其铸态力学性能对比如表 1 所示，其中数据均为 5 个测试数据的平均值。由表 1 可以看出，复合材料比 AZ91D 基体合金的抗拉强度提高了约 18%，弹性模量提高了约 58%，但其延伸率却下降了 73%。

在对复合材料的力学性能测试过程中，还发现复合材料的抗拉强度和屈服强度波动较大，而其弹性模量则相对波动较小。原因除了与测试样品在压

铸件上的取样位置有关外，可能还与试样的表面粗糙度差异有关，这方面有待今后进一步完善制备和加工工艺来解决。

表 1 AZ91D 合金及 20 vol%$(Al_2O_3-SiO_2)_{sf}$/AZ91D 复合材料力学性能对比

Table 1 Mechanical property of AZ91D and 20 vol%$(Al_2O_3-SiO_2)_{sf}$/AZ91D composite

Materials	Young's modulus/GPa	Tensile strength/MPa	Yield strength/MPa	Elongation percentage/%
AZ91D	38.5	201	159	3.0
$(Al_2O_3-SiO_2)_{sf}$/AZ91D	61.0	238	225	0.8

3 结 论

(1) 通过 TEM 观察，用 $AlPO_4$ 作预制体粘结剂，通过挤压浸渗法制备的硅酸铝短纤维增强 AZ91D 复合材料的界面均匀、且界面厚度较薄，约 100 nm，反应产物颗粒细小。

(2) 通过 HREM 观察，该复合材料的界面反应产物中，以 MgO 纳米颗粒为主，另外还有少量的 $MgAl_2O_4$、Mg_2Si 和 MgP_4 等纳米颗粒。并且发现，在界面上 Mg_2Si 相与硅酸铝纤维(莫来石)之间存在共格关系。

(3) 通过对体积分数为 20%的该复合材料和基体合金进行力学性能对比测试，复合材料比 AZ91D 基体合金的抗拉强度平均提高了约 18%，弹性模量平均提高了约 58%。

参考文献：

[1] 李淑波，郑明毅，甘为民，等. SiC_W/AZ91 镁基复合材料及 AZ91 镁合金的高温变形行为 [J]. 复合材料学报，2005，22(3)：103-108.
Li Shubo, Zheng Mingyi, Gan Weimin, et al. Hot deformation behaveior of SiC_W/AZ91 magenium matrix composite and AZ91 alloy [J]. Acta Materiae Compositae Sinica, 2005, 22(3): 103-108.

[2] Saravanan R A, Surappa M K. Fabrication and characterization of pure magnesium—30 vol% SiC_P particle composite [J]. Mater Sci Eng A, 2000, A276 (1/2): 108-116.

[3] Bralower P M. Automotive die casting magnesium reviving up for the 21st century [J]. Die Casting, 1997, 41(3): 68-70.

[4] 周耀民，李贤淦，陈美怡. 晶化硅酸铝纤维增强金属基复合材料[J]. 复合材料学报，1995，12(4)：12-16.
Zhou Yaomin, Li Xian'gan, Chen Meiyi. Crystallized aluminum-silica short fiber reinforced metal matrix composites [J]. Acta Materiae Compositae Sinica, 1995, 12(4): 12-16.

[5] 张建强，魏喆良，张茂勋. 硅酸铝纤维/铝合金复合材料的高温疲劳特性 [J]. 特种铸造及有色合金，2001(2)：63-65.
Zhang Jianqiang, Wei Zheliang, Zhang Maoxun. High temperature fatigue characteristic of aluminum silicate fiber/aluminum alloy composites [J]. Special Casting and Nonferrous Alloys, 2001(2): 63-65.

[6] 吴 晶，李文芳，蒙继龙. 硅酸铝短纤维/ZL109 复合材料的机械性能 [J]. 华南理工大学学报：自然科学版，2003，31(2)：62-65.
Wu Jing, Li Wenfang, Meng Jilong. Mechanical behaviors of alumina silicate short fibre/ZL109 composites [J]. Journal of South China University of Technology: Natural Science, 2003, 31(2): 62-65.

[7] 谢 勇，李文芳，黄 鹰，等. 稀土 Pr 对$(Al_2O_3-SiO_2)_{sf}$/Al-Si复合材料力学性能的影响 [J]. 材料科学与工程学报，2003，21(4)：554-557.
Xie Yong, Li Wenfang, Huang Ying, et al. Influences of Pr on mechanical behaviors of $(Al_2O_3-SiO_2)_{sf}$/Al-Si composites [J]. Journal of Materials Science and Engineering, 2003, 21(4): 554-557.

[8] 尧建刚，李文芳，杜 军. 石墨颗粒含量对$(Gr_p+Al_2O_3-SiO_{2f})$/ZL109 混杂复合材料摩擦磨损性能的影响 [J]. 材料科学与工程学报，2005，23(5)：491-495.
Yao Jiangang, Li Wenfang, Du Jun. Effect of graphite content on friction and wear properties of aluminosilicate short fiber and graphite particle reinforced Al-12Si hybrid composites [J]. Journal of Materials Science and Engineering, 2005, 23(5): 491-495.

[9] 王战华，李文芳，黄 鹰. 室温下 $Gr_p\cdot Al_2O_3-SiO_2(sf)$/ZL109 的干滑动摩擦磨损性能 [J]. 华南理工大学学报：自然科学版，2001，29(7)：28-32.
Wang Zhanhua, Li Wenfang, Huang Ying. Dry tribological and wearable behaviors of $Gr_p\cdot Al_2O_3-SiO_2(sf)$/ZL109 at room temperature [J]. Journal of South China University of Technology: Natural Science, 2001, 29(7): 28-32.

[10] 刘贯军，李文芳，彭继华，等. 硅酸铝短纤维增强镁基复合材料界面反应及其热力学分析 [J]. 复合材料学报，2007，24(2)：7-12.
Liu Guanjun, Li Wenfang, Peng Jihua, et al. Interface reaction and thermodynamic analysis on the magesium alloy matrix composite reinforced with alumina silicate short fibers [J]. Acta Materiae Compositae Sinica, 2007, 24(2): 7-12.

[11] 刘贯军，李文芳，彭继华，等. 硅酸铝短纤维增强 AZ91D 复合材料的制备 [J]. 特种铸造及有色合金，2006，26(11)：688-690.
Liu Guanjun, Li Wenfang, Peng Jihua, et al. Fabrication of alumina silicate short fibers reinforced AZ91D metal matrix composites [J]. Special Casting and Nonferrous Alloys, 2006, 26(11): 688-690.