

doi:10.3969/j.issn.2095-0411.2021.04.002



Al 基非晶/1060 铝合金层状复合材料研究

王知鸷, 章星宇, 赵 琴, 刘寿军, 刘 麟

(常州大学 机械与轨道交通学院, 江苏 常州 213164)

摘要:通过累积叠轧(ARB)的方法制备 Al 基非晶/Al 层状复合材料, 不仅可以突破铝基非晶尺寸的局限性, 而且利用了轧制过程中析出的部分纳米晶增强复合材料的力学性能。制备了 $\text{Al}_{86}\text{Ni}_8\text{Y}_6$ 和 $\text{Al}_{85}\text{Ni}_5\text{Y}_8\text{Co}_2$ 两种非晶薄带, 采用差示扫描量热法(DSC)以及 X 射线衍射仪(XRD)确定了非晶薄带中初晶 $\alpha\text{-Al}$ 完全析出所需的温度及时间; 通过累积叠轧(ARB)的方法制备了 Al/Al, Al/非晶纳米晶/Al 层状复合材料并测试了其力学性能。结果表明: 退火温度分别取 575, 580 K, 退火时间需要控制在 45 min 以内, 叠轧 4 次后 Al/ $\text{Al}_{85}\text{Ni}_5\text{Y}_8\text{Co}_2$ /Al 的抗拉强度最高, 为 226 MPa, 材料的伸长率高达 17.4%。

关键词:累积叠轧; 铝基非晶; 纳米 Al; 材料性能

中图分类号:TG 139.8

文献标志码:A

文章编号:2095-0411(2021)04-0008-06

Study on Al-Based AmorPhous/1060 Aluminum Layered Composites Materials

WANG Zhizhi, ZHANG Xingyu, ZHAO Qin, LIU Shoujun, LIU Lin

(School of Mechanical Engineering and Rail Transit, Changzhou University, Changzhou 213164, China)

Abstract: The Al-based amorphous/Al layered composite material is prepared by the accumulative roll bonding (ARB) method, which can not only break through the limitation of the size of the Al-based amorphous material, but also enhance the mechanical properties of the composite material using part of the nanocrystals precipitated during the rolling process. Two kinds of amorphous strips were prepared. The annealing temperature and time of the precipitation of the primary $\alpha\text{-Al}$ were determined by the differential scanning calorimetry (DSC) and X-ray diffractometer (XRD). Al/Al and Al/amorphous nanocrystalline/Al layered composite materials were prepared by the method of the accumulative roll bonding, and their mechanical properties were tested. The results show that the annealing temperature is 575 K and 580 K respectively, and the annealing time needs to be controlled within 45 min; after 4

收稿日期:2020-12-20。

基金项目:国家自然科学基金资助项目(51705038);江苏省自然科学基金资助项目(BK20160279);常州模具先进制造高新技术研究重点实验室资助项目(CM20173001)。

作者简介:王知鸷(1984—),女,山西介休人,博士,讲师。E-mail:zzwang@cczu.edu.cn

引用本文:王知鸷,章星宇,赵琴,等.Al 基非晶/1060 铝合金层状复合材料研究[J].常州大学学报(自然科学版), 2021, 33(4): 8-13.

times of rolling, Al/Al₈₅Ni₅Y₈Co₂/Al has the highest tensile strength and hardness of 226 MPa and 49.2 HV respectively, and the elongation of the material is as high as 17.4%.

Key words: accumulative roll bonding(ARB); Al-based amorphous; α -Al; material property

近年来铝基非晶材料凭借高强度、高硬度、高腐蚀性能等特性,逐渐成为新材料研究的热点。当通过合理的制备工艺使得非晶基体上析出适量的纳米尺度 α -Al 颗粒时,可以使得非晶的力学强度进一步提高^[1-2],堪比陶瓷材料,并且能保持良好的韧性。SALEHI 等^[3]通过对 Al₈₆Ni₆Y₆Ce₂ 非晶退火形成了纳米晶 α -Al,提高了合金的硬度;王玉等^[4]通过设计合金成分、控制冷却速度制备出 Al-TM-RE 非晶纳米复合材料,如 Al₈₅Ni₅Y₁₀, Al₈₅Ni₅Y₈Cu₂,使得材料的力学性能可以达到 1 560 MPa,这些文献报道都表明铝基非晶在工程领域中具有显著的应用价值。然而铝基非晶材料的玻璃形成能力弱,大部分都呈粉状和薄带状^[5],在薄带的基础上通过退火的方法制备非晶纳米晶复合材料,尽管能控制 α -Al 的尺寸和体积分数,但是依旧受到尺寸的限制,无法得到广泛应用。

针对 Al 基非晶薄带,综合退火和高压双重作用,不仅有利于薄带材料强度和韧性的提高,而且能就高压成型特点拓展其应用范围,如通过累积叠轧工艺将非晶薄带与铝合金材料形成层状复合材料。累积复合叠轧工艺是一种较新颖的剧烈塑性变形方法,此法能够结合两种材料的性能优势^[6-7],弥补单一金属材料受到的局限带来的缺陷。目前关于层状复合材料的研究大多集中于铝合金与钛合金或不锈钢、铝合金与陶瓷或者石墨烯等晶体材料上^[7-12],还很少有学者将铝合金与铝基非晶进行叠轧,形成铝基非晶纳米晶/铝合金层状复合材料的研究,若能将非晶薄带与铝合金材料叠轧结合形成层状复合材料,不仅能有效提高铝合金的强度和硬度,而且能规避铝基非晶尺寸小的缺陷,从而拓宽铝基非晶合金材料的应用范围。

田娜, WANG 等通过单辊法制备了初晶型晶化且非晶形成能力较强的 Al₈₆Ni₈Y₆, Al₈₅Ni₅Y₈Co₂ 两种 Al 基非晶薄带^[13-14],基于这两种成分的非晶,本文拟利用退火保温的方式在非晶基体中析出弥散分布的 α -Al,然后与铝合金进行累积叠轧制备出层状复合材料,并测试其力学性能。在突破非晶材料尺寸局限的同时弥补了铝合金材料强度不足的缺点,期望为 Al 基非晶应用于工程领域提供新思路。

1 试样制备及实验方法

实验材料为 Al₈₆Ni₈Y₆, Al₈₅Ni₅Y₈Co₂ 非晶薄带和 1060 工业纯铝。按照原子的百分比利用高纯度金属 Al, Ni, Y, Co(纯度>99.99%)配制,根据金属熔点高低(纯铝放在最下面)将配制好的材料放置在真空电弧熔炼炉内的水冷铜增锅内进行熔炼。炉内抽真空至 2.5×10^{-3} Pa 后将高纯氩气(5N)快速充入,经过反复熔炼 5 次后得到母合金。将母合金破碎清洗后装入下端带有喷嘴的石英管中进行感应熔炼,以单辊法制备非晶薄带,最后制备形成的非晶薄带厚度约为 35~40 μ m,宽度为 3~4 mm。用于实验的 1060 铝板材料的厚度为 2 mm。

累积叠轧前用钢丝刷打磨 1060 铝合金板表面并用丙酮进行清洗,去除氧化层及油污。然后将退火后的非晶均匀铺在两块铝合金板之间,用铆钉将其固定。轧机采用 ZK-WS2A-01 小型两辊轧机,为保证轧制后能够更好地复合,每次轧前材料需进行为时 10 min 的 250 $^{\circ}$ C 预热,每道次压下量为 50%。轧后的板材空冷后从中间剪切成两段,再对结合面进行相同表面处理,叠合后进行下道次轧制,总共进行 4 个道次的轧制。轧制过程中由于板材边部容易产生裂纹,故在每道次轧制前还需要对边部进行剪裁和修磨。

通过 Perkin-ElmexDSC-8000 型差示扫描量热仪来测量非晶薄带在升温过程中的特征温度值,根据

非晶退火过程中的晶化特征温度值来确定合适的退火温度,通过型号为 D/MAX2500 的 X 射线衍射仪进行析出相分析。退火后试样使用仪器 JEOL JSM-6460 型扫描电镜观察分析。硬度测试采用 HVS-1000 型显微硬度计进行,均加载 200 g、保压 15 s。拉伸实验在 SPL-10kN 万能拉伸试验机上进行,实验时拉伸机通过移动下横梁并以 0.01 mm/s 的拉伸速率匀速施加单向静拉力,然后通过计算机记录载荷-位移曲线。将载荷除以标样的横截面积,位移除以原始标距,便得到了材料的应力-应变曲线。通过游标卡尺测量拉断后的标距长度,计算其伸长率。试样尺寸如图 1 所示,并用 JSM-6360LA 扫描电镜对拉伸断口观察。

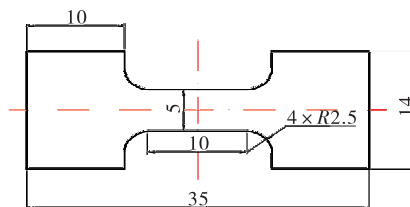


图 1 力学拉伸试样尺寸

Fig.1 Dimensions of mechanical tensile specimens

2 结果与分析

图 2 为制备的 $\text{Al}_{86}\text{Ni}_8\text{Y}_6$, $\text{Al}_{85}\text{Ni}_5\text{Y}_8\text{Co}_2$ 非晶薄带的 XRD 衍射曲线,可见两种薄带在 $2\theta = 38^\circ$ 处有一个典型的非晶漫散射峰,并无其他尖锐的晶化峰出现,因此制备的薄带为完全非晶结构。

为了确定非晶第一次晶化的特征温度值及合适的退火温度,通过 DSC 分别对材料进行了 20 K/min 的升温测试,测试结果如图 3 所示。

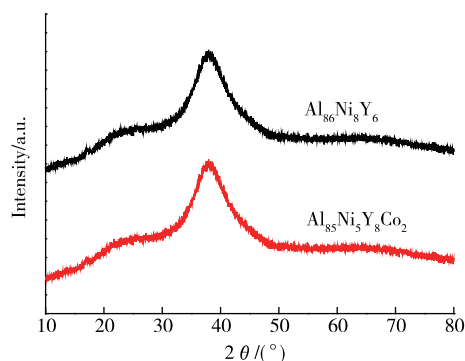


图 2 单辊法制备的非晶薄带 XRD 图

Fig.2 XRD of amorphous ribbon prepared by single roll method

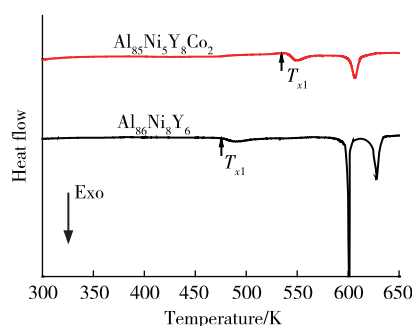
图 3 $\text{Al}_{86}\text{Ni}_8\text{Y}_6$ 和 $\text{Al}_{85}\text{Ni}_5\text{Y}_8\text{Co}_2$ 非晶薄带在 20 K/min 升温速率下的 DSC 曲线Fig.3 DSC curves of $\text{Al}_{86}\text{Ni}_8\text{Y}_6$, $\text{Al}_{85}\text{Ni}_5\text{Y}_8\text{Co}_2$ amorphous ribbons at 20 K/min heating rates

图 3 中可以观察到两种非晶薄带初晶晶化的特征温度值,其中非晶 $\text{Al}_{86}\text{Ni}_8\text{Y}_6$ 的初晶晶化的起始温度为 $T_{x1} = 495$ K,在第二次晶化的开始温度 $T_{x2} = 602$ K 前,此区间主要析出 $\alpha\text{-Al}$ 晶体。此后随着退火温度的升高,材料便会析出一些亚稳态金属间化合物,此类化合物不仅不能起到强化材料的效果,反而会降低材料的机械性能^[13]。而 $\text{Al}_{85}\text{Ni}_5\text{Y}_8\text{Co}_2$ 的第一次晶化的起始温度为 $T_{x1} = 552$ K,第二次晶化的开始温度为 $T_{x2} = 594$ K。为了非晶材料中只析出 $\alpha\text{-Al}$ 晶体,材料的退火温度最终确定在 570, 580 K 进行。

退火时间过长会导致金属化合物的产生,所以需要确定一个退火时间范围,图 4 显示了两种材料不同退火时间后的结晶相。

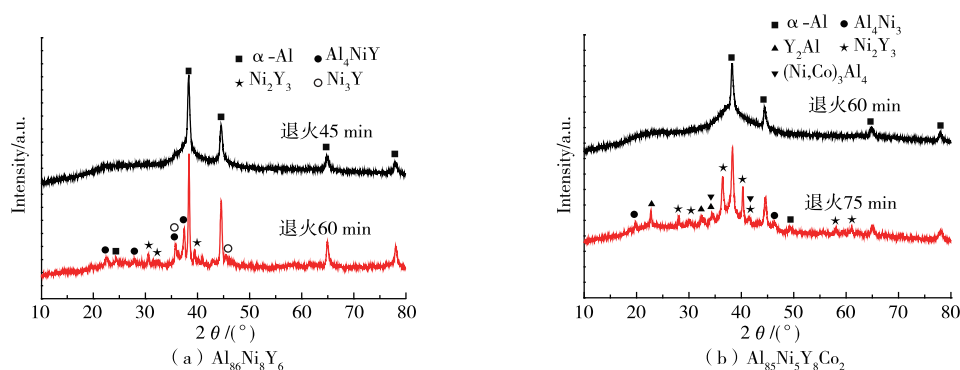
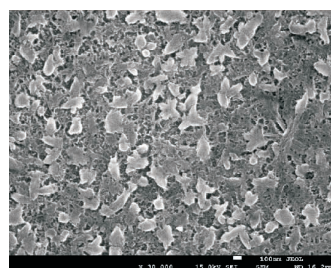


图 4 非晶薄带退火不同时间的 XRD 图

Fig.4 XRD of amorphous ribbons annealing for different time

$\text{Al}_{86}\text{Ni}_8\text{Y}_6$ 非晶薄带在退火至 60 min 时开始有金属间化合物的析出, 45 min 之前都只析出 $\alpha\text{-Al}$ 。而 $\text{Al}_{85}\text{Ni}_5\text{Y}_8\text{Co}_2$ 非晶薄带经过 75 min 的退火才析出不稳定金属间化合物, 相对 $\text{Al}_{86}\text{Ni}_8\text{Y}_6$ 可退火时间更长, 所以为了只析出 $\alpha\text{-Al}$ 两种非晶最终退火时间需分别控制在 45 min 和 60 min 以内。图 5 为 30 000 倍下退火 45 min 后的 $\text{Al}_{86}\text{Ni}_8\text{Y}_6$ 非晶合金条带 SEM 图像。由图中可以看出基体上析出了 200 nm 左右的多边形晶粒, 这些大小不一的晶粒分布在致密的基体上。

图 5 570 K 退火 45 min 后的 $\text{Al}_{86}\text{Ni}_8\text{Y}_6$ 非晶合金的 SEM 图Fig.5 SEM of the $\text{Al}_{86}\text{Ni}_8\text{Y}_6$ amorphous alloy annealed at 570 K about 45 min

通过退火使非晶薄带中析出纳米 Al 之后, 将两种非晶薄带与铝板进行了叠轧。轧制 4 次后截取试样利用环氧树脂进行冷镶嵌, 为了观察非晶结合情况, 利用光学显微镜对试样的结合界面进行观察, 结合界面的图像如图 6 所示。由图 6 可知, 结合的界面理论上有 7 个, 但在图中无法全部观察到, 这是因为材料界面经过反复叠轧后, 变形量不断的累积增加使得材料之间界面消失融合, 基体板材以及非晶成为一体。两者界面区域的结合主要依赖硬化层的破碎, 用钢丝刷打磨 1060 工业纯铝表面的时候会产生加工硬化层, 此类加工硬化层塑性较差, 且在累积叠轧的过程中产生的应力集中会导致其破碎, 这样两层的新鲜金属就会裸露出来。在轧机的巨大压力下, 新鲜的金属会通过加工硬化层的裂隙流动出来, 并与破碎的非晶纳米晶薄带以及另一层的金属形成良好的结合。从图中看出这两种非晶纳米晶层状复合材料界面结合良好, 其中白色箭头所指的为破碎后的非晶薄带, 均匀的分布于层状材料内部。

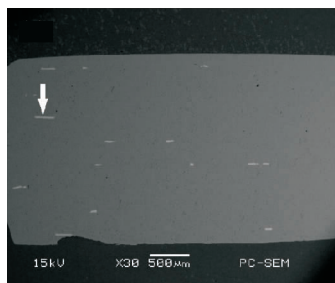
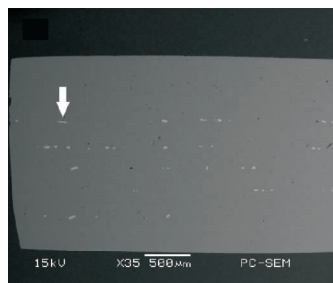
(a) $\text{Al}/\text{Al}_{86}\text{Ni}_8\text{Y}_6/\text{Al}$ (b) $\text{Al}/\text{Al}_{85}\text{Ni}_5\text{Y}_8\text{Co}_2/\text{Al}$

图 6 层状复合材料横截面 SEM 图像

Fig.6 SEM micrographs of layered composites materials

对叠轧后的层状复合材料进行力学拉伸实验, Al/Al 层状复合材料与 Al/Al₈₆Ni₈Y₆/Al 和 Al/Al₈₅Ni₅Y₈Co₂/Al 层状材料的力学性能曲线如图 7 所示。经过累积叠轧 4 次的 Al/Al₈₆Ni₈Y₆/Al 非晶纳米晶层状复合材料的抗拉强度是 180 MPa, 相比于 Al/Al 板材的 145 MPa 提高了约 25%。而同样累积叠轧 4 道次的 Al/Al₈₅Ni₅Y₈Co₂/Al 非晶纳米晶层状复合材料的抗拉强度为 226 MPa, 是 Al/Al 板材的 1.56 倍, 并且层状复合材料的硬度相比于 Al/Al 层状复合材料也有所提升。

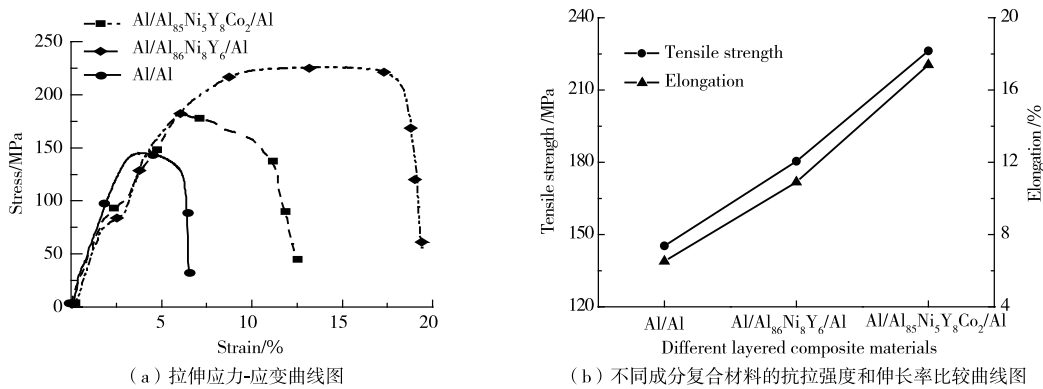


图 7 层状复合材料力学性能图

Fig.7 Mechanical properties of layered composites

在塑性方面, 经过 4 次累积叠轧的 Al/Al₈₆Ni₈Y₆/Al 非晶纳米晶层状复合材料的伸长率为 10.9%, Al/Al₈₅Ni₅Y₈Co₂/Al 非晶纳米晶层状复合材料的伸长率为 17.4%, 比累积叠轧 4 次的 Al/Al 板材的伸长率 6.5% 提高了约 168%。由此可见, 相对于 Al/Al 板材叠轧材料, 制备出的新型的铝基非晶纳米晶层状复合材料的塑性和强度均得到提高, 打破了传统复合材料强度和塑性倒置的关系。

图 8 为 3 类层状复合材料的拉伸断口 SEM 照片。由图可知 3 类材料都是韧性断裂, 与伸长率大于 5.5% 相符合。Al/Al 层状材料的断口韧窝少且较浅, 部分地带出现了河流状花样, 表明其韧性不佳; Al/Al₈₆Ni₈Y₆/Al 的断口韧窝变得大且深, 分布不均匀, 并且可以发现一些较大的增强体颗粒聚集在韧窝处, 说明韧断最终发生在颗粒与基体的界面; Al/Al₈₅Ni₅Y₈Co₂/Al 材料的断口和前两者相比, 韧窝尺寸明显减小, 密度增大, 且韧窝较浅, 增强体颗粒也逐渐减小。由此可知 Al/Al₈₅Ni₅Y₈Co₂/Al 材料在相同的工艺下, 非晶部分晶化后更容易碎化, 进而进入铝合金基体, 提高材料的强韧性。

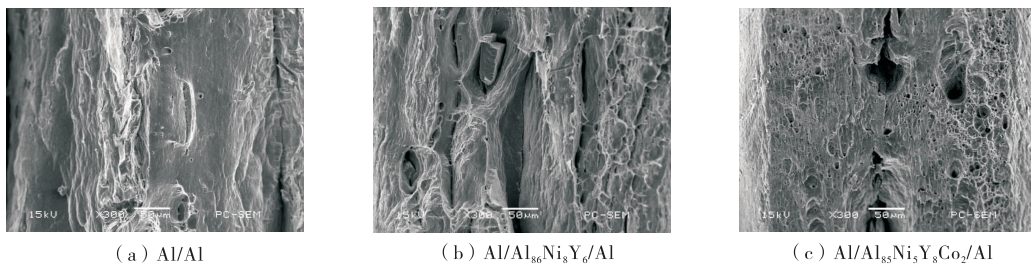


图 8 拉伸断口的 SEM 扫描图

Fig.8 SEM of the tensile fracture

铝基非晶纳米晶层状复合材料强度和塑性的提高可归因于以下几个方面: ①铝基非晶纳米晶增强相具有一定的尺寸, 减小了临近晶粒内部的应力集中现象, 进而减弱了临近晶粒内部位错形核可能性。界面处纳米增强相对位错长程运动提高的阻碍能力加之其有效承载作用, 使得复合材料的抗拉强度有较高提升; 当复合材料的基体和增强体颗粒之间达到很好的结合时, 在对复合材料施加载荷时, 载荷会通过界面从基体转移到增强体上, 使增强体颗粒承受部分载荷。由于增强体颗粒一般是硬度较高、弹性模量较高的颗粒, 因此增强体颗粒会提高复合材料的强度。②层状结构产生的裂纹扩展韧化作用是层

状复合材料塑性提高的重要因素。在退火处理的条件下,非晶在初晶化过程中内部形成了大量均匀分布的纳米级晶粒,这些纳米晶在载荷的作用下有利于多重剪切带的产生,并且可以有效阻止剪切带的快速自由扩展,使得非晶合金在承受载荷的过程中塑性变形更加均匀,塑性能力得到提高。

3 结 论

针对两种 Al 基非晶薄带($\text{Al}_{86}\text{Ni}_8\text{Y}_6$ 和 $\text{Al}_{85}\text{Ni}_5\text{Y}_8\text{Co}_2$),综合退火和高压双重作用,通过累积叠轧工艺将其与铝合金材料形成层状复合材料,有利于薄带材料强度和韧性的提高。具体结论如下:

1)累积叠轧工艺前:首先根据 DSC 及 XRD 确定非晶材料的退火温度及时间。 $\text{Al}_{86}\text{Ni}_8\text{Y}_6$ 非晶薄带在 575 K 退火、 $\text{Al}_{85}\text{Ni}_5\text{Y}_8\text{Co}_2$ 非晶薄带在 595 K 退火,退火时间分别控制在 45,60 min 以内可以得到非晶/纳米晶复合材料。

2)累积叠轧工艺后:对轧制后的层状复合材料进行力学拉伸试验及硬度测试。Al/非晶纳米晶/Al 层状复合材料的硬度、强度及塑性相比于 Al/Al 层状复合材料均有较大提高,其中 Al/ $\text{Al}_{85}\text{Ni}_5\text{Y}_8\text{Co}_2$ /Al 非晶纳米晶层状复合材料抗拉强度由 145 MPa 提高到 226 MPa,塑性也从 6.5% 提高到 17.4%。主要原因是在相同的制备条件下, $\text{Al}_{85}\text{Ni}_5\text{Y}_8\text{Co}_2$ 非晶更容易获得细小均匀的纳米晶,与铝合金复合后提高了材料的强韧性。

参考文献:

- [1]TAN Z, WANG L, XUE Y F, et al. High-entropy alloy particle reinforced Al-based amorphous alloy composite with ultrahigh strength prepared by spark plasma sintering[J]. Materials & Design, 2016, 109: 219-226.
- [2]梁秀兵, 范建文, 张志彬, 等. 铝基非晶纳米晶复合涂层显微组织与腐蚀性能研究[J]. 金属学报, 2018, 54(8): 1193-1203.
- [3]SALEHI M, SHABESTARI S G, BOUTORABI S M A. Nanostructure and mechanical properties of bulk $\text{Al}_{86}\text{Ni}_6\text{Y}_6\text{Ce}_2$ alloy produced by hot consolidation of amorphous melt-spun flakes[J]. Metallurgical and Materials Transactions A, 2014, 45(13): 6344-6351.
- [4]王玉, 张文礼, 孙冬柏, 等. 非晶纳米晶复合材料的性能与制备[J]. 材料科学与工程学报, 2006, 24(2): 292-296.
- [5]SCULLY J R, GEBERT A, PAYER J H. Corrosion and related mechanical properties of bulk metallic glasses[J]. Journal of Materials Research, 2007, 22(2): 302-313.
- [6]吕爽, 王快社, 张兵, 等. 累积叠轧 1060 纯铝组织与性能的研究[J]. 材料研究与应用, 2007, 1(3): 187-190.
- [7]王庆娟, 刘长瑞, 杜忠泽, 等. 累积叠轧 1060 工业纯铝的微观组织和性能[J]. 轻合金加工技术, 2007, 35(8): 32-35, 57.
- [8]FENG S W, GUO Q, LI Z, et al. Strengthening and toughening mechanisms in graphene-Al nanolaminated composite micro-pillars[J]. Acta Materialia, 2017, 125: 98-108.
- [9]韩银娜, 张小军, 李龙, 等. 铝合金/不锈钢层状复合材料界面化合物生长行为[J]. 材料热处理学报, 2018, 39(3): 1-7.
- [10]QIN L, FAN M Y, GUO X Z, et al. Plastic deformation behaviors of Ti-Al laminated composite fabricated by vacuum hot-pressing[J]. Vacuum, 2018, 155: 96-107.
- [11]王熊. Ti-Al 层状金属复合材料的增强增韧机理与力学行为研究[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2015.
- [12]WANG T, LI S, REN Z K, et al. A novel approach for preparing Cu/Al laminated composite based on corrugated roll [J]. Materials Letters, 2019, 234(1): 79-82.
- [13]田娜. 铝基非晶态合金的玻璃转化及初晶化行为[D]. 西安: 西安理工大学, 2007.
- [14]WANG Z Z, ZU F Q, ZHANG Z, et al. Dependence of GFA and crystallization behaviors of $\text{Al}_{86}\text{Ni}_9\text{La}_5$ metallic glass on its original liquid state[J]. Advanced Engineering Materials, 2012, 14(10): 898-901.

(责任编辑:李艳)