

表面纳米化钛合金与不锈钢扩散连接

韩 靖, 盛光敏, 周小玲, 孙建春

(重庆大学, 重庆 400030)

摘 要: 采用高能喷丸 (HESP) 对 TA17 钛合金和 0Cr18Ni9Ti 不锈钢棒材的连接面进行了表面自纳米化 (SSNC) 处理, 在连接面获得了一定厚度的纳米晶组织层。将钛合金和不锈钢的纳米化处理连接面对接, 在热模拟试验机上进行恒温恒压和脉冲加压扩散连接。测试接头拉伸强度, 并对断口和接头显微组织进行分析。结果表明, 采用脉冲加压扩散连接, 接头界面处生成的金属间化合物层较薄, 接头抗拉强度高达 384.0 MPa; 断口呈脆性断裂特征。

关键词: 表面自纳米化; 恒温恒压; 脉冲加压; 扩散连接

中图分类号: TG453.9

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2010)01-0042-04

由于钛合金与不锈钢在性能上各具优势, 在高温环境中常常将它们结合起来使用, 以充分发挥两种金属材料在性能和经济上的互补优势。但是, 钛合金与不锈钢在物理化学性能上存在极大的差异, 连接温度过高或连接时间过长都会在接头处生成过厚的脆性金属间化合物、界面处晶粒长大、接头变形过大等缺点, 这都使连接接头性能得不到有效提高。脉冲加压扩散焊技术是乌克兰巴顿技术研究所科研人员提出的一种新型扩散焊方法^[1], 有研究^[2,3]表明, 该连接方法有助于提高钛合金与不锈钢扩散连接接头的性能。

纳米晶体材料由于晶粒细小, 具有高体积分数的晶界, 能够为原子扩散提供大量通道, 明显提高原子的扩散系数^[4,5]。在纳米材料的制备方面, 已有多种制备方法, 其中, 中国科学院金属研究所卢柯提出的金属块体材料表面自纳米化 (SNNC) 法^[6]极具工业应用前景, 利用该方法已经在多种块体金属材料表面获得了纳米晶组织^[7,8], 并且纳米晶组织中存在位错、空位、亚晶界等非平衡缺陷及过剩能量, 有利于原子的化学反应^[9,10]。为此, 该制备方法已被运用于多种金属材料的化学热处理中^[11-16], 明显提高了原子的扩散系数, 降低了热处理温度和缩短了热处理时间, 为低温高效化学热处理开辟了新的途径。

本研究对钛合金与不锈钢进行表面自纳米化处理, 分别运用恒温恒压和脉冲加压扩散连接将其连接在一起, 对接头的剖面组织和断口进行分析。

1 实 验

所用材料为 $\Phi 12 \text{ mm} \times 30 \text{ mm}$ 的 TA17 近 α 钛合金和 0Cr18Ni9Ti 奥氏体不锈钢棒材, 其中钛合金的热处理状态为热轧后 750 °C 下再结晶退火 1 h, 不锈钢为热轧态。

为获得平整的喷丸表面和避免喷丸过程产生显微裂纹, 需将 TA17 近 α 钛合金和 0Cr18Ni9Ti 不锈钢棒材的连接端面用金相砂纸磨平抛光, 然后采用高能喷丸 (HESP) 对棒材的端面进行表面自纳米化 (surface self-nanocrystallization) 处理。高能喷丸所使用的设备为 6050B 型喷丸机, 喷丸用钢丸直径为 1.0 mm, 喷嘴到试样表面的距离为 50 mm, 喷丸工作压力为 0.6 MPa, 喷丸时间 5 min。经喷丸后, 喷丸面粗糙度增加, 需将喷丸表面磨平和抛光, 以满足扩散连接的界面条件。

为对经喷丸处理后试样的表面层组织进行观察, 在喷丸试样的表面层沿纵截面取样, 经磨制、抛光和离子减薄制成透射电子显微镜 (TEM) 薄膜样品, 在 PHILIP-TECNAI20 型透射电子显微镜下观察分析。

扩散连接试验在 Gleeble-1500D 热模拟试验机的真空室中进行, 连接时将钛合金和不锈钢棒材的纳米化表面在压力作用下对接, 随后抽真空, 使真空度达到 $5.0 \times 10^{-2} \text{ Pa}$, 然后采用电阻加热进行扩散连接试验。其中, 恒温恒压的工艺参数为: 连接温度 T 为 850 °C, 升温速度 v_1 和降温速度 v_2 都为 5 °C/s, 连接压力 P 为 8 MPa, 连接时间为 1200 s; 脉冲加压扩散连接的参数为: 连接温度 T 为 850 °C, 升温速度 v_1 和降温速度 v_2 都为 5 °C/s, 脉冲最大压力 P 为 50 MPa,

收稿日期: 2009-01-16

基金项目: 国家自然科学基金 (50675234); 重庆大学研究生科技创新基金 (200801A1B0100269)

作者简介: 韩 靖, 男, 1973 年生, 博士生, 重庆大学材料科学与工程学院, 重庆 400030, E-mail: han.jing02@163.com

最小压力为 8 MPa, 脉冲频率 f 为 0.5 Hz, 脉冲次数 n 为 40 次 (时间为 60 s), 脉冲加压前保温时间为 0 s, 脉冲加压后直接降温到室温, 扩散连接后将接头放入真空炉中在 400 °C 下保温 1 h, 以消除连接应力。

每种连接方法都连接 3 对接头试样, 其中 2 对用于拉伸试验, 一对用于接头纵剖面组织观察, 试样编号见表 1。在 Instron1342 型拉伸试验机上进行拉伸试验, 利用扫描电子显微镜 (SEM) 和能谱仪 (EDS) 对拉伸断口和接头纵剖面的组织及成分进行观察分析。

2 结果及分析

2.1 表面自纳米化处理

经高能喷丸处理 5 min 后, TA17 钛合金表面以下大约 253.52 μm 厚的范围内产生了塑性变形, 变形程度随深度的减小而加剧, 在距表面大约 121.81 μm 厚的范围内产生了剧烈塑性变形, 经透射电子显微镜 (TEM) 观察, 在距表面约 50 μm 厚的范围内形成了 100 nm 以下的纳米晶。图 1a 为钛合金端面以下 50 μm 左右处的透射电子显微照片。由图可见, 晶粒尺寸在 50 nm 左右, 对应的选区电子衍射 (SAED) 环说明纳米晶粒的取向已呈随机性。0Cr18Ni9Ti 不锈钢经高能喷丸处理后形成了大约 600 μm 厚的塑性变形层, 在距表面 184 μm 厚的范围内产生了剧烈塑性变形, 经透射电子显微镜 (TEM) 观察, 在距表面大约 80 μm 深度范围内形成了随机取向的等轴纳米晶, 晶粒尺寸大约 60 nm, 对应的选区电子衍射 (SAED) 环说明纳米晶粒的取向已呈随机取向 (如图 1b 所示)。

2.2 接头抗拉强度

表 1 中列出了接头的抗拉强度和连接时的压缩率。在相同连接工艺条件下, 常规试样恒温恒压扩散连接的最大抗拉强度为 264 MPa, 脉冲加压扩散连接的最大抗拉强度为 321 MPa^[2]。可见, 连接面经表面

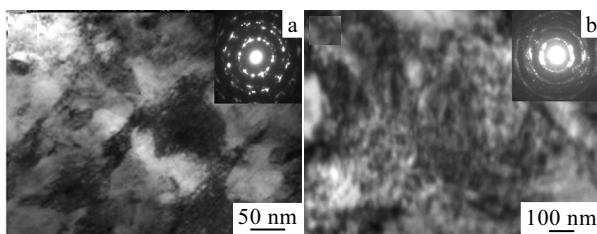


图 1 经高能喷丸处理后形成的纳米组织的 TEM 照片及选区电子衍射环

Fig.1 TEM nanostructures and SAED pattern in the samples after HESP treatment: (a) TA17, 50 μm below the treated surface, and (b) 0Cr18Ni9Ti, 60 μm below the treated surface

表 1 接头的抗拉强度及连接时的压缩率

Table 1 Tensile strength of joints					
Joint	Joint temp., $T/^\circ\text{C}$	Joint time, t/s	Sample No.	Tensile strength, σ_b/MPa	Compressive ratio, $\varepsilon/\%$
CTPBD	850	1200	1	327.0	-4.43
			2	314.0	-4.50
			3	Microstructure examination	-4.38
IPBD		80	4	384.0	-1.1
			5	358.7	-1.3
			6	Microstructure examination	-0.9

Note: CTPBD-constant temperature and pressure;

IPBD-impulse pressure

纳米化处理后, 接头强度大大提高。由表 1 数据还表明, 利用脉冲加压扩散连接获得的接头强度都高于恒温恒压获得的接头强度, 并且脉冲加压扩散连接过程中试样的变形比恒温恒压的小得多。由此可初步看出, 脉冲加压扩散连接比恒温恒压更具有优越性, 表现为连接时间短、效率高、强度高、变形小。

在 高能喷丸表面自纳米化过程中, 在表面纳米组织层产生了剧烈的塑性变形, 引入了大量具有高存储能的晶界、亚晶界、位错等非平衡相或高密度缺陷等^[8,17], 在一定的扩散连接温度下, 这些高体积分数的晶界充当了原子的扩散通道, 加速了原子的扩散, 同时, 表面自纳米化层中的非平衡相具有更高的吉布斯自由能^[18], 使原子的扩散激活能降低, 从而提高了扩散连接过程中原子的扩散系数, 增加了原子的扩散距离, 这有利于提高连接接头的抗拉强度。

2.3 接头显微组织分析

图 2 为两种连接方法下获得的接头的显微组织与元素分布情况。试样剖面经试剂腐蚀后在扫描电子显微镜下呈现出不同特征, 分别用字母 A、B、C、D 代表不同组织特征的不同区域。经分析^[2], A 区为不锈钢基体区, B 区为金属间化合物层, C 区为 β -Ti 固溶体区, D 区为钛合金基体区。在两种接头剖面的 A、C 和 D 区域的组织没有明显的区别, 只是脉冲加压连接接头的晶粒要比恒温恒压的细小。

两种接头组织的主要不同之处在于 B 区金属间化合物的形态和厚度不同。从图 2a 和 2c 可以看出, 恒温恒压扩散连接接头的金属间化合物层较厚, 大约 1 μm , 化合物层与钛合金和不锈钢两种基体之间的界面平直, 在对应的元素线能谱图中, 接头界面处出现了 Ti、Fe、Cr 元素的峰值 (图 2b), 这说明大量的 Ti、Fe、Cr 原子积聚在界面处。然而, 在脉冲加压扩散连

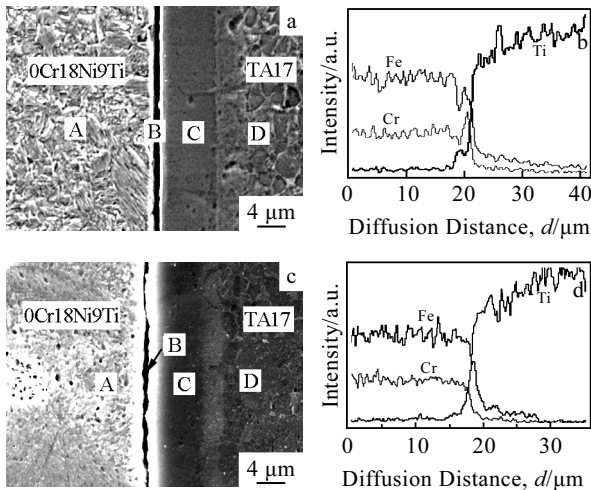


图 2 接头剖面 SEM 照片和元素线分布

Fig.2 SEM images (a, c) and EDS spectra (b, d) for the longitudinal section of joints: (a, b) CTPBD joint and (c, d) IPBD joint

接头中，化合物层很薄且分布不连续，其与不锈钢和钛合金基体的边界呈锯齿状，在某些部分两基体直接接触，对应的能谱线（图 2d）表明，在接头界面处不存在 Ti、Fe、Cr 元素的峰值，即不存在 Ti、Fe、Cr 原子的积聚。上述现象表明，在恒温恒压连接接头界面处形成了连续的较厚的金属间化合物层，而在脉冲加压连接接头界面处的金属间化合物则比较薄且不连续。由于脆性金属间化合物的形成长对接头的性能不利^[19-21]，因此，由于两种接头处的金属间化合物的形态和分布的不同从而影响其接头强度。

脉冲加压连接接头界面处的金属间化合物呈现不连续且较薄，这主要是在脉冲加压扩散连接过程中，由于存在周期性的瞬间高压冲击力，薄层金属间化合物被击碎，抑制了金属间化合物的连续长大，增加钛合金和不锈钢基体的接触面积，从而出现了金属间化合物与基体界面的锯齿形状。另一方面在脉冲加压过程中产生了大量的瞬时位错，为原子的扩散提供了通道，也加速了扩散原子的扩散速度^[2]，使原子向基体中的扩散量增加，减弱或减小了金属间化合物的形成和厚度。

2.4 接头断口分析

为了进一步分析两种连接接头在抗拉强度上的差别，对两种连接接头的拉伸断口进行分析。图 3 为接头拉伸断口不锈钢侧的 SEM 形貌。其中图 3a 为恒温恒压接头断口，图 3b 为脉冲加压接头断口。从图中可以看出，断口都为灰黑色的基体（金属间化合物^[2]）上分布着白色块状物（为 β -Ti^[2]），块状物棱角锋利，呈撕裂状或河流花样状，这是典型的脆性解理断裂的特征。

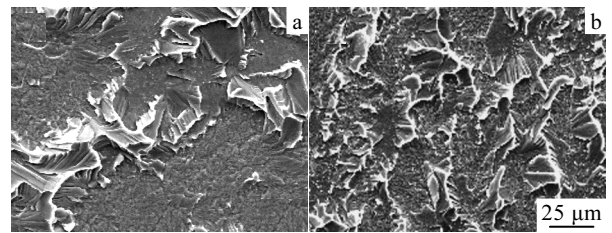


图 3 接头拉伸断口（不锈钢侧）SEM 照片

Fig.3 SEM images for the fracture of joints on the 0Cr18Ni9Ti side: (a) CTPBD joint and (b) IPBD joint

但是，不同连接方法下接头断口上的块状物密度分布相差很大。在恒温恒压接头断口上，块状 β -Ti 和黑色金属间化合物相互交错呈带状分布，且块状 β -Ti 分布比较稀疏（图 3a），说明连接界面处生成了较多的金属间化合物，这也是上述接头剖面能谱图出现 Fe、Ti、Cr 元素峰值的原因。然而，在脉冲加压接头的断口上，块状 β -Ti 密集分布在断口上，金属间化合物比例很小（图 3b），这也说明在脉冲加压扩散连接过程中界面处生成了少量的金属间化合物。

由于界面处的金属间化合物脆性大、强度低，而块状的 β -Ti 固溶体承受主要的拉应力^[3]，所以，从断口上金属间化合物和块状 β -Ti 固溶体的分布就能很好的解释两种接头在强度上的差别。

3 结 论

1) 采用高能喷丸对 TA17 钛合金和 0Cr18Ni9Ti 不锈钢进行表面自纳米化处理后，在 TA17 钛合金端面形成了 50 μm 左右厚的等轴纳米晶组织，在 0Cr18Ni9Ti 不锈钢端面形成了 80 μm 左右厚的等轴纳米晶组织。

2) 对扩散连接偶进行表面自纳米化处理能显著提高连接接头的抗拉强度，其中恒温恒压连接接头的最大抗拉强度为 327.0 MPa，脉冲加压扩散连接接头的抗拉强度为 384.0 MPa。

3) 两种连接接头的拉伸断口都为脆性断口。恒温恒压扩散连接过程中，在接头界面处生成了较厚的金属间化合物层，影响了连接接头的性能；而在脉冲加压扩散连接过程中，在界面形成少量的金属间化合物，大大提高了接头强度。

4) 钛合金与不锈钢的脉冲加压扩散连接比恒温恒压扩散连接效率高、变形小、接头性能好。

参考文献 References

[1] Zhu Ping(朱平). *Guidance and Fuze*(制导与引信)[J],

- 1999(4): 49
- [2] Qin Bin(秦 斌). *Technique and Theory Research on Diffusion Bonding of Titanium Alloy to Stainless Steel*(钛合金与不锈钢扩散焊接工艺及理论研究)[D]. Chongqing: Chongqing University, 2006: 61
- [3] Yuan Xinjian(袁新建), Sheng Guangmin(盛光敏), Qin Bin(秦斌) et al. *Journal of Aeronautical Materials*(航空材料学报)[J], 2006, 26(4): 51
- [4] Gleiter H. *Progress in Materials Science*[J], 1989, 33(4): 223
- [5] Lu K. *Materials Science & Engineering R: Reports*[J], 1996, 16(4): 161
- [6] Lu Ke(卢 柯), Lü Jian(吕 坚). *Chinese Patent*, 01122980.2[P], 2001
- [7] Lu K, Lu J. *Materials Science and Engineering A*[J], 2004, 375-377(7): 38
- [8] Nairong Tao, Hongwang Zhang, Jian Lu et al. *Materials Transactions*[J], 2003, 44(10): 1919
- [9] Schumacher S, Birringer, R, Strauss R et al. *Acta Metal* [J], 1989, 37(9): 2485.
- [10] Lu L, Sui M L, Lu K. *Science*[J], 2000, 287(2): 1463
- [11] Tong W P, Tao N R, Wang Z B et al. *Science*[J], 2003, 299(1): 686
- [12] Wang Z B, Tao N R, Tong W P et al. *Acta Materialia*[J], 2003, 51(8): 4319
- [13] Wang Z B, Lu J, Lu K. *Acta Materialia*[J], 2005, 53(4): 2081
- [14] Tong W P, Tao N R, Wang Z B et al. *Journal of the Graduate School of the Chinese Academy of Science*[J], 2005, 22(2): 230
- [15] Zhang H W, Wang L, Hei Z K et al. *Z Metall*[J], 2003, 94(5): 1143
- [16] Bei D H, Gu J F, Pan J H et al. *Journal of Materials Science & Technology*[J], 2002, 18(6): 566
- [17] Zhu K Y, Vassel A, Brisset F et al. *Acta Materialia*[J], 2004, 52(14): 4101
- [18] Wang Z B, Tao N R, Tong W P et al. *Acta Materialia*[J], 2003, 51(4): 4319
- [19] Kazakov N F. *Diffusion Bonding of Materials*[M]. Moscow: Mir Publishers, Pergamon Press, 1985: 26
- [20] Zhou Bo(周 波), Sheng Guangmin(盛光敏), Huang Jiawei(黄家伟) et al. *Welding Technology*(焊接技术)[J], 2004, 33(1): 15
- [21] He Peng, Zhang Jiu hai, Zhou Ronglin et al. *Materials Characterization*[J], 1999, 43(5): 287

Diffusion Bonding of Titanium Alloy and Stainless Steel with Surface Nanocrystallization

Han Jing, Sheng Guangmin, Zhou Xiaoling, Sun Jianchun
(Chongqing University, Chongqing 400030, China)

Abstract: Surface self-nanocrystallization (SSNC) by means of high energy shot peening(HESP) was applied to produce nanostructures on the bonding surface of TA17 titanium alloy and 0Cr18Ni9Ti stainless steel bars and nanocrystalline structure layers with certain thickness were formed on the bonding surface of samples. TA17 and 0Cr18Ni9Ti bars were bonded by constant temperature and pressure diffusion bonding (CTPDB) and impact pressure diffusion bonding (IPDB) respectively on Gleeble-1500D tester. Tensile strength was tested, and the joint fractures and microstructures were analyzed. The results show that thinner intermetallic compound layer is formed on the interface of joints by IPDB which has a tensile strength of 384.0 MPa. Fracture of IPDB joints present brittle characteristic.

Key words: surface self-nanocrystallization; constant temperature and pressure; impact pressure; diffusion bonding

Corresponding author: Han Jing, Candidate for Ph. D., College of Material and Engineering, Chongqing University, Chongqing 400030, P. R. China, E-mail: han.jing02@163.com