

高压凝固 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al-10Si}$ 复合材料组织热稳定性及力学性能研究

朱冬冬^{1,2}, 陈志鹏^{1,2}, 董多¹, 王刚², 王晓红¹, 张艳衡^{1,2}

(1. 衢州学院 浙江省空气动力装备技术重点实验室, 浙江 衢州 324000)

(2. 安徽工程大学 机械与汽车工程学院, 安徽 芜湖 241000)

摘要: 采用高压凝固的方法在不同压力下(3, 4, 5 GPa) 分别制备了 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al-10Si}$ 复合材料, 并分别在 160 °C 保温 2, 4, 6 h 的条件下研究了高压凝固 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al-10Si}$ 复合材料的组织热稳定性以及力学性能转变规律。结果表明: 热处理导致高压凝固 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al-10Si}$ 复合材料 α 相固溶的 Si 在热激活的作用下脱溶析出, 聚集长大形成细小颗粒弥散分布于 α 相内, 形成沉淀强化; 160 °C 热处理后 α 相固溶的 Si 析出, 过饱和程度下降, 材料性能逐渐趋于稳定, 在沉淀强化的共同作用下, $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al-10Si}$ 复合材料抗压强度和压缩率较热处理前均有所上升。而 160 °C 保温 4 h 的条件下, 材料的综合力学性能最好。尤其在 5 GPa 压力下凝固的 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al-10Si}$ 复合材料, 抗压强度可达到 716 MPa。

关键词: 高压凝固; 热处理; 组织形貌; 力学性能

中图分类号: TB333

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2020)09-3260-05

$\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al}$ 复合材料因耐腐蚀、比强度高、加工性能优异等特点, 可广泛应用于航空、航天、汽车、机械制造等行业^[1-3]。然而, 常规凝固条件下, Al 对于 Al_2O_3 的润湿性差^[4], 导致了常压下 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al}$ 复合材料制备工艺复杂, 且 Al_2O_3 易偏聚, 使制备的 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al}$ 复合材料性能不理想。近年来, 研究者们发现高温或对 Al_2O_3 进行金属化预处理可提高 Al 对于 Al_2O_3 的润湿性^[5-7]。但是高温处理会导致基体晶粒长大, 恶化材料性能, 金属化预处理工艺又较为复杂且成本较高^[8]。采用原位自生反应制备 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al}$ 基复合材料虽然可以克服 Al_2O_3 易偏聚的缺点, 但是反应过程中往往针状或者条状伴生有害化合物的形成, 大幅降低复合材料的强度。因此寻求一种制备工艺简单、 Al_2O_3 分散均匀的复合材料制备新方法显得尤为重要。随着高压技术的发展, 该技术为该材料的制备和研究提供了新的方向。研究发现高压可以提高 Al 对 Al_2O_3 的润湿性^[9], 导致基体与强化相的界面结合性提高。且极易导致过饱和固溶体形成^[10-12], 因此, 有利于制备高性能的 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al-Si}$ 复合材料。

通过前期制备并研究高压凝固 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al-10Si}$ 复合材料组织及力学性能发现, 凝固过程中的高压可以抑制 Al_2O_3 的偏聚行为, 导致 Al_2O_3 颗粒弥散分布于 α 相晶界处, 提高材料的强度。且由于压力增加到 MPa

级, 元素扩散受到抑制, 对凝固中的溶质再分配过程产生重大影响^[13-15], 使 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al-10Si}$ 复合材料 α 相中的 Si 的固溶度增加, 形成固溶强化。前期本课题组的研究表明经高压凝固后 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al-10Si}$ 复合材料的固溶度增加, 显微硬度增高了约 133%, 压缩强度由常压时的 126 MPa 提高到 5 GPa 时的 702 MPa。

由于高压制备的过饱和固溶体材料处于亚稳态结构, 因而研究高压凝固后 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al-10Si}$ 复合材料的组织热稳定性和力学性能演变规律, 对于制备高性能的 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al-Si}$ 复合材料有着重要意义, 同时为研究高压凝固规律提供大量实验支持, 为改善合金的力学性能提供了相关的理论基础。

1 实验

将纯度为 99.9% 的铝粉 ($\leq 80 \mu\text{m}$)、纯度为 99.9% 硅粉 ($\leq 80 \mu\text{m}$) 和 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 颗粒 ($\leq 20 \mu\text{m}$) 在行星球磨机内混合为名义为 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al-10Si}$ 复合材料粉末 (Si 含量为 10%, 质量分数; Al_2O_3 含量为 10 vol%), 并压制成 $\Phi 9.6 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$ 的柱状试样放入叶蜡石模具中。叶蜡石模具在高压环境下具有一定的流动性, 最终使其内部形成高压封闭型腔。通过 HTDS-032F 型六面顶压机提供凝固压力 (3, 4, 5 GPa), 通过加热锤加热试样, 升温至 1000 °C 保温保压 30 min 后,

收稿日期: 2020-02-07

基金项目: 浙江省自然科学基金 (LY18E010003, LQ20E010003); 国家自然科学基金 (51801112, 51501100, 51704001)

作者简介: 朱冬冬, 男, 1986 年生, 博士, 副教授, 衢州学院机械工程学院, 浙江 衢州 324000, 电话: 0570-8026634, E-mail: zhudd8@163.com

试样被通有循环水的加热锤冷却至室温，卸压后得到高压凝固试样。热处理温度为 160 °C，保温时间分别为 2, 4, 6 h。试样经砂纸打磨至 2000#后抛光、腐蚀制得金相试样，腐蚀液为 0.5 vol%的 HF。

分别将热处理前后的高压凝固试样切割成 2 mm×2 mm×4 mm 的柱状用于压缩实验，压缩速率为 0.5 mm/min；试样物相分析采用布鲁克 D8 ADVANCE 型 X 射线衍射仪 (XRD)；采用日立 SU8010 扫描电子显微镜 (SEM) 观察热处理对于高压凝固 Al₂O₃/Al-10Si 复合材料的显微组织及断口形貌的影响。

2 结果与分析

2.1 热处理对不同压力下制备复合材料 Al₂O₃/Al-10Si 的组织影响规律

图 1 所示为不同压力下凝固的 Al₂O₃/Al-10Si 复合材料热处理前后的 XRD 图谱。由图可以看出，高压凝固 Al₂O₃/Al-10Si 复合材料由 α 相、β 相和 Al₂O₃ 强化相组成。经过不同工艺热处理后，不同压力下凝固的材料均出现新的 β 相衍射峰，即经热处理后，高压凝固 Al₂O₃/Al-10Si 复合材料有明显的 β 相析出。

图 2 为 3 GPa 压力下凝固的 Al₂O₃/Al-10Si 复合材料组织形貌。从图中可以看出，3 GPa 凝固 Al₂O₃/Al-10Si 复合材料基体组织为 α 相，Al₂O₃ 颗粒

分布于 α 相界面处，在 α 相内并没有明显的颗粒状的 β 相析出。经 160 °C 保温 2 h 热处理后(图 2b)，Al₂O₃/Al-10Si 复合材料 α 相晶体内部逐渐开始形成细小颗粒状的 β 相。当保温时间增加至 4 h 时，β 相已在 α 相晶粒内部均匀分布，如图 2c 所示。图 2d 表明，保温时间增加至 6 h 时 Al₂O₃/Al-10Si 复合材料的部分 β 相形貌逐渐不规则，颗粒尺寸最大可达 1 μm 左右。

图 3 为 4 GPa 压力下凝固的 Al₂O₃/Al-10Si 复合材料组织形貌。由图 3a 中可以看出，未经热处理 Al₂O₃/Al-10Si 复合材料 α 相的边界处就已经开始析出极少数的 β 相，粒径约为 0.1 μm。图 3b 为 160 °C 保温 2 h 后 Al₂O₃/Al-10Si 复合材料组织，可以看出 β 相数量较未经热处理的 Al₂O₃/Al-10Si 复合材料明显增加。随着保温时间增加至 4 h，析出 β 相更加的均匀分布于 α 相内。当保温时间继续增加到 6 h，β 相晶粒尺寸增大。如图 3d 所示，经统计 β 相粒径为 0.4~0.6 μm。

图 4 为 5 GPa 压力下凝固的 Al₂O₃/Al-10Si 复合材料热处理前后的组织形貌。未经热处理时，5 GPa 压力下凝固的 Al₂O₃/Al-10Si 复合材料 α 相中也弥散分布着少量的 β 相。经 160 °C 保温 2 h 后，α 相晶界处率先出现大量的 β 相，粒径约为 0.1 μm，如图 4b 所示。图 4c 和图 4d 分别为保温时间延长 4 和 6 h 的组织形貌，可以看出经过热处理，Al₂O₃/Al-10Si 复合材料 α 相内析

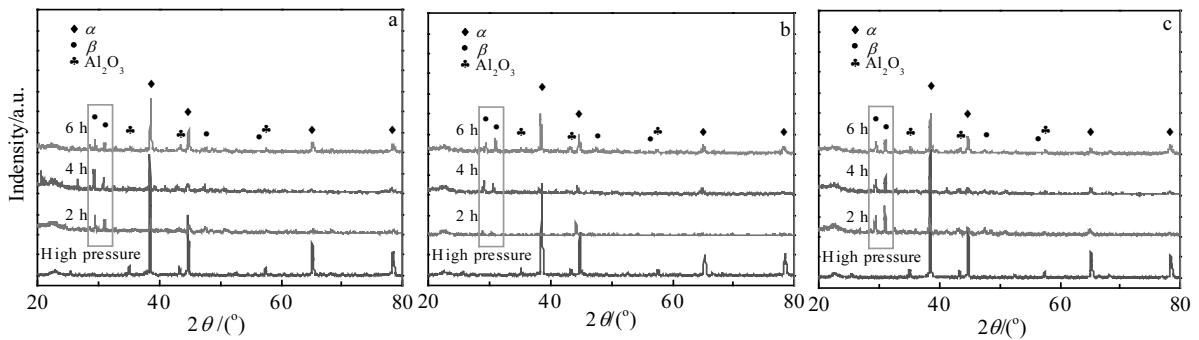


图 1 高压凝固 Al₂O₃/Al-10Si 复合材料 XRD 图谱

Fig.1 XRD patterns of high pressure solidified Al₂O₃/Al-10Si composites: (a) 3 GPa, (b) 4 GPa, and (c) 5 GPa

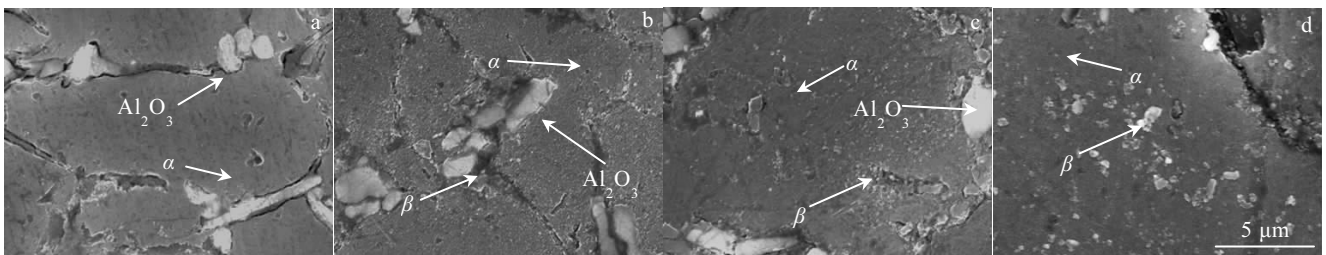


图 2 3 GPa 压力凝固 Al₂O₃/Al-10Si 复合材料热处理组织形貌

Fig.2 Microstructures of 3 GPa pressure solidified Al₂O₃/Al-10Si composites: (a) 0 h, (b) 2 h, (c) 4 h, and (d) 6 h

出的 β 相的析出规律与 3 GPa 和 4 GPa 相同, 热处理 6 h 后, 材料 β 相晶粒尺寸增大, 最大可达 1 μm 左右。

对热处理前后不同压力下高压凝固 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al-10Si}$ 复合材料中 α 相进行 EDS 能谱分析结果如表 1 所示。经 ZAF 修正后, 各元素的误差均小于 1%。可以看出, 随着凝固压力上升, $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al-10Si}$ 复合材料 α 相中的 Si 的固溶度也逐渐增加, 凝固压力为 5 GPa 时达到了 6.33%。相同的凝固压力下, 热处理前后 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al-10Si}$ 复合材料 α 相中 Si 的固溶度, 随着保温时间增加, 呈降低趋势, 也验证了 α 相中固溶的 Si 原子随热处理时间的延长而逐渐弥散析出这一现象。

2.2 热处理对高压凝固 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al-10Si}$ 复合材料力学性能的影响

对不同压力条件下凝固的 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al-10Si}$ 复合材料热处理前后的压缩性能进行分析, 所获得的压缩应力-应变曲线如图 5 所示。可以看出随着凝固压力的增加, 材料的力学性能逐渐增加。分析不同保温时间对高压凝固 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al-10Si}$ 复合材料力学性能的影响发现, 随着保温时间的增加, 材料的抗压强度呈现出先增加后减小的趋势。凝固压力为 5 GPa, 热处理 4 h 时抗压强度最高, 达到 716 MPa。压力为 3 和 4 GPa 的 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al-10Si}$ 复合材料, 热处理 4 h 时的抗压强度分别为 532 和 549 MPa。

图 6 为 5 GPa 压力下凝固的 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al-10Si}$ 复合材料热处理前后的断口形貌。可以看出, 5 GPa 压力下

凝固的 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al-10Si}$ 复合材料压缩断裂介于解理断裂与韧性断裂之间, 整体偏向解理断裂, 但是存在少量较浅的韧窝, 断口处无明显大颗粒状的 Al_2O_3 , 断裂行为基本发生于基体, 说明 Al_2O_3 与 Al 的界面结合性良好。界面结合性良好不仅有利于材料力学性能的提升, 且由于 Al_2O_3 的热膨胀系数低, 在材料受热时弥散分布于 α 相晶界处的 Al_2O_3 颗粒还可以抑制基体受热膨胀, 从而提高材料的热稳定性。

由前面的分析可以看出, 高压凝固时 Si 原子的扩散受到抑制, 在高温时具有良好流动性的 Si 原子在高压凝固后会更多的固溶进 Al 基体中, 并且 Si 富集区均匀分布在集体中, 并为后续的时效处理析出 Si 相提供形核质点。在 160 $^\circ\text{C}$ 的温度经不同时间热处理后, Si 的富集区发生分解, 转变形成稳定的 Si 相。Celotto^[16]的研究表明, 过饱和度越大, 则析出驱动力越大, 析出相越容易析出, 因此随着压力的增加试样热处理后会形成更多的 Si 相颗粒。同时, 作为一种非稳态结构, 过饱和固溶体中的 Si 元素析出所需要的激活能较低, 有研究表明^[17,18], 凝固压力高还可以导致材料结构中存在大量缺陷, 如位错和空位, 有利于 β 相形核。因此相比常压凝固, 高压凝固 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al-10Si}$ 复合材料 α 相内会缓慢析出细小颗粒状的 β 相, 而相应的热处理后 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al-10Si}$ 复合材料 α 相中的 Si 含量增加, 易形成沉淀强化, 因而位错滑移受到抑制, 有利于提高材料的力学性能。

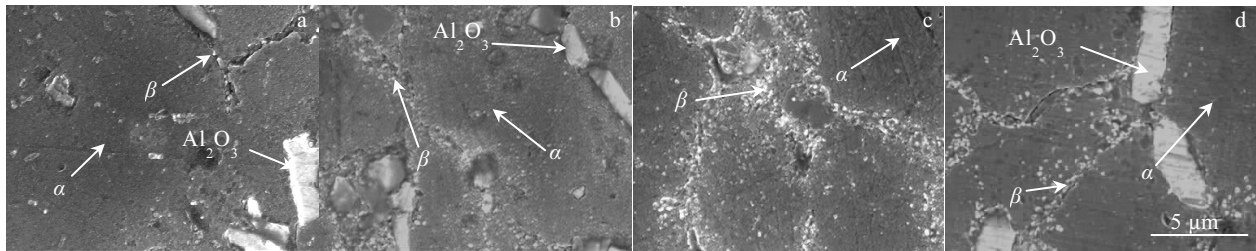


图 3 4 GPa 压力凝固 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al-10Si}$ 复合材料热处理组织形貌

Fig.3 Microstructures of 4 GPa pressure solidified $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al-10Si}$ composites: (a) 0 h, (b) 2 h, (c) 4 h, and (d) 6 h

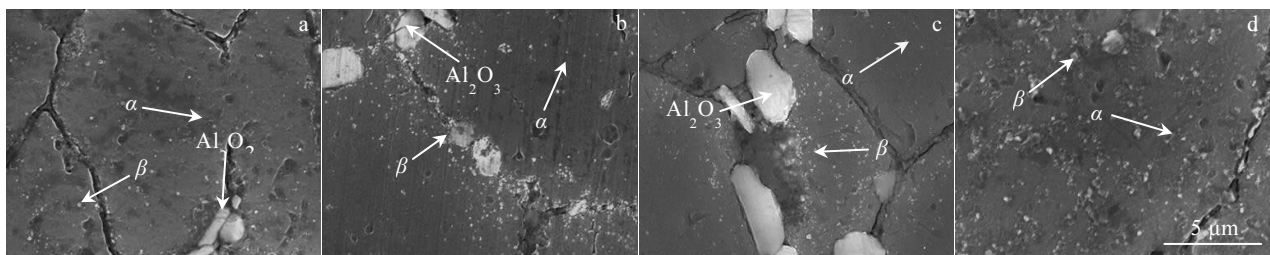


图 4 5 GPa 压力凝固 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al-10Si}$ 复合材料热处理组织形貌

Fig.4 Microstructures of 5 GPa pressure solidified $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al-10Si}$ composites: (a) 0 h, (b) 2 h, (c) 4 h, and (d) 6 h

表 1 高压凝固 Al₂O₃/Al-10Si 复合材料 α 相 EDS 能谱分析

Table 1 EDS analysis of α-phase elements of high pressure solidified Al₂O₃/Al-10Si composites

| Pressure/GPa | Soaking time/h | Elements content, ω/% | |
|--------------|----------------|-----------------------|------|
| | | Al | Si |
| 3 | 0 | 94.77 | 5.23 |
| | 2 | 95.90 | 4.10 |
| | 4 | 96.42 | 3.58 |
| | 6 | 97.14 | 2.96 |
| 4 | 0 | 94.17 | 5.83 |
| | 2 | 95.34 | 4.66 |
| | 4 | 96.21 | 3.79 |
| | 6 | 96.92 | 3.08 |
| 5 | 0 | 93.67 | 6.33 |
| | 2 | 94.24 | 5.76 |
| | 4 | 94.77 | 5.23 |
| | 6 | 95.32 | 4.68 |

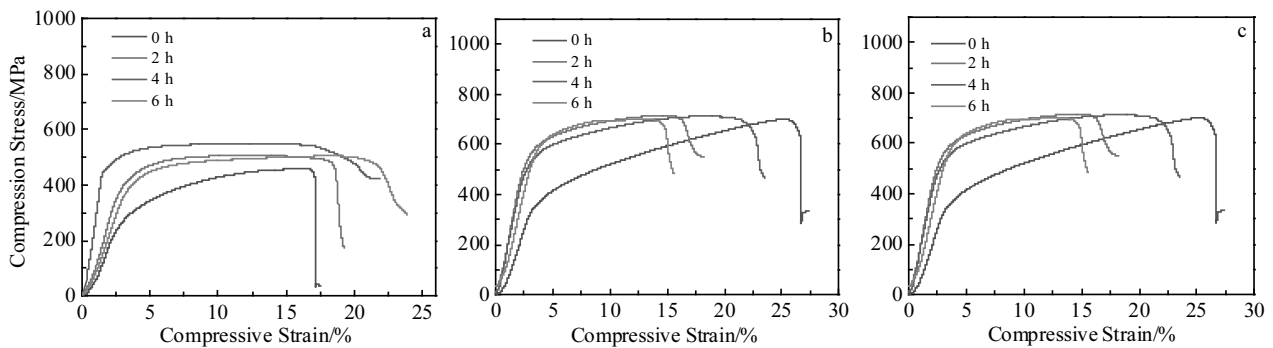


图 5 热处理后高压凝固 Al₂O₃/Al-10Si 复合材料压缩应力-应变曲线

Fig.5 Compressive stress-strain curves of high pressure solidified Al₂O₃/Al-10Si composites before and after heat treatment: (a) 3 GPa, (b) 4 GPa, and (c) 5 GPa

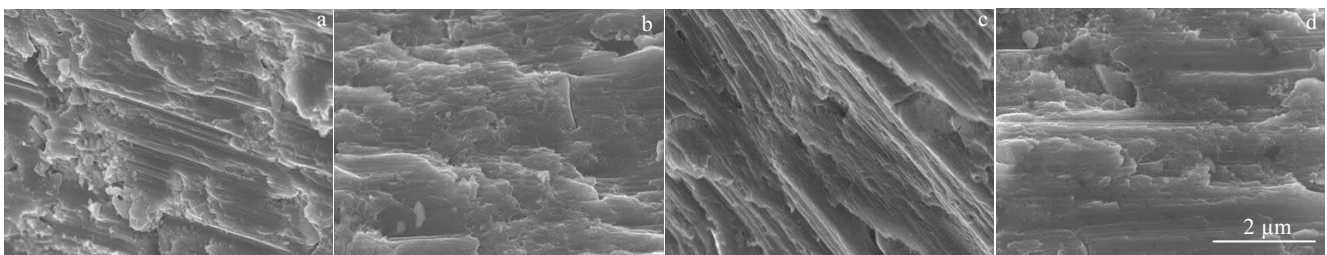


图 6 5 GPa 压力凝固 Al₂O₃/Al-10Si 复合材料断口形貌

Fig.6 Fracture morphologies of 5 GPa pressure solidified Al₂O₃/Al-10Si composites: (a) 0 h, (b) 2 h, (c) 4 h, and (d) 6 h

同常规凝固相比, 高压凝固 Al₂O₃/Al-10Si 复合材料的力学性能有了大幅提高^[19], 但是由于高压凝固后材料处于亚稳状态, 在热处理后更易于向稳定态转变, 因此研究高压凝固 Al₂O₃/Al-10Si 复合材料性能的热稳定性有着重要意义。高压凝固 Al₂O₃/Al-10Si 复合材料, 经热处理后的材料受固溶强化和沉淀强化两种强化机制共同影响。随着保温时间的增加, β 相析出量逐渐增多, 抗压缩强度有所提高。但是保温时间超过 4 h 后, β 相进一步粗化, 导致 α 相中的 Si 含量减小,

固溶强化效果减弱, 导致 Al₂O₃/Al-10Si 复合材料的力学性能随保温时间的增加略有降低。高压凝固 Al₂O₃/Al-10Si 复合材料在 160 °C 保温 6 h 后其抗压强度仍有 701 MPa, 即高压凝固 Al₂O₃/Al-10Si 复合材料经热处理后其力学性能仍能维持较高的状态。

3 结论

1) 不同压力下凝固的 Al₂O₃/Al-10Si 复合材料经热处理后, α 相基体中的 Si 元素固溶度逐渐降低, 形成

细小颗粒状的 β 相弥散分布于 α 相内部, 随着保温时间的增加 β 相颗粒逐渐粗化。

2) 在 160 °C 保温不同时间后, 在固溶强化和析出强化的共同作用下, 材料的抗压强度呈现出增加后减小的趋势。5 GPa 压力下凝固的试样经 160 °C 保温 4 h 时, 抗压强度达到最大值, 约 716 MPa。高压凝固试样经热处理后均能保持着较好的力学性能, 进一步延长保温时间至 6 h 后, 力学性能略有降低。

参考文献 References

- [1] Meng Mingai(孟明艾), Chen Gang(陈刚), Zhao Yutao(赵玉涛) et al. *Hot Working Technology*(热加工工艺)[J], 2019, 48(14): 68
- [2] Lu J, Song Y L, Hua L et al. *Journal of Alloys and Compounds*[J], 2018, 787(1): 856
- [3] Joel J, Anthony X M. *Materials Today: Proceedings*[J], 2018, 5(5): 13 556
- [4] Xu H, Zhang G Z, Cui W et al. *International Journal of Minerals Metallurgy and Materials*[J], 2018, 25(3): 375
- [5] Shen P, Zhang L F, Fu J X et al. *Ceramics International*[J], 2019, 45(9): 11 287
- [6] Liu Y, Ning X S. *Computational Materials Science*[J], 2014, 85(1): 193
- [7] Yang Shaofeng(杨少锋), Yan Binbin(晏彬彬), Wu Yang(吴阳) et al. *Journal of the Chinese Ceramic Society*(硅酸盐学报)[J], 2012, 40(11): 1647
- [8] Sohi M H, Hojjatzadeh S M H, Moosavifar S S et al. *Applied Surface Science*[J], 2014, 313(15): 78
- [9] Sarina B, Tang K, Kvithyld A et al. *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*[J], 2012, 22(8): 1930
- [10] Zhu Dongdong(朱冬冬), Dong Duo(董多), He Qing(贺庆) et al. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2017, 46(S1): 217
- [11] Zhang Bing(张冰), Zhao Yuhong(赵宇宏), Wang Hong(王鸿) et al. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2019, 48(9): 2835
- [12] Xu Chang(徐畅), Huang Duo(黄铎), Lin Xiaopin(林小娉) et al. *China Foundry*(铸造)[J], 2019, 68(8): 860
- [13] Wang Hongwei(王宏伟), Zhu Dongdong(朱冬冬), Zou Chunming(邹骋鸣) et al. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2012, 41(1): 42
- [14] Liu M W, Fu H, Xu C et al. *Materials Science and Engineering A*[J], 2018, 712: 757
- [15] Dong Yun(董允), Lin Xiaopin(林小娉), Xu Rui(徐瑞) et al. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2014, 43(5): 1117
- [16] Celotto S, Bastow T. *Acta Materialia*[J], 2001, 49(1): 41
- [17] Ma P, Zou C M, Wang H W et al. *Journal of Alloys and Compounds*[J], 2014, 586: 639
- [18] Zhu Chunlei(朱春雷), Zhang Xiwen(张熹雯), Li Sheng(李胜) et al. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2014, 43(9): 2124
- [19] Liu Xuan(刘璇), Li Ruyan(李如燕), Zhou Chunsheng(周春生) et al. *China Foundry*(铸造)[J], 2016, 65(2): 198

Thermal Stability of Microstructure and Mechanical Properties of High Pressure Solidified Al₂O₃/Al-10Si

Zhu Dongdong^{1,2}, Chen Zhipeng^{1,2}, Dong Duo¹, Wang Gang², Wang Xiaohong¹, Zhang Yanheng^{1,2}

(1. Key Laboratory of Air-driven Equipment Technology of Zhejiang Province, Quzhou University, Quzhou 324000, China)

(2. School of Mechanical and Automotive Engineering, Anhui Polytechnic University, Wuhu 241000, China)

Abstract: Al₂O₃/Al-10Si composites were prepared by high pressure solidification at 3, 4, 5 GPa, and then heat treated at 160 °C for 2, 4, and 6 h. Thermal stability of microstructure and mechanical properties of the Al₂O₃/Al-10Si composites under high pressure were studied. The results indicate that heat treatment leads to the precipitation of Si particles due to the supersaturation in α phase. The precipitation of Si causes a decrease in supersaturation. The compression strength and ration show a slight increase after heat treatment due to the combination of precipitation strengthening and solid solution strengthening. At 160 °C/4 h, Al₂O₃/Al-10Si composites exhibit the best mechanical properties. After solidified under 5 GPa and heat treatment at 160 °C/4 h, Al₂O₃/Al-10Si composites get the maximum compressive strength which is about 716 MPa.

Key words: high pressure solidification; heat treatment; microstructure; mechanical properties

Corresponding author: Dong Duo, Associate Professor, School of Mechanical Engineering, Quzhou University, Quzhou 324000, P. R. China, Tel: 0086-570-8026634, E-mail: dongduohit@163.com