

累积轧制 Ti/Al 复合材料的微观结构演变和力学性能研究*

顾苏怡^{1)†} 方红梅²⁾ 周正存¹⁾ 杜洁¹⁾

1) (苏州市职业大学机电工程系, 苏州 215104)

2) (浙江三新检测校准有限公司, 杭州 311106)

(2011年12月27日收到; 2012年3月6日收到修改稿)

用累积轧制法成功制备了平均晶粒尺寸为 200—300 nm 的超细等轴晶 Ti/Al 多层复合材料. 研究了 Ti/Al 多层复合材料的微结构变化和力学性能.

关键词: 累积轧制, Ti/Al 复合材料, 等轴晶粒

PACS: 61.72.Mm

1 引言

由不同种金属交替或增强金属层构成的金属多层复合材料可以显著改善材料的力学性能^[1]. Ti/Al 复合材料由于其优良的力学性能和低密度在工业应用中具有很大潜力^[2]. 由于 Al 比 Ti 便宜, 所以经济上这种复合材料比单一的钛更具吸引力. 累积轧制 (accumulative roll bonding, 简称 ARB) 法^[3] 和“冷轧 - 热处理 - 冷轧”方法^[4,5] 是两种低温下制备多层复合材料的新工艺. 近几年来, ARB 法已经被成功用来生产具有多层结构的双金属复合材料, 包括 Al-Cu^[6], Cu-Ag^[7], Al-Al(Sc)^[8] 和 Al-Pt^[9] 等. 然而, 到目前为止, 用 ARB 法生产 Ti-Al 系复合材料的工作还很少涉及. 不仅如此, Ti 的六方晶体结构和 Al 的面心立方晶体结构之间的差异可能会影响 ARB 过程中的变形和 Ti-Al 系的微结构变化, 因此 Ti-Al 系的复合过程相对于那些只有立方晶体结构的金属系列, 比如 Al-Cu^[6], Al-Al(Sc)^[8] 可能有很大的不同. 有人认为, 当多层样品经历 ARB 过程发生塑性变形时, 软基体层会有逐渐增加的局部变形和优先出现应变硬化. 硬相周围的软基体区域出现

应变强化, 从而可承受更多的载荷、抵抗进一步的变形——随后将会沿着层片的长度方向出现多处颈缩^[9,10].

本研究的目的是通过 ARB 工艺过程制备 Ti/Al 金属多层复合材料. 在现在的工作中, Ti/Al 层的初始厚度比逐渐增加, 并在每次 ARB 循环过程中改变轧制方向, 同时对获得的 Ti/Al 复合材料的微结构变化和力学性能进行了研究.

2 实验

Ti/Al 金属多层复合材料用商用纯 Ti (质量百分数 99.98%) 和 Al (质量百分数 99.97%) 薄片轧制得到, Ti 和 Al 的原始厚度分别是 50 μm 和 200 μm . Ti 片和 Al 片用钢刷打毛并按照交替的顺序层叠, 形成“三明治”形状, 总厚度为 4.0 mm, 这个三明治样品用平均 30 s^{-1} 的高应变速率冷轧至 2.0 mm, 然后从中间一切为二并放在一起得到原始的厚度, 然后用相同距离的轧辊再次轧制但轧制方向相反, 这样一个过程定义为一次 ARB 循环. 多层 Ti/Al 复合材料样品用高达 12 次的 ARB 循环方法制备得到, 相当于 von Mises 应变 9.6. 不同 ARB 循

* 苏州市职业大学科研基金 (批准号: 2011SZDYJ10, JDX1003) 和江苏省海外留学基金资助的课题.

† E-mail: suyigu@sohu.com

环后多层 Ti/Al 复合材料样品的微结构从样品的横向 (TD 方向, 平行于轧制方向) 取样用扫描电镜 (SEM, LeicaS440) 和透射电镜 (TEM, JEM2100) 进行观察. TEM 取样方法与 SEM 一样. 拉伸试验室温下在 30 kN 拉伸强度试验机 (Instron) 上进行, 应变率为每秒 8.3×10^{-4} . 样品的测量断面为 5 mm 宽 \times 10 mm 长. 拉伸方向沿轧制方向 (RD). 维氏微观硬度测量在微观硬度仪 (FM700) 上进行, 横截面上载荷为 50 g, Ti 和 Al 层上测量点都超过 10 个, 平均硬度值见图 1.

3 结果与讨论

图 1 表明经过不同 ARB 循环后 Ti/Al 多层复合材料的微结构变化. 从中可以看出, 在刚开始的几次 ARB 循环 ($n < 4$) 后, 金属层是均匀一致的 (图 1(a)). 在随后的几次循环中 Ti 层的厚度变得不均匀, 并且在多层复合材料中出现了剪切带 (图 1(b)). 多次 ARB 循环后, 由于金属层中出现不均匀变形以及贯穿于层与层之间的剪切带导致 Ti 层断裂并出现多处颈缩 (图 1(c)). 在进一步的 ARB 过程中, 较硬 Ti 层的

多处颈缩将形成分散的 Al 和 Ti 层混合物, 最后成功制得 Al 基上均匀分散着 Ti 片的复合物 (图 1(d)).

图 2 为经历不同 ARB 循环后由透射电镜观察到的 Ti 层的显微图像. 在 ARB 变形的早期, 大多数 Ti 层都包含着大致平行于轧制方向的片状结构. 然而, 在经过 12 次 ARB 循环后, Ti 层的微结构主要是由平均尺寸大约为 300 nm 的等轴状晶粒组成. 图 3 所示为不同 ARB 循环后由 TEM 观察到的 Ti/Al 复合材料中 Al 层的微结构变化过程. 在 ARB 循环次数少的情况下, 所有的 Al 层具有平行于轧制方向的片层结构. 在进一步的 ARB 循环后, 可以观察到 Al 层中出现两种微结构: 一种是等轴状晶粒 (出现在 Ti 层附近), 还有一种片状结构 (远离 Ti 层出现). 在靠近 Ti 层附近取的 Al 样, Ti 层未显示. 这两种不同晶粒形态类型在 Ohsaki 研究 Cu/Zr 多层样品的文中提到过 [7]. 在经历了 12 次 ARB 过程的样品中, 整个 Al 层都由平均尺寸为大约 200 nm 的等轴状晶粒组成.

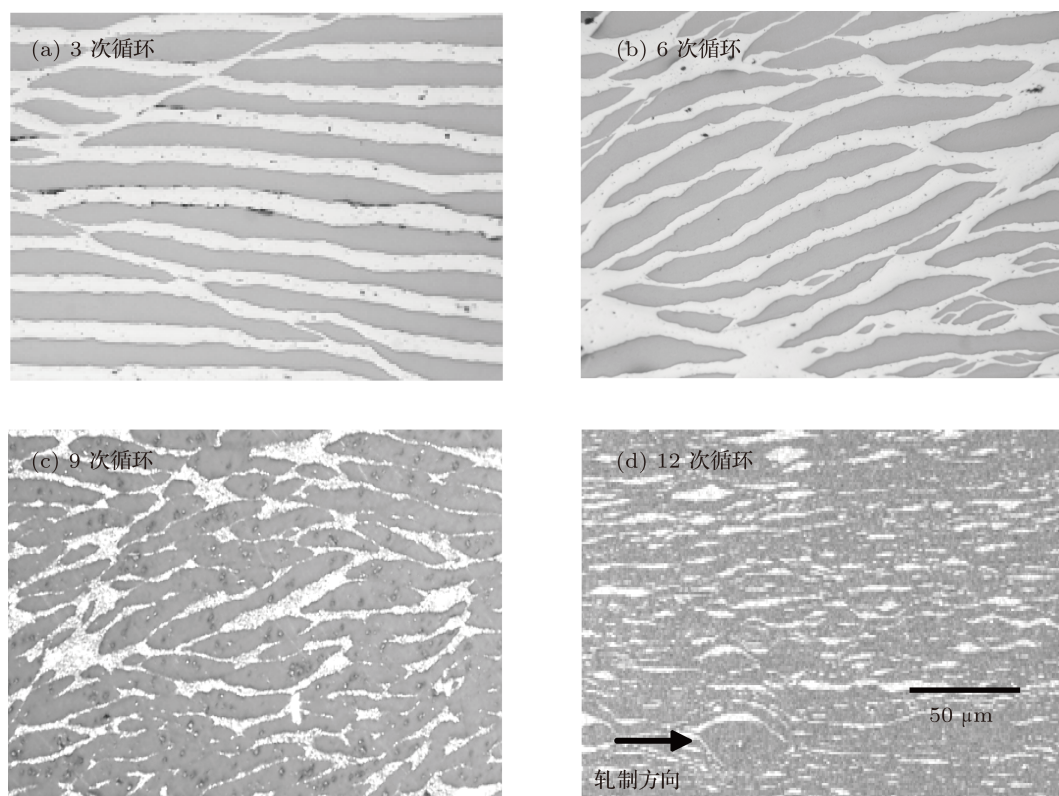


图 1 不同 ARB 循环次数以后 Ti/Al 多层复合材料 SEM 背散射电子像

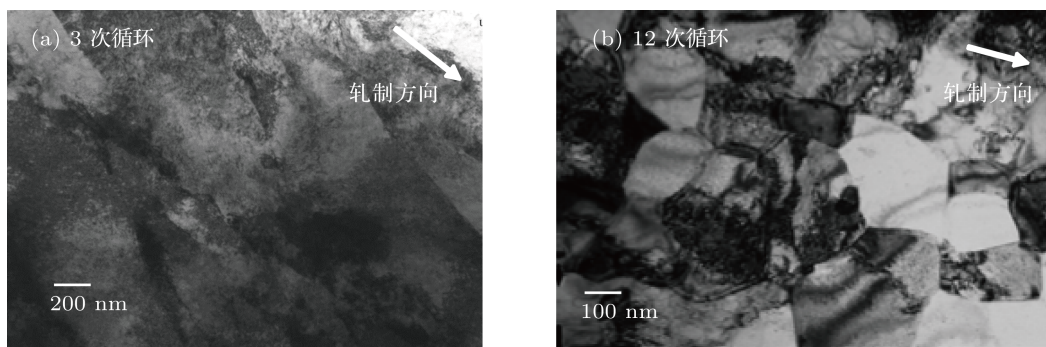


图2 不同 ARB 循环次数的 Ti/Al 多层复合材料中 Ti 层 TEM 明场像

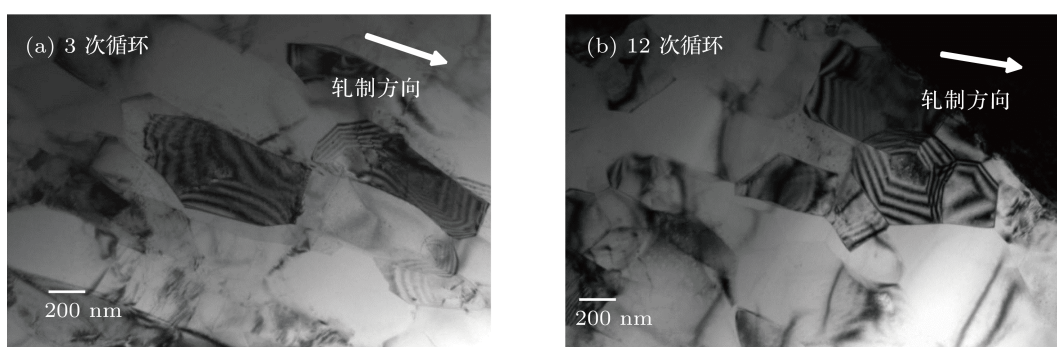


图3 不同 ARB 循环次数的 Ti/Al 多层复合材料中 Al 层 TEM 明场像 (在靠近 Ti 层附近取的 Al 样, Ti 层未显示)

图 4 是不同 ARB 循环后 Ti/Al 复合物的应力应变曲线. 所有力学性能都列在表 1 中. 可以看出, 随着 ARB 循环次数的增加, 屈服强度和极限抗拉强度都显著增加而伸长率 (塑性) 迅速下降. 12 次循环后, 极限抗拉强度到达 627 MPa 而伸长率降至 5.8%. 图 5 表明不同 ARB 循环后 Ti 和 Al 层的维氏微观硬度值变化情况. 随着 ARB 循环次数的增加, Al 基体和 Ti 强化层的微观硬度都增加, 这与塑性变形有关^[11], 只有在几次 ARB 循环后有微小的下降, 那可能与热致回复导致的软化有关. 另外, 随着 ARB 循环次数的增加, Al 和 Ti 的微观硬度曲线逐渐趋于一致, 在 8 次循环后几乎合并.

图 6 描述了拉伸试验得到的 Ti/Al 复合材料的工程应力和由混合法则计算得到的屈服强度与 ARB 循环次数的函数曲线. 按照混合规则, 屈服强度 σ 由计算公式 $\sigma = A_{Al}\sigma_{Al} + A_{Ti}\sigma_{Ti}$ 得到, 其中 A_{Al} , A_{Ti} , σ_{Al} 和 σ_{Ti} 分别为 Ti/Al 复合材料中 Al 和 Ti 层的横截面积和各自的屈服强度. Al 和 Ti 的屈服强度可以通过硬度值换算得到: $\sigma_0(\text{MPa}) = 9.807 \times (0.1)^{n'-2} \times \text{DHP}/3$, DHP 是维

氏硬度值, n' 对于应变硬化材料来讲大约为 2^[12]. 可以看出, 2 次 ARB 循环后, 屈服强度和最大抗拉强度稍稍增加, 在接下来的两次 ARB 循环中降至最低点, 随后逐步增大, 至 12 次循环后达到最大值. 低点的形成, 与 Ti 颈缩后还未形成理想中的复合材料有关, 是由于颈缩引起强度下降. 很显然, 除了在第三和第五次循环之间出现的变化, Ti/Al 复合材料的屈服强度与混合原则得到的值符合. 这与多层样品中剪切带的发展有关 (见图 1(b)), 它促进微裂纹的形成并使拉伸试验中失效加速. 随着 ARB 循环次数的增加, 多层材料逐步形成 Ti 碎片嵌入 Al 基体的结构, 晶粒也逐渐细化成等轴状晶粒并导致了 ARB 过程最后阶段使复合材料强化.

ARB 过程中观察到金属薄片变形行为的两种基本类型——多处颈缩和硬相的变形, 预示着能成功制备多层复合材料^[10]. 由于本研究中 Al 层对于 Ti 层较大的厚度比, 在刚开始的 ARB 循环中, Al 层经历了比 Ti 层大很多的变形. 随着 ARB 循环次数的增加, 强烈应变硬化 (加工硬化) Al 基层和强化 Ti 层的力学性能趋于一致 (图 5), 这加剧了 Ti 层

的多处颈缩并导致 Ti 层在 Al 基体内的均匀分布, 最终得到了 Al 基体中均匀分布 Ti 薄片的金属多层复合材料. 12 次轧制后, Ti 分散嵌入到 Al 基体中, Ti 和 Al 不再有明显的分层.

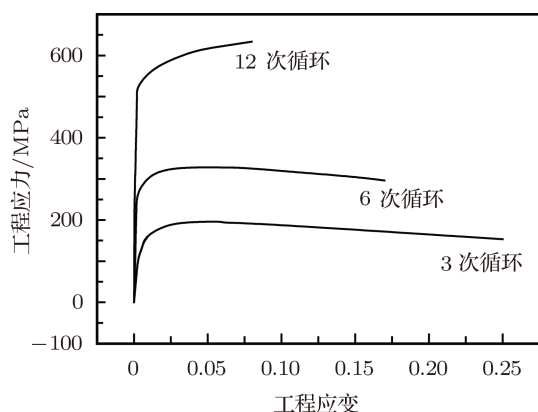


图 4 不同 ARB 循环次数以后 Ti/Al 多层复合材料应力 - 应变曲线

本文研究的 Ti/Al 复合材料的微结构变化和用金属粉末进行机械合金化的早期阶段观察到的结果非常相似. 在本文研究条件下, Ti 层和 Al 层在 ARB 每次循环中都变形, 尽管在刚开始的 ARB

循环中变形是不均匀的, 随着循环次数的增加, 金属层之间密切结合, 在最终的循环中得到了 Ti 碎片嵌入到 Al 基中的均匀的复合物结构. 就像在用金属粉末进行的机械合金化中, 在研磨的早期, 金属粉末的分布是不均匀的, 颗粒和层片的反复焊合最后形成了均一的结构 [13,14]. 所以可以认为, 金属片之间的冷轧和机械合金化有类似的特征: 金属片被相互剪切并互相冷焊合. 然而, 冷轧能量输入较低, 似乎更像高能机械合金化的初始阶段, 也似于低能机械合金化 [15].

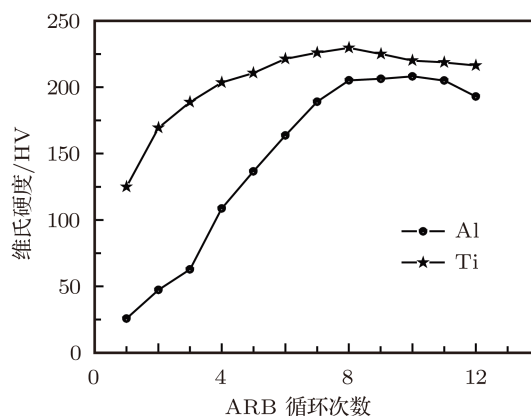


图 5 Ti 和 Al 层微观硬度随 ARB 循环次数变化曲线

表 1 不同 ARB 循环次数以后 Ti/Al 多层复合材料的力学性能

ARB 循环次数	屈服强度/MPa	最大抗拉强度/MPa	均匀伸长率/%	断裂处总伸长率/%
3	176	204	1.73	24.2
6	283	342	0.9	16.7
9	458	563	0.6	8.4
12	524	627	0.4	5.8

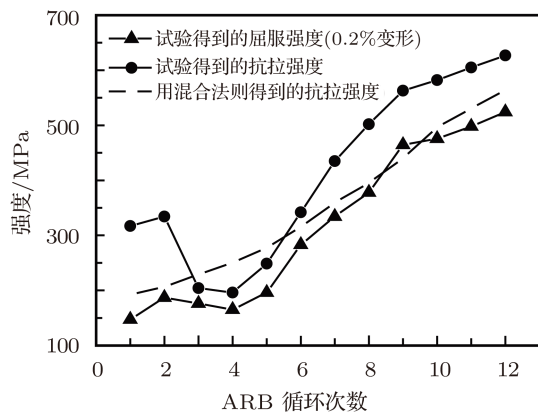


图 6 应力随 ARB 循环次数变化曲线

有文献曾经报道经过 ARB 过程后密排六方 (hcp) Zr 和 Ti 样品中能获得等轴的超细晶粒结构 [16,17]. 然而并没有报道不经过后续退火的面心立方 Al 中出现超细等轴晶的情况, 只在大应变 ($\epsilon = 9.6$) 轧制中观察到被拉长的 Al 晶粒 [18]. 有人认为密排六方细等轴晶来源于绝热过程中变形导致的回复, 同时也是表面区域大的剪切应变与平面应变综合产生的结果 [16,17]. 在本文的研究中, 12 次 ARB 循环 ($\epsilon = 9.6$) 后 Ti 层等轴晶粒平均大小约为 300 nm, 这比 Terada 等 [17] 报道的等轴晶粒平均大小大很多. 在 Ti/Al 多层复合材料的 Al 层中约有 80% 的等轴晶粒结构平均晶粒大小为 200 nm.

本文观察到的超细等轴晶粒的形成有下列几个因素: 首先由于金属薄片缺乏润滑并且把表面刷损, 本文实验条件下剪切应变相对比较大, 较大的剪切应变对形成超细晶粒有重要作用, Hansen^[19]指出借助于变形诱发的大角度晶界, 应变集中导致晶粒细分, 这对于超细晶粒形成是关键因素. 其次, 有人认为变化的应变方向或应变条件是晶粒细化的有效方式^[20-22]. Iwahashi 等^[22]指出应变路径对于超细晶粒形成非常重要. 他们发现在等通道角挤压过程中每次旋转样品 90°, 能够更快地得到超细晶粒. 在本文的 ARB 过程中, 我们在每次轧制后颠倒轧制方向, 这种应变路径改变对于得到超细晶粒可能也有作用. 第三, 由于较高的应变速率 (30 s⁻¹), 应力导致的局部绝热加热过程相对比较大. 值得注意的是, Ti 的热传导率 (17 W·mK⁻¹) 比较低而 Al 的热传导率 (210 W·mK⁻¹) 比较高. 因此, ARB 变形绝热加热过程中产生的热量主要由 Al 层传导, 也就是说, Al 中逐渐增加的温度对于 ARB 过程中 Al 晶粒的回复具有显著作用, 从而导致变形后

的微结构主要由等轴晶粒组成. 图 2(d) 表明, 接合表面的 Al 层已经完全借助于晶粒长大而再结晶, 并产生了热腐蚀, 形成晶粒的边界.

4 结论

综上所述, 我们借助于 ARB 工艺过程成功地制备出 Ti/Al 多层复合材料. 经过多次 ARB 工艺过程的 Ti/Al 多层复合材料的屈服强度和极限抗拉强度显著增加. 应变硬化作用导致 Ti 层的多处颈缩以及 Ti 层在 Al 基体中的均匀分布. 大的剪切应变, 高的应变速率, 每次 ARB 循环后颠倒的轧制方向以及 Ti 的低热传导率是 ARB 过程中超细等轴晶 Ti/Al 多层复合材料形成的关键因素. 这些结论表明, 目前研究中所使用的工艺过程可能为生产超细等轴晶粒多层复合材料, 尤其是为不同晶体结构的二元系复合材料的制备提供一条有效的途径.

我们真诚地感谢上海大学闵娜老师的有益指导.

- [1] Wadsworth J, Lesure D R 2000 *Mater. Charact.* **45** 289
- [2] Li W, Chen D M, Guan Z Z 1998 *Acta Phys. Sin.* **47** 2064 (in Chinese) [李文, 陈岱民, 关振中 1998 物理学报 **47** 2064]
- [3] Saito Y, Utsunomiya H, Tsuji N, Sakai T 1999 *Acta Mater.* **47** 579
- [4] Luo J G, Acoff V A 2004 *Mater. Sci. Eng.* **379** 164
- [5] Luo J G, Acoff V A 2006 *Mater. Sci. Eng.* **433** 334
- [6] Eizadjou M, Kazemi Talachi A, Danesh Manesh H, Shakur Shahabi H, Janghorban K 2008 *Comp. Sci. Tech.* **68** 2003
- [7] Ohsaki S, Kato S, Tsuji N, Ohkubo T, Hono K 2007 *Acta Mater.* **55** 2885
- [8] Ouadir M Z, Al-Buhamad O, Bassman L, Ferry M 2007 *Acta Mater.* **55** 5438
- [9] Hebert R J, Perepezko J H 2004 *Scr. Mater.* **50** 807
- [10] Bordeaux F, Yavari R 1990 *Metallkde* **81** 130
- [11] Ma W, Zhu W J, Chen K G, Jin F Q 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 016107 (in Chinese) [马文, 祝文军, 陈开果, 经福谦 2011 物理学报 **60** 016107]
- [12] Dieter G E 1986 *Mechanical Metallurgy* (3 Ed.) (New York: McGrawHill)
- [13] Cardellini F, Mazzone G, Antisari M V 1996 *Acta Mater.* **44** 1511
- [14] Maneshian M H, Simchi A, Hesabi Z R A 2007 *Mater. Sci. Eng.* **86** 445
- [15] Battezzati L, Pappalepore P, Durbiano F, Gallino I 1999 *Acta Mater.* **47** 1901
- [16] Jiang L, Perez-Prado M T, Gruber P A, Arzt E, Ruano O A, Kassner M E 2008 *Acta Mater.* **56** 1228
- [17] Terada D, Inoue S, Tsuji N 2007 *Mater. Sci.* **42** 1673
- [18] Kim H W, Kang S B, Tsuji N, Minamino Y A 2005 *Metall. Trans.* **36** 5151
- [19] Hansen N A 2001 *Metall. Mater. Trans.* **32A** 2917
- [20] Orlov D, Todaka Y, Umemoto M, Tsuji N A 2009 *Mater. Sci. Eng.* **499** 427
- [21] Jiang J H, Ding Y, Zuo F Q, Shan A D 2009 *Scr. Mater.* **60** 905
- [22] Iwahashi Y, Horita Z, Nemoto M, Langdon T G 1998 *Acta Mater.* **46** 3317

The evolution of microstructure and mechanical properties of Ti/Al composite synthesized by accumulative roll-bonding*

Gu Su-Yi^{1)†} Fang Hong-Mei²⁾ Zhou Zheng-Cun¹⁾ Du Jie¹⁾

1) (*Department of Mechano-electronic Engineering, Suzhou Vocational University, Suzhou 215104, China*)

2) (*Zhejiang Sanxin Detection and Calibration Limited Company, Hangzhou 311106, China*)

(Received 27 December 2011; revised manuscript received 6 March 2012)

Abstract

Ti/Al multilayered composite, mainly composed of ultrafine equiaxed grains with a mean size of 200–300 nm is successfully synthesized by accumulative roll-bonding. The microstructure evolution and mechanical properties of the multilayered Ti/Al compound are investigated.

Keywords: accumulative roll bonding, Ti/Al composite, equiaxed-grain

PACS: 61.72.Mm

* Project supported by the Science and Research Fund of Suzhou Vocational University, China (Grant Nos. 2011SZDYJ10, JDX1003) and Overseas Study Fund of Jiangsu Province, China.

† E-mail: suyigu@sohu.com