

# 铝基复合材料 ( $\text{Al}_2\text{O}_{3\text{p}}/\text{6061Al}$ ) 过渡液相扩散连接

A Study of Transient Liquid Phase Bonded

Aluminium Matrix Composite ( $\text{Al}_2\text{O}_{3\text{p}}/\text{6061Al}$ )

刘卫红, 孙大谦, 邱小明, 贾树盛, 殷世强

(吉林大学汽车材料教育部重点实验室, 材料科学与工程学院, 长春 130025)

LIU Wei-hong, SUN Da-qian, QIU Xiao-ming, JIA Shu-sheng, YIN Shi-qiang

(The Key Laboratory of Automobile Materials Ministry of Education,

School of Materials Science and Engineering, Jilin University, Changchun 130025, China)

**摘要:** 研究了 Al-Si 合金中间层  $\text{Al}_2\text{O}_{3\text{p}}/\text{6061Al}$  复合材料过渡液相扩散连接接头的显微结构和连接工艺参数对接头剪切强度的影响。连接区主要由 Al-Si 合金组成, 无  $\text{Al}_2\text{O}_3$  颗粒。接头裂纹起源于 Al-Si 合金与  $\text{Al}_2\text{O}_3$  颗粒界面处, 并主要在连接区 Al-Si 合金中扩展。连接工艺参数对接头剪切强度影响程度依次为 Al-Si 合金中间层厚度、连接温度、保温时间。选择合适的连接工艺参数, 接头剪切强度可达 70~80MPa。

**关键词:** Al-Si 合金中间层; 铝基复合材料; 过渡液相扩散连接

**中图分类号:** TG425    **文献标识码:** A    **文章编号:** 1001-4381 (2002) 06-0021-04

**Abstract:** The microstructure of transient liquid phase bonded aluminium metal matrix composite joint with Al-Si insert alloy and effect of process parameters on the joint shear strength have been studied. The joining zone mainly consists of Al-Si alloy and  $\text{Al}_2\text{O}_3$  particulate segregation does not occur. The joint crack initiates at the interface between Al-Si alloy and  $\text{Al}_2\text{O}_3$  particulate and mainly propagates in the joining zone Al-Si alloy. Effect of process parameters on the joint shear strength is Al-Si insert alloy thickness, joining temperature and joining time in proper order. The joint shear strength of 70~80MPa can be obtained when process parameters are suitable.

**Key words:** Al-Si insert alloy; aluminium metal matrix composite; transient liquid phase bonding

颗粒增强铝基复合材料由于其具有综合性能高、制造成本低、各向同性、二次加工性能好等优点, 在航空、航天、汽车等工业领域的应用范围不断扩大<sup>[1, 2]</sup>, 随之而来的该种材料的焊(连)接技术便成为急待解决的问题。

近年来, 颗粒增强铝基复合材料焊(连)接问题的研究已成为该领域研究热点。研究结果表明, 采用熔化焊方法焊接颗粒增强铝基复合材料存在的主要问题是: 高温焊接熔池中增强相与基体金属发生反应生成脆性化合物; 熔池粘度高、流动性差增加了对气孔、未熔合等缺陷的敏感性; 液态金属凝固时增强相偏析影响接头性能; 焊接粉末冶金铝基复合材料时易出现气孔<sup>[3]</sup>。尽管人们已提出了一些冶金和工艺措施, 但上述问题仍未得到解决<sup>[4]</sup>。摩擦焊可成功地用于颗粒增强铝基复合材料连接, 但该方法的应用存在一定的局限性<sup>[5, 6]</sup>。钎焊和扩散焊由于方法本身的特点可避免熔化焊时存在的一系列问题。但钎焊由于钎

料性能的限制, 其接头剪切强度较低; 而未加中间层固相扩散焊为破坏氧化膜需提高连接温度和施加较大的压力, 导致接头产生过量的塑性变形。因此, 采用加中间层的过渡液相扩散连接是解决这一问题的有效方法。

本研究采用 Al-Si 合金中间层研究了  $\text{Al}_2\text{O}_{3\text{p}}/\text{6061Al}$  复合材料接头显微结构及连接工艺参数对接头剪切强度的影响规律, 旨在获得满足使用要求的铝基复合材料接头提供必要的理论依据。

## 1 试验材料、方法及设备

试验用母材为直径  $\Phi 20\text{mm}$  的  $\text{Al}_2\text{O}_{3\text{p}}/\text{6061Al}$  复合材料棒料,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  颗粒平均直径为  $40\mu\text{m}$ , 体积分数为 20%, 试样尺寸为  $3.0\text{mm} \times 5.0\text{mm} \times 8.0\text{mm}$ ; 中间层材料为 Al-Si 合金, 将其制备成厚度分别为 20, 50,  $80\mu\text{m}$  箔片。  $\text{Al}_2\text{O}_{3\text{p}}/\text{6061Al}$  复合材料的基体与中间层

材料的主要成分见表 1。

表 1 试验材料主要成分 (质量分数/%)

Table 1 Composition of experimental materials (mass fraction/%)

主要成份	Si	Mg	Cu	Zn	Fe	Al
基体	0.49	0.62	0.25	0.25	0.70	其余
中间层	5.60	0.04	-	0.23	-	其余

连接前将试样待连接表面、中间层箔片表面分别用 1200, 1800 号金相砂纸去除氧化膜, 并立即依次进行化学清洗、清水清洗和超声波清洗; 而后将中间层箔片置于两试样待连接表面之间, 装配在特制的夹具上, 并施加一定压力。 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{6061Al}$  复合材料的连接在真空炉内进行, 真空度  $1.33 \times 10^{-3}\text{Pa}$ , 加热速度  $5\text{K}/\text{min}$ , 连接温度误差  $\pm 5^\circ\text{C}$ , 在连接温度保温一定时间后随炉冷却至室温。

试验采用正交试验方法研究连接温度、保温时间、中间层厚度对接头剪切强度的影响。接头剪切强度试验在 AG-10TA 型电子万能试验机上进行, 拉伸速度为  $3.0\text{mm}/\text{min}$ , 接头剪切强度以三个接头试样剪切强度平均值评定; 试验采用图相分析仪 (VIDAS) 测量  $\text{Al}_2\text{O}_3$  颗粒直径及体积分数; 用差式扫描量热仪 (DSC-7) 测量 Al-Si 合金中间层的熔点; 用光学显微镜 (XJZ-6) 和扫描电镜 (JSM-5310) 进行接头金相和断口分析。

2 试验结果及讨论

2.1  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{6061Al}$  复合材料接头的显微结构

图 1 为 Al-Si 合金中间层  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{6061Al}$  复合材料过渡液相扩散连接接头显微结构。由图 1 可以看出, 接头组织存在明显的差异。连接区(A) 主要由 Al-Si 合金组成, 但含 Si 量较中间层箔片成份降低, 该区无  $\text{Al}_2\text{O}_3$  颗粒; 在中间层合金与母材界面处存在两

种微连接: Al-Si 合金/ $\text{Al}_2\text{O}_3$  颗粒、Al-Si 合金/母材基体金属; 在接头中特别是 Al-Si 合金与  $\text{Al}_2\text{O}_3$  颗粒界面处未见结合不良、孔洞等缺陷。母材区仍由  $\text{Al}_2\text{O}_3$  颗粒和基体构成。

过渡液相扩散连接过程主要由共晶反应或中间层熔化、等温凝固、均匀化等阶段构成。由表 1 可知, Al-Si 合金中间层属亚共晶合金, 其含 Si 量明显高于母材, 因此在连接过程中中间层与母材界面处不可能发生共晶反应, 仅存在因浓度差引起的 Si 由中间层向母材的扩散, 这是连接区无  $\text{Al}_2\text{O}_3$  颗粒、主要由 Al-Si 合金组成及含 Si 量降低的主要原因。由于 Al-Si 合金中间层的熔点 ( $574^\circ\text{C}$ ) 低于母材熔点 ( $660^\circ\text{C}$ ), 当连接温度高于  $574^\circ\text{C}$  时中间层熔化, 形成液相并润湿填充接头间隙。随着保温时间增加, 液态 Al-Si 合金中的 Si 不断向母材中扩散使其熔点提高, 当高于连接温度时液态 Al-Si 合金在母材表面形核并向液相生长, 直至完全凝固, 从而形成由 Al-Si 合金/ $\text{Al}_2\text{O}_3$  颗粒和 Al-Si 合金/基体金属两种微连接构成的接头。进一步增加保温时间, 接头成份和组织进一步均匀化。

通常, 液态 Al-Si 合金对  $\text{Al}_2\text{O}_3$  颗粒的润湿性较差, 但由于连接过程中施加一定的压力, 毛细作用加强; 同时, 中间层合金熔化时由固态转变为液态, 体积增大, 促进了液体的漫流填充接头间隙。因此, 有效地防止了接头中特别是 Al-Si 合金与  $\text{Al}_2\text{O}_3$  颗粒界面处出现结合不良、孔洞等缺陷。

2.2 接头剪切断口分析

Al-Si 合金中间层  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{6061Al}$  复合材料过渡液相扩散连接接头剪切断口研究表明, 接头断裂形式主要为准解理断裂, 断口上可看到大量的准解理面和撕裂棱, 如图 2 所示。同时, 断口上也可看到表面光滑的  $\text{Al}_2\text{O}_3$  颗粒(P), 这意味着 Al-Si 合金与  $\text{Al}_2\text{O}_3$  颗粒的连接属弱连接。图 3 为接头剪切断裂试样纵向截

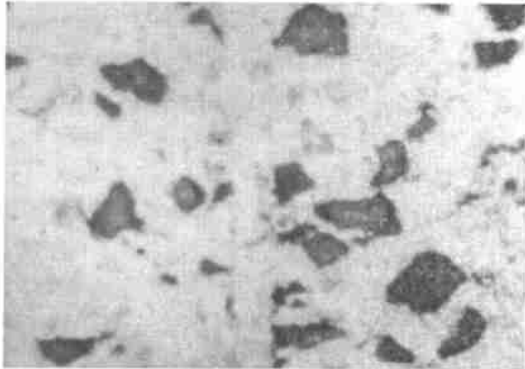


图 1 铝基复合材料接头显微结构 800 ×  
Fig. 1 Microstructure of aluminium matrix composite joint

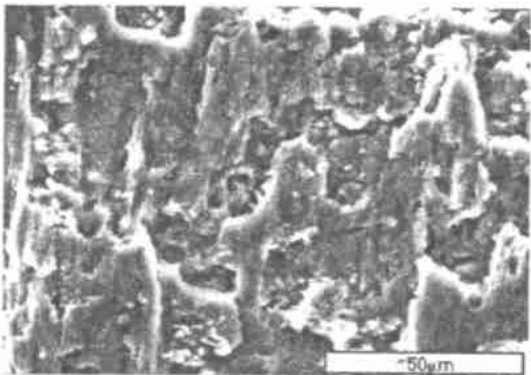


图 2 接头剪切断口形貌  
Fig. 2 Fracture morphology of shear joint

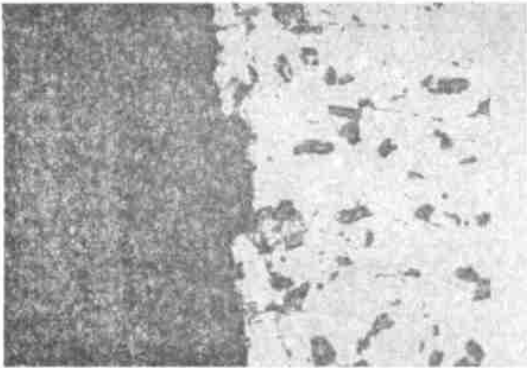


图3 接头剪切断裂试样纵向截面 (200×)  
Fig.3 Microstructure of longitudinal section for shear fracture joint

面显微结构图。由接头剪切断裂试样纵向截面组织和裂纹扩展途径分析表明, 裂纹起源于 Al-Si 合金与 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 颗粒的界面处, 主要在连接区 Al-Si 合金中扩展, 但也看到少量裂纹沿 Al-Si 合金与母材基体金属界面扩展。

接头受剪切作用时, 接头产生宏观变形, Al-Si 合金与母材基体金属间的变形可认为是连续的, 而与 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 颗粒间的变形则为非连续的, 并在该处产生较大的应力; 当剪切力达到一定程度时, 由于 Al-Si 合金 / Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 颗粒的连接属于弱连接, 该界面处因脱粘而形成微裂纹; 随着接头所受剪切力的增加, 微裂纹不断扩展, 相邻 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 颗粒界面处形成的微裂纹相互吞并形成宏观裂纹。裂纹主要沿中间层 Al-Si 合金中扩展的主要原因是 Al-Si 合金的强度较低, 裂纹扩展所需的能量较小。

因此, 改善连接区 Al-Si 合金与 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 颗粒间的结合力, 提高连接区 Al-Si 合金的强度, 是改善 Al-Si 合金中间层 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>p/ 6061Al 复合材料过渡液相扩散连接接头强度的重要途径。

2.3 连接工艺参数对接头剪切强度的影响

表 2 为连接温度、保温时间和 Al-Si 合金中间层厚度对 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>p/ 6061Al 复合材料过渡液相扩散连接接头剪切强度影响的正交试验结果和分析结果, 图 4 为其指标与因素水平的趋势图。由极差分析结果可以看出, 连接工艺参数对接头剪切强度影响程度依次为 Al-Si 合金中间层厚度、连接温度、保温时间。Al-Si 合金中间层厚度由 20μm 增至 50μm, 接头剪切强度明显增加; 进一步增加中间层厚度至 80μm, 则接头剪切强度降低。过高或过低的连接温度也影响接头剪切强度。在所研究的范围内, 保温时间对接头剪切强度的影响较小。中间层厚度 50μm、连接温度 580~ 600 、保温时间 2~ 8min 连接条件下, 接头剪切强度为 70 ~

80MPa。

表 2 试验结果与分析

Table 2 Experimental results and analyses

序号	连接温度 A/	保温时间 B/ min	中间层厚度 C/ μm	接头剪切强度 M Pa
1	(1) 580	(1) 2	(1) 20	56
2	(1) 580	(2) 5	(2) 50	75
3	(1) 580	(3) 8	(3) 80	69
4	(2) 590	(1) 2	(2) 50	74
5	(2) 590	(2) 5	(3) 80	71
6	(2) 590	(3) 8	(1) 20	59
7	(3) 600	(1) 2	(3) 80	64
8	(3) 600	(2) 5	(1) 20	55
9	(3) 600	(3) 8	(2) 50	70
	67	65	57	T = 198
	68	67	73	
	63	66	68	
极差	5	3	16	
优水平	A <sub>2</sub>	B <sub>2</sub>	C <sub>2</sub>	
主次因素	C, A, B			
优组合	A <sub>2</sub> B <sub>2</sub> C <sub>2</sub>			

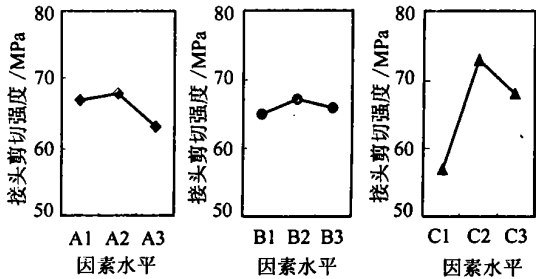


图 4 指标与因素水平的趋势图

Fig.4 Trend of index to factor

Al-Si 合金中间层厚度对接头剪切强度的影响, 可能与接头应力分布和连接区 Al-Si 合金成份有关。Al-Si 合金中间层厚度为 20μm 时, 接头应力集中作用加强, 连接区 Al-Si 合金含 Si 量降低, 使其接头剪切强度降低。Al-Si 合金中间层厚度 80μm 时, 连接区宽度增加, 也降低接头剪切强度。因此, 选择合适的中间层厚度对于改善接头剪切强度是十分重要的。

连接温度较低时( 580 ), 由于液态 Al-Si 合金中间层对母材的润湿性降低, 影响其结合强度, 导致接头剪切强度降低; 连接温度较高时( 600 ), 由于液态 Al-Si 合金中 Si 的扩散能力明显增强, 连接区含 Si

量降低, 固溶强化作用减弱, 使接头剪切强度下降。

过渡液相扩散连接过程中等温凝固完成时间  $t_s$  可通过下式估算<sup>[7]</sup>:

$$t_s = \frac{\pi}{16D_s} \left( \frac{C_0 W_0}{C_{ol} - C_M} \right)^2$$

其中:  $D_s$  为扩散系数 ( $\text{cm}^2/\text{s}$ );  $C_0$  为中间层中扩散元素的初始浓度 ( $\text{g}/\text{cm}^3$ );  $W_0$  为中间层原始厚度 ( $\text{cm}$ );  $C_M$  为基体中扩散元素原始浓度 ( $\text{g}/\text{cm}^3$ );  $C_{ol}$  为等温凝固时固/液界面扩散元素浓度 ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )。若考虑晶界、位错等明显提高原子的扩散能力, 本试验中保温时间范围处于等温凝固阶段, 接头成份和组织的变化较小, 故对接头剪切强度的影响也较小。

### 3 结论

(1) Al-Si 合金中间层  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{6061Al}$  复合材料过渡液相扩散连接接头的连接区主要由 Al-Si 合金组成, 无  $\text{Al}_2\text{O}_3$  颗粒; 中间层合金与母材界面处存在两种微连接: Al-Si 合金/ $\text{Al}_2\text{O}_3$  颗粒、Al-Si 合金/母材基体金属。

(2) Al-Si 合金中间层  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{6061Al}$  复合材料过渡液相扩散连接接头断裂形式为准解离断裂, 断裂起源于 Al-Si 合金/ $\text{Al}_2\text{O}_3$  颗粒界面处, 主要在连接区 Al-Si 合金中扩展。

(3) 连接工艺参数对  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{6061Al}$  复合材料过渡液相扩散连接接头剪切强度影响程度依次为 Al-Si 合金中间层厚度、连接温度、保温时间。

\*\*\*\*\*

(上接第20页)

锌铬黄颜料在浸泡中生成某种化合物, 吸附在涂层底界面上, 造成涂膜电阻的增加, 从而对金属产生防护作用。

#### 参考文献

- [1] MANSFELD F. 徐乃欣摘译. 腐蚀电化学测试技术的进展 [J]. 腐蚀与防护, 1989, 10 (2): 33- 38.
- [2] 刘小平. 涂层防腐的电化学研究 [J]. 涂料工业, 1999, (2): 37- 41.
- [3] 张鉴清. 富锌涂层的电化学阻抗谱特性 [J]. 中国腐蚀与防护学报, 1996, 16 (3): 175- 180.
- [4] 刘宏伟, 许刚等. 防锈颜料三聚磷酸铝作用机理的 EIS 研究 [J]. 中国腐蚀与防护学报, 1997, 17 (3): 215- 219.
- [5] TITZ J, WAGNER G H., et al. Characterization of organic coatings on metal substrates by Electrochemical Impedance Spectroscopy [J]. Corrosion, 1990, 46 (3): 221- 229.
- [6] MANSFELD F. Recording and analysis of AC Impedance data for corrosion studies [J]. Corrosion, 1981, 36 (5): 301- 307.

(4) Al-Si 合金中间层厚度  $50\mu\text{m}$ 、连接温度  $580 \sim 600$ 、保温时间  $2 \sim 8\text{min}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{6061Al}$  复合材料过渡液相扩散连接接头剪切强度为  $70 \sim 80\text{MPa}$ 。

#### 参考文献

- [1] 张大童, 李元元, 龙雁. 铝基复合材料研究进展 [J]. 轻合金加工技术, 2000 (1): 5- 10.
- [2] 桂满昌, 王殿斌, 张洪. 颗粒增强铝基复合材料在汽车上的应用 [J]. 工程材料, 1996, 10 (5): 30- 33.
- [3] 任家烈, 吴爱萍. 先进材料的连接 [M]. 北京: 机械工业出版社, 2000.
- [4] 牛济泰, 刘黎明, 韩立红. 铝基复合材料连接研究现状及展望 [J]. 哈尔滨工业大学学报, 1999, 2 (1): 130- 133.
- [5] MIDLING O T, GRONG . A process model for friction welding of Al-Mg-Si alloys and Al-SiC metal matrix composites [J]. ACTA metall Mater, 1994 (5): 1595- 1622.
- [6] 加藤数良, 时末光. 铝合金复合材料—铝合金摩擦接头的接合界面 [J]. 轻金属溶接, 1994 (10): 1- 5.
- [7] ZHOU Yunhong. Numerical modeling of process kinetics during TLP-bonding and other diffusion-controlled process [D]. Ph D thesis, University of Toronto, 1994.

基金项目: 教育部“高等学校骨干教师资助计划”项目; 国家留学基金资助项目

收稿日期: 2001-11-23

作者简介: 刘卫红 (1969-), 女, 重庆市忠县人, 讲师, 在职博士研究生, 主要从事材料焊 (连) 接技术研究, 联系地址: 吉林省长春市吉林大学材料科学与工程学院材料加工工程系 (130025)。

- [7] 刘宏伟, 许刚等. 防锈颜料  $\text{Pb}_3\text{O}_4$  在有机涂层中作用机理的 EIS 分析 [J]. 中国腐蚀与防护学报, 1998, 18 (1): 52- 56.
- [8] 张鉴清, 曹楚南. 电化学阻抗谱方法研究评价有机涂层 [J]. 腐蚀与防护, 1998, 19 (3): 99- 104.
- [9] KENDIG M., SCULLY J. Basic aspects of Electrochemical Impedance application for the life prediction of organic coatings on metals [J]. Corrosion, 1990, 46 (1): 22- 29.
- [10] YIN K M., WU H Z.. Electrochemical impedance study of the degradation of organic-coated copper [J]. Surface and Coatings Technology, 1998, 106: 167- 173.
- [11] 吴荫顺, 方智等. 腐蚀试验方法与防腐蚀检测技术 [M]. 北京: 化学工业出版社, 1996.
- [12] 曹楚南. 腐蚀电化学 [M]. 北京: 化学工业出版社, 1994.
- [13] 谭勇军, 杨华铨等. 电化学方法研究有机涂层中锌铬黄防锈机理 [J]. 涂料工业, 1995 (4): 8- 10.

收稿日期: 2001-03-19

作者简介: 胡建平 (1971-), 男, 工程师, 北航在职研究生, 联系地址: 北京市复兴路 14 号 76 分队 (100843), 电话: (010) 66989515, E-mail: hoojianping@263.net。