

# 搅拌摩擦加工制备纳米 RE/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 增强 铝基复合材料

肖长源<sup>2</sup>, 陈 兵<sup>1</sup>, 张敏敏<sup>1</sup>, 吉 华<sup>3</sup>, 李 达<sup>1</sup>

(1. 西南交通大学 材料科学与工程学院, 成都 610031;

2. 首都航天机械公司, 北京 100076; 3. 上海航天设备制造总厂, 上海 200245)

**摘 要:** 铝基复合材料因其优异的物理性能及机械性能已得到广泛应用. 文中通过在 2219-O 铝合金内部添加不同比例的 RE/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 纳米粉末, 利用搅拌摩擦加工技术, 制备铝基复合材料. 并对搅拌区进行金相、拉伸、硬度、SEM、EDS 和 XRD 等试验. 结果表明, 搅拌区金属在搅拌头强烈的搅拌摩擦作用下发生显著的塑性变形和连续动态再结晶, 形成细小的等轴晶粒, 并具有明显的洋葱环组织. 复合材料的抗拉强度为母材的 163%、屈服强度为母材的 195%, 同时硬度也明显增加. 但是不同稀土比例对金属基复合材料的组织形貌和力学性能影响不大. 大块复合材料制备过程粉末添加及隧道型缺陷的控制是关键.

**关键词:** RE/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 增强铝基复合材料; 搅拌摩擦加工; 微观组织; 力学性能

**中图分类号:** TG 407 **文献标识码:** A **文章编号:** 0253-360X(2016)12-0066-05

## 0 序 言

2219 铝合金是一种高强可处理强化铝合金. 它具有良好的比强度、抗应力腐蚀性及良好的力学性能, 在航空航天、国防等领域具有广泛的应用<sup>[1,2]</sup>. 近年来随着国防技术要求的提高, 对材料性能的要求也越来越高, 铝基复合材料以其优异的性能成为研究热点.

搅拌摩擦加工技术 (friction stir processing, 简称 FSP) 是在搅拌摩擦焊 (friction stir welding, 简称 FSW) 的基础上发展而来的<sup>[3,4]</sup>. 采用搅拌摩擦加工制备纳米相增强基金属复合材料, 可以得到组织细小、强度和塑性很高的复合材料. 王开东等人<sup>[5]</sup> 在搅拌摩擦加工制备钛颗粒增强 AZ31 镁基复合材料中研究了制备钛颗粒含量为 20% 与 40% 的 Mg-AZ31 基复合材料. 得到复合材料中的钛颗粒平均尺寸为 200 nm, 且当钛颗粒添加量为 40% 时, 复合层中碎化的钛颗粒在镁基体中均匀分布复合层强度有明显提高. 钱锦文等人<sup>[6]</sup> 研究了 FSP 原位反应制备 Al<sub>3</sub>Ti-Al 表面复合层. 结果显示, 在 FSP 中钛粉产生了碎化, 生成微米和亚微米级 Al<sub>3</sub>Ti 颗粒并均匀分布在铝合金基体中, 使得机体表面硬度为原来的

2.1 倍. You 等人<sup>[7]</sup> 向铝基材料中添加 Al/SiO<sub>2</sub> 粉末通过 FSP 形成 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 纳米增强颗粒制备复合材料. 通过显微组织观察发现形成的 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 纳米颗粒大小约为 20 nm, 并且获得的复合材料具有优良的抗拉强度和断后伸长率. Hossein 等人<sup>[8]</sup> 通过 FSP 制备多壁碳纳米管增强铝基复合材料, 增强相在复合材料中分散均匀, 复合材料的显微硬度比原来的铝高两倍.

在利用 FSP 技术制备颗粒增强铝基复合材料方面进行了大量研究, 认为采用该方法可制备性能良好的铝基复合材料, 但大多研究都是集中在单相增强颗粒方面的研究, 同时关于稀土在细化晶粒及改善材料性能方面的作用也为大家所熟知. 基于此, 文中研究了纳米稀土氧化物及 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 复合颗粒增强铝基复合材料, 并分析了不同稀土比例对复合材料性能的影响.

## 1 试验方法

试验材料为 2219-O (AlCuMg 系, LY16) 退火态铝合金板材, 板材规格为 500 mm × 130 mm × 6 mm, 其化学成分和力学性能分别如表 1 及表 2 所示<sup>[9]</sup>.

图 1 为复合颗粒添加示意图, 在小孔中加入复合材料. 选用螺旋形搅拌头, 搅拌针直径 8 mm, 轴肩 22 mm, 搅拌针长 5.8 mm. 以 400 r/min 的旋转速

度,100 mm/min 的焊接速度,对添加了纳米氧化铝和稀土氧化物混合颗粒(稀土氧化物比列分别为 10%,30%,50%)的铝合金材料进行 4 道次的搅拌.

表 1 2219-O 铝合金的化学成分(质量分数,%)

Table 1 Chemical compositions of 2219-O aluminum alloy

Al	Cu	Mn	Si	Zr	Fe
92.1	6.48	0.32	0.49	0.2	0.23

表 2 2219-O 铝合金的力学性能

Table 2 Mechanical properties of 2219-O aluminum alloy

抗拉强度 $R_m$ /MPa	屈服强度 $R_{eL}$ /MPa	断后伸长率 $A$ (%)
159	144	17.5

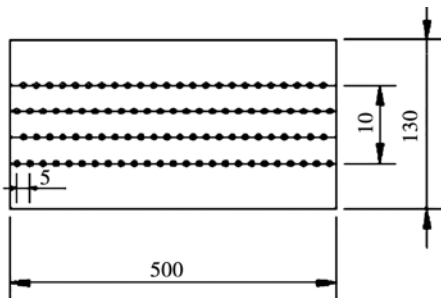


图 1 加工示意图(mm)

Fig. 1 Schematic of processing

加工完成后沿试样横截面(轧制方向)截取试样,用混合酸(1.0% HF + 1.5% HCl + 2.5% HNO<sub>3</sub> + 95.0% H<sub>2</sub>O)对抛光后的试样进行腐蚀,在光学显微镜下观察母材和 FSP 加工区的微观组织,并对接头试样进行 SEM,EDS 及 XRD 测试分析. 采用 HVS-30 数显维氏硬度计对断面进行硬度测试. 根据国家标准 GB/T-228-2010《金属材料室温拉伸试验方法》分别对标准接头试样和纯复合材料取样,并在电子万能试验机上. 以 1 mm/min 的拉伸速度进行室温拉伸试验,每组拉伸试验取 3 个试样.

## 2 试验结果与分析

### 2.1 搅拌摩擦加工区的显微组织

图 2 为经过搅拌摩擦加工后试样加工区域的横截面宏观形貌,与搅拌摩擦焊类似,加工区域分为搅拌区(friction stir zone,简称 SZ)、热力影响区(thermo mechanically affected zone,简称 TMAZ),热影响区(heat affected zone,简称 HAZ). 搅拌区位于搅拌区域中心,搅拌区外围是热力影响区,这部分发生了明显的塑性变形,热力影响区以外到母材之间的部分

是热影响区. 前进侧力影响区和搅拌区形成明显分界线,后退侧相对模糊.

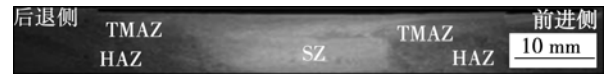


图 2 搅拌加工区域横截面

Fig. 2 Cross section of processing area

不同稀土氧化物含量的试样金相显微组织相似,以 30% 稀土含量试样为对象进行分析.

图 3 为 2219-O 铝合金搅拌摩擦加工各区域显微组织,其中图 3a、图 3b、图 3c 和图 3d 分别为母材区、搅拌区、热力影响区及热影响区.

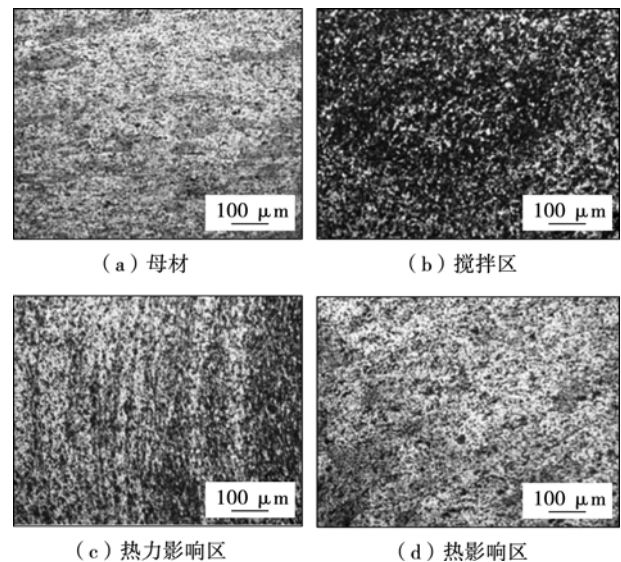


图 3 2219-O 铝合金搅拌摩擦加工各区域显微组织

Fig. 3 Microstructure of 2219-O aluminium alloy by friction stir processing

母材主要为  $\alpha$  铝,由图 3a 可看出其晶粒呈板条状沿轧制方向分布. 图 3b 为搅拌区,该区在加工中受到搅拌针充分的搅拌,材料发生剧烈塑性变形,同时在搅拌热影响下,其组织发生充分的动态再结晶,新形成的组织为等轴的晶粒,强化相的数量明显增多,晶界较难分辨. 图 3c 为热力影响区,该区域的材料产生剧烈的塑性变形,但由于距离搅拌针中心相对较远,塑性变形和热影响程度不如搅拌摩擦区剧烈,晶粒发生了较大的弯曲、变形,在被拉长的晶粒内部开始有新的晶粒生成. 图 3d 为热影响区,HAZ 的组织形貌和母材基本相同,只是晶粒稍大些. 因为该区在加工时仅受到加热,没有受到搅拌,不会产生新的等轴晶粒,热的作用使原来的晶粒长大,使晶粒发生回复但没有发生再结晶,通过对比可以发

现 HAZ 的晶粒也比 TMAZ 的大,造成该区接头性能较差。

图 4 为增强颗粒在基体金属中的分布以及搅拌摩擦加工后接头中的相分布。由图 4a 明显可以看到,加入的颗粒经过搅拌摩擦加工后,弥散分布于基体金属中,而且分布均匀,这对基体金属起到一个很好的弥散强化作用。对这些弥散分布的小颗粒进行 EDS 分析,结果见表 3,其成分主要为 RE/ $\text{Al}_2\text{O}_3$ 。通过图 4b 可看出经搅拌摩擦加工后基体上以及晶界处有许多白色颗粒,通过对其进行 EDS 分析,结果见表 4,白色颗粒为  $\theta(\text{CuAl}_2)$  相。

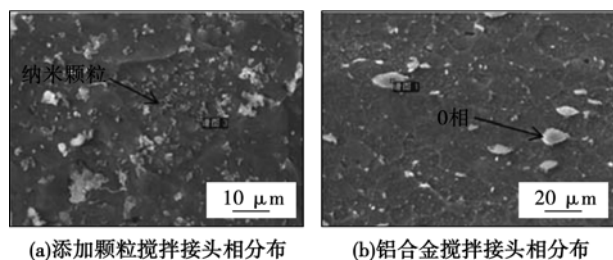


图 4 颗粒增强表面复合层的扫描电子显微镜图  
Fig. 4 SEM of particles of surface composite layer

表 3 添加颗粒能谱分析(EDS)  
Table 3 EDS of particles

元素	质量分数 $w(\%)$	原子分数 $a(\%)$
O	11.24	20.97
Al	58.49	64.71
Cu	28.65	13.46
Ce	3.08	0.59

表 4 沉淀相的能谱分析(EDS)  
Table 4 EDS of precipitates

元素	质量分数 $w(\%)$	原子分数 $a(\%)$
O	1.51	3.37
Al	54.65	72.08
Cu	43.83	24.55

## 2.2 XRD 分析

图 5 为搅拌摩擦加工试样各部位的 XRD 图谱,从图 5 中可以看出,3 个区域主要由  $\alpha(\text{Al})$  和  $\text{CuAl}_2$  相组成。而由 XRD 图谱的强度来看,搅拌区的金属间化合物峰值强度最低,一些峰已接近消失,说明在多次搅拌及添加颗粒作用下,金属间化合物的数量逐渐减少。因添加颗粒占搅拌区整体比例偏小,在 XRD 图谱中未发现其它析出相。

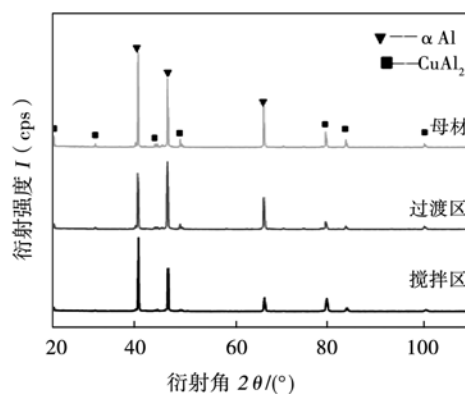


图 5 XRD 图谱  
Fig. 5 XRD spectrum

## 2.3 硬度分布

搅拌区的微观组织决定复合层的力学性能,而搅拌加工区各区在组织上的差异又会在硬度反映出来。以搅拌加工区为中心,测得不同稀土比例下复合区材料横截面的硬度分布、未添加颗粒材料经 1 次和 4 次搅拌加工后加工区横截面的硬度分布如图 6 所示。

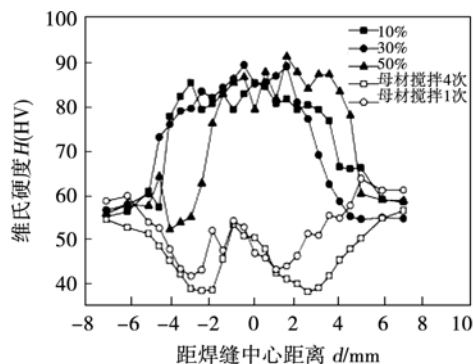


图 6 搅拌区硬度分布  
Fig. 6 Hardness distribution of stir zone

从图 6 中可以看出,稀土比例对复合材料硬度性能的影响不大,但整个复合区材料的硬度比母材高得多,其平均硬度可达到母材硬度的 160%。未添加颗粒经 1 次和 4 次搅拌加工后的区域硬度相对较低,都呈 W 形分布,且其中心区域硬度都与母材相当。说明在搅拌摩擦加工过程中添加颗粒对复合材料硬度性能的影响比多次搅拌对加工区材料硬度性能的影响大。

## 2.4 拉伸性能

### 2.4.1 搅拌接头拉伸性能

搅拌接头拉伸结果如图 7。从图 7 中可以看出,三种稀土比例的试样在室温下拉伸,其抗拉强度相

近,都达到了母材强度的 94%,同时屈服强度达到母材的 75%,类似“接头”的断后伸长率虽然有所下降,但达到了母材的 80% 以上。

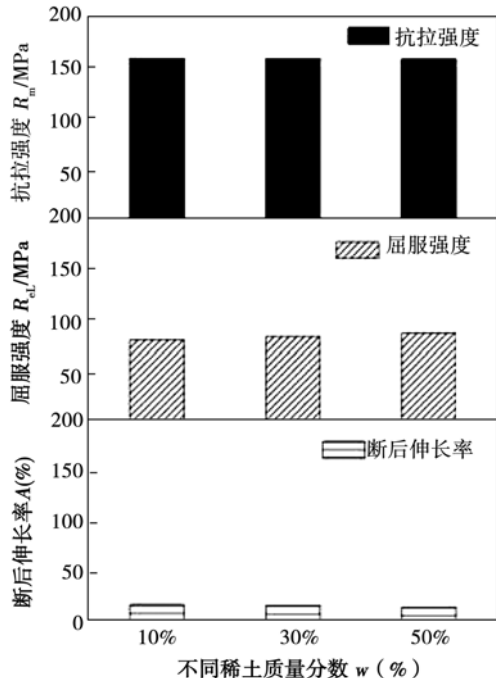


图 7 搅拌接头拉伸性能

Fig. 7 Tensile property of joint

#### 2.4.2 复合区拉伸性能

因搅拌摩擦加工主要目的是制备金属基复合材料,单独对搅拌区进行取样分析,纯复合材料的拉伸试验结果如图 8 所示.从图 8 中可知,3 种稀土比例的纯复合层试样力学性能相差不大.其中 10% 稀土的金属基复合材料强度和断后伸长率最高,与母材相比,其抗拉强度是母材的 163%,屈服强度是母材的 195%,而断后伸长率则为母材的 69.7%。

通过以上分析可知与母材相比,复合材料的硬度、抗拉强度等都有显著的提高.因此,通过搅拌摩擦加工制备纳米复合颗粒增强铝基复合材料,对铝合金的应用及制备新材料来讲都是一种有效的技术方法。

#### 2.5 大块复合材料制备探索

目前,文献及文中基于 FSP 技术制备金属基复合材料制备的研究基本都是采用单道多次搅拌方式,而要真正工程应用,必须制备大块复合材料,文中对大块铝基复合材料制备进行了试制,制备过程见图 9。

制备过程发现在进行多道多次搅拌时,前道金属对后道金属有挤压作用,致使后道孔中粉末挤出,同时由于添加粉末与基体固溶致密化后会造成局部

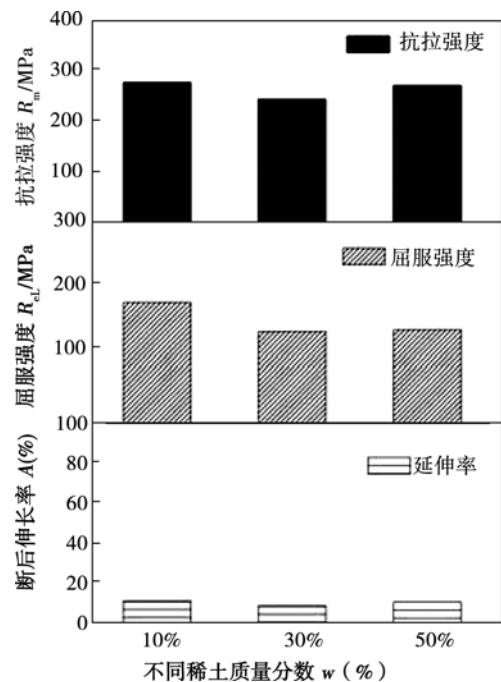


图 8 复合材料拉伸性能

Fig. 8 Tensile properties of composite materials



图 9 大块复合材料制备

Fig. 9 Preparation of large pieces of composite material

缺粉严重,从而在后续焊接中会产生隧道缺陷.因此,在以后 FSP 制备金属基复合材料研究中,应当重点研究如何保证添加粉末的致密及防止由于挤压变形引起粉末的外漏等,以防止隧道缺陷产生。

### 3 结 论

(1) 采用搅拌摩擦加工的方法成功制备了 RE/

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 铝基复合材料, 显著地改善了铝合金的强度、硬度等力学性能。

(2) RE/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 铝基复合材料的硬度可达到母材的 160%, 不同比例的稀土对复合材料的硬度性能影响不大。

(3) 经过搅拌摩擦加工后的接头抗拉强度达到了母材的 94%, 断后伸长率达到母材的 80% 以上。但纯复合材料的抗拉强度是母材的 163%, 断后伸长率为母材的 69.7%。

(4) 在试验工况下, 复合颗粒中纳米稀土氧化物含量的比例对材料力学性能的提高影响不大。

### 参考文献:

- [1] 贺地球, 邓 航, 周鹏展. 2219 厚板搅拌摩擦焊组织及性能分析[J]. 焊接学报, 2007, 28(9): 13-16.  
He DiQiu, Deng Hang, Zhou Pengzhan. Analysis and performance of friction stir welding organization 2219 plate[J]. Transactions of the China Welding Institution, 2007, 28(9): 13-16.
- [2] 王春炎, 曲文卿, 姚君山, 等. 2219-T87 铝合金搅拌摩擦焊接头组织与力学性能[J]. 焊接学报, 2010, 31(10): 77-80.  
Wang Chunyan, Qu Wenqing, Yao Junshan, *et al.* Head of microstructure and mechanical properties of friction stir welded 2219-T87 aluminum alloy[J]. Transactions of the China Welding Institution, 2010, 31(10): 77-80.
- [3] Liu H J, Fu H, Maeda M. Tensile properties and fracture locations of friction-stir welded joints of 6061-T6 aluminum alloy[J]. Journal of Material, Science Letters, 2003, 22(15): 1061-1063.
- [4] Ohishi K, McNelley T R. Microstructural modification of as-cast Ni-Al bronze by friction stir processing[J]. Metallurgical and Materials Transaction A 2004, 35: 2951-2961.
- [5] 王开东, 常丽丽, 王铁农, 等. 搅拌摩擦加工技术制备 Ti 颗粒增强 AZ31 镁基复合材料[J]. 中国有色金属学报, 2009, 19(3): 418-423.  
Wang Kaidong, Chang Lili, Wang Yinong, *et al.* Preparation of Mg-AZ31 based composites with Ti particles by friction stir processing[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2009, 19(3): 418-423.
- [6] 钱锦文, 李京龙, 熊江涛, 等. 搅拌摩擦加工原位反应制备 Al<sub>3</sub>Ti-Al 表面复合层[J]. 焊接学报, 2010, 31(8): 61-64.  
Qian Jinwen, Li Jinglong, Xiong Jiangtao, *et al.* Preparation of Al<sub>3</sub>Ti-Al composite surface layer friction stir processing in situ reaction system[J]. Transactions of the China Welding Institution, 2010, 31(8): 61-64.
- [7] GL You, NJ Ho, PW Kao. In-situ formation of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanoparticles during friction stir processing of Al-SiO<sub>2</sub> composite[J]. Materials Characterization, 2013, 80: 1-8.
- [8] Hossein Izadi, AdrianP Gerlich. Distribution and stability of carbon nanotubes during multi-pass friction stir processing of Carbon nanotube/aluminum composites [J]. Carbon, 2012 (50): 4744-4749.
- [9] 陈迎春, 刘会杰, 冯吉才. 2219-0 铝合金的搅拌摩擦焊接[J]. 焊接学报, 2006, 27(1): 65-68.  
Chen Yingchun, Liu Huijie, Feng Jicai. Friction stir welding of 2219-0 aluminium alloy[J]. Transactions of the China Welding Institution, 2006, 27(1): 65-68.

**作者简介:** 肖长源, 男, 1989 年出生, 硕士研究生, 主要从事搅拌摩擦加工/焊工艺方面研究。发表论文 1 篇。Email: 657151057@qq.com

**通讯作者:** 李 达, 男, 副教授, 硕士研究生导师。Email: hardfasting@126.com

### [上接第 60 页]

- [8] Beygi R, Kazeminehad M, Kokabi A H. Microstructural evolution and fracture behavior of friction-stir-welded Al-Cu laminated composites[J]. The Minerals, Metals & Materials Society and ASM International, 2013, (45): 361-370.
- [9] 杜岩峰, 白景彬, 田志杰, 等. 2219 铝合金搅拌摩擦焊温度场的三维实体耦合数值模拟[J]. 焊接学报, 2014, 35(8): 57-60.  
Du Yanfeng, Bai Jingbin, Tian Zhijie, *et al.* Investigation on three-dimensional real coupling numerical simulation of temperature field of friction stir welding of 2219 aluminum alloy[J]. Transactions of the China Welding Institution, 2014, 35(8): 57-60.
- [10] 张洪武, 张 照, 陈金涛, 等. 搅拌摩擦焊接过程的有限元模拟[J]. 焊接学报, 2005, 26(9): 13-18.  
Zhang Hongwu, Zhang Zhao, Chen Jintao, *et al.* Finite element analysis of friction stir welding process[J]. Transactions of the China Welding Institution, 2005, 26(9): 13-18.

**作者简介:** 王希靖, 男, 1956 年出生, 教授, 博士生导师。主要从事焊接设备及其自动化、搅拌摩擦焊技术及焊接质量控制方面的研究工作, 发表论文 120 余篇。Email: wangxj@lut. cn

**通讯作者:** 许有伟, 男, 硕士研究生。Email: xuyouwei\_lut@163.com