

SiC_f/Al 复合材料的界面性能及机制*

朱祖铭 郭延风 石南林 朱桂秋 马通达

(中国科学院金属研究所材料疲劳断裂国家重点实验室)

摘 要 通过对 SiC 纤维表面富 C、富 SiO₂ 和双涂层处理的 SiC_f/Al 复合材料试样的不同热压制备工艺研究,发现热压温度和压力均对纤维表面改性后的界面性能有相当大的影响,温度和压力的提高改善了富 SiO₂ 处理试样的界面性能,却使富 C 和双涂层处理试样的界面性能蜕化,研究了产生这种影响的机制。

关键词 SiC_f/Al 复合材料 热压温度和压力 界面性能

分类号 TB331

文章编号 1005-3093(2002)01-0059-08

INTERFACE PROPERTIES OF SiC_f/AL COMPOSITE AND ITS MECHANISM

ZHU Zuming** GUO Yanfeng SHI Nanlin ZHU Guiqiu MA Tongda
(State Key Laboratory for Fatigue and Fracture of Materials, Institute of Metal Research,
The Chinese Academy of Sciences, Shenyang 110016)

* Supported by national natural science foundation of China No.59781005. Manuscript received Nov 30, 2000; in revised form Jun 29, 2001.

** To whom correspondence should be addressed, Tel:(024)23843531,
E-mail:zmzhu@imr.ac.cn

ABSTRACT Study on various hot pressing technology of manufacturing SiC_f/Al composite treated with rich c, rich SiO₂ and double coating (first coated with C, then BN) has been carried out. It is found that temperature and pressure for preparing sample by hot pressing have an important influence on properties of interface between fiber and matrix. Interface properties of SiC_f/Al treated with rich SiO₂ has been improved, whereas interface properties of SiC_f/Al treated with rich C degenerated at elevated temperature and pressure of hot pressing. Moreover, interface properties of SiC_f/Al has been improved with double coating, but degenerated at over high temperature and pressure of hot pressing. The mechanism of effect of temperature and pressure on interface properties has been investigated. Interface products play an important role in interface properties.

KEY WORDS SiC_f/Al composite, temperature and pressure of hot pressing, interface properties

对连续纤维增强的金属基复合材料 (CFRMC), 界面既是增强纤维和金属基体间的连接单元, 它通过切变把基体上的载荷传递到承载元纤维上, 又起吸收能量、缓解应力集中、阻止裂纹扩展和保护纤维的作用, 所以它对 CFRMC 的性能十分重要^[1]. 在 CFRMC 的制备过程中, 增强纤维与金属基体间通过扩散发生反应生成界面产物而影响界面性能. 在研究了热压制备工艺中的温度和压力的变化对纤维表面富 SiO₂ 处理的 SiC_f/Al 界面性能的影响^[2] 的基础上, 本文研究热压温度和压力对纤维表面富 C、富 SiO₂ 和双涂层处理的 SiC_f/Al 试样界面性能的影响.

* 国家自然科学基金资助项目 59781005. 2000 年 11 月 30 日收到初稿; 2001 年 6 月 29 日收到修改稿.
本文联系人: 朱祖铭, 沈阳市 110016, 中国科学院金属研究所材料疲劳与断裂国家重点实验室

1 实 验 方 法

采用 CVD 化学气相沉积法制备 SiC 纤维, 直径为 $100\mu\text{m}$, 中心 W 丝的直径为 $10\mu\text{m}$. 在纤维表面先涂 C, 再涂一层氮化硼 (BN). 在富 C 和富 SiO_2 涂层处理后, 将纤维与 Al 基体经真空热压处理成 SiC_f/Al 试样. 通过温度和压力的变化来改变热压工艺 (表 1).

表 1 试样的制备工艺
Table 1 Technology for preparing samples

No.	Technological parameters		
	Temperature/ $^{\circ}\text{C}$	Pressure/MPa	Heat preservation time/min
RC1	520 ± 2	35 ± 1	60
RC2	570 ± 2	40 ± 1	60
RD1	520 ± 2	35 ± 1	60
RD2	570 ± 2	40 ± 1	60
RSiO ₂ 1	520 ± 2	35 ± 1	60
RSiO ₂ 2	570 ± 2	40 ± 1	60

在 Schenck Trebel 型机械伺服材料试验机上进行拉伸试验, 应变速率为 0.5 mm/min , 用 X-Y 记录仪记录应力-应变曲线. 在拉伸试验的同时, 进行声发射 (AE) 实时监测, 所用 AE 系统为 LOCAN AT 型多功能声发射仪. 试样产生的 AE 信号, 在表面透过耦合剂传到换能器, 使机械振动变成电信号, 经前置放大、滤波、主放大和信号处理进入计算机分析处理, 系统总增益为 90dB , 带宽为 $100\sim 300\text{ kHz}$. 用冷场发射扫描电镜 (FE-SEM) 进行微观观察试样的断口和纵剖面, 从纤维中心经界面到 Al 基体作元素的组成分析, 所用仪器的型号为 JSM-6301F, 配置了 ISIS-300 系能谱仪, 图象分辨率为 1.5 nm .

2 结 果 与 讨 论

由表 2^[3] 可见, 不同种类的表面处理对界面和复合材料性能的作用是不同的: 经双涂层处理比原单涂层富 C 处理的界面性能 (τ_i) 和复合材料性能 (σ_f) 有较大改善^[4], 富 SiO_2 处理也比富 C 处理能更好的改善 τ_i ^[5]. 同类表面处理, 但热压温度和压力不同, 对界面和复合材料性能也有相当大的影响, 对富 C 涂层和双涂层试样而言, 温度和压力高的 RC2 和 RD2 分别比 RC1 和 RD1 的 τ_i 和 σ_f 要小, 而对 SiO_2 涂层而言, 随着热压温度和压力的提高, 其 τ_i 与 σ_f 均增加.

表 2 不同热压工艺试样的界面强度和纤维强度
Table 2 Strength of interface and fiber of various hot pressing technologies

No.	τ_i/MPa	σ_f/MPa
RC1	1.27 ± 0.4	117.44 ± 13
RC2	0.64 ± 0.2	102.58 ± 12
RD1	9.38 ± 2.0	408.30 ± 20
RD2	5.06 ± 1.0	337.54 ± 18
RSiO ₂ 1	2.79 ± 0.6	128.34 ± 14
RSiO ₂ 2	5.85 ± 1.0	209.76 ± 16

由图 1 可见, 热压温度和压力由 $520\text{ }^\circ\text{C}$ 、 35MPa 升高到 $570\text{ }^\circ\text{C}$ 和 40MPa , 高于 80dB 的大幅度信号减少, 位于 40dB 和 80dB 之间的中幅信号却增加较多, 反之, 大幅信号增多, 中幅信号减少. 从图 1 的 AE 数据就可判知^[6], RC2 比 RC1, RD2 比 RD1, RSiO_21 比 RSiO_22 的界面强度 τ_i 和纤维强度 σ_f 低, 复合材料性能变坏. 微观分析研究了它们的原因所在. 图 2 表明, RC2 的界面比 RC1 的宽, 微裂纹更多. 这是由于 RC2 的温度和压力都比 RC1 高的较多, Al 向界面内的 C 扩散得更多, 生成反应

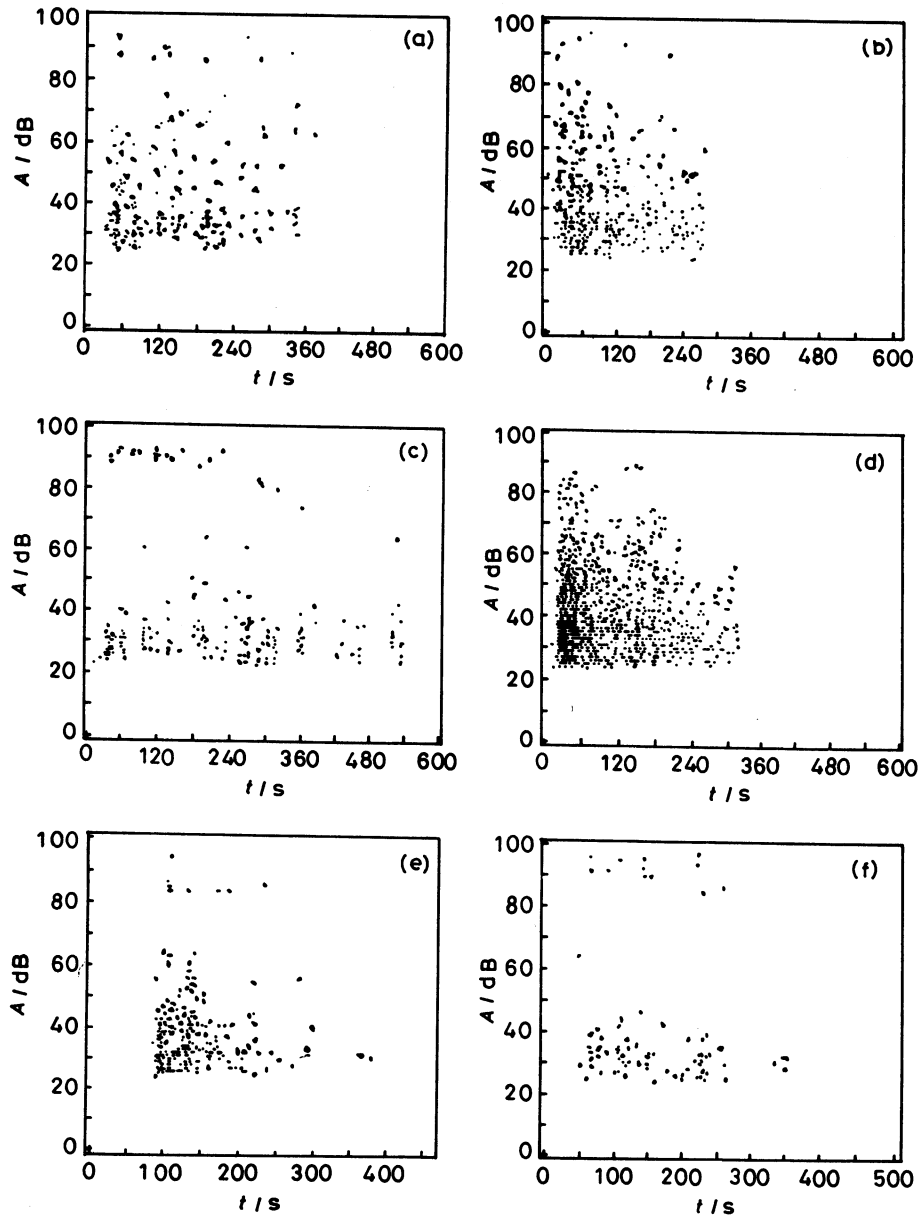


图 1 各试样的 AE 幅度 A 与时间 t 的关系

Fig.1 AE amplitude (A) vs time (t) of samples (a) RC1, (b) RC2, (c) RD1, (d) RD2, (e) RSiO_21 and (f) RSiO_22

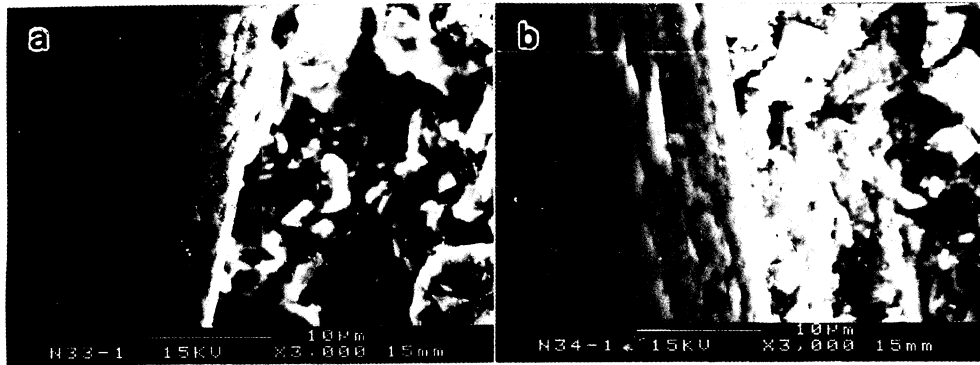


图 2 富 C 处理试样的界面形貌

Fig.2 Interface morphology of C-riched samples (a) RC1, (b) RC2

产物-Al、C脆性相更多,导致界面脆化,微开裂更严重,使图1(b)中的中幅信号也更多。

图3表明,界面处纤维一侧,C元素出现峰值,是纤维的富C层,Al元素在界面处有一小峰,二峰重叠,表明有少量的Al、C脆性相生成。但温度和压力较高的RC2试样,在界面附近重叠的C和Al峰的宽度要宽得多,可见生成Al、C脆性相比RC1要多得多(图4),这再次证明超过500℃的材料中的Al、C元素因扩散会产生反应,生成 Al_4C_3 脆性相,反应速率随温度和压力的升高而加快,反应产物增多^[7]的这一工作的正确性。拉伸过程中因Al基体是软相,先形变,它通过界面把应力传递到承载元纤维上,又由于试样热压制备过程中, SiC_f/Al 中各组元的热膨胀系数不同和原子错配区引起的晶格畸变,引入内应力,内应力和外应力在纤维及Al、C脆性相附近相叠加,产生局部应力集中,随着外应力的增加,达到局部屈服,使位错开动,在纤维和Al、C脆性相等障碍物前受阻而塞积,使应力进一步增加,在纤维薄弱处,局部应力达到该处纤维的断裂强度时,纤维发生断裂,因其弹性模量大,释放高幅度的大信号,同样在Al、C脆性相处塞积的位错,使局部应力升高,随着外应力的增加,局部应力达到界面断裂强度时,界面就开裂,由于界面强度处于纤维和基体间,界面开裂时释放中幅AE信号,所以图1中的大、中信号分别来自纤维和界面的断裂^[8]。由于RC2的热压温度和压力均比RC1的

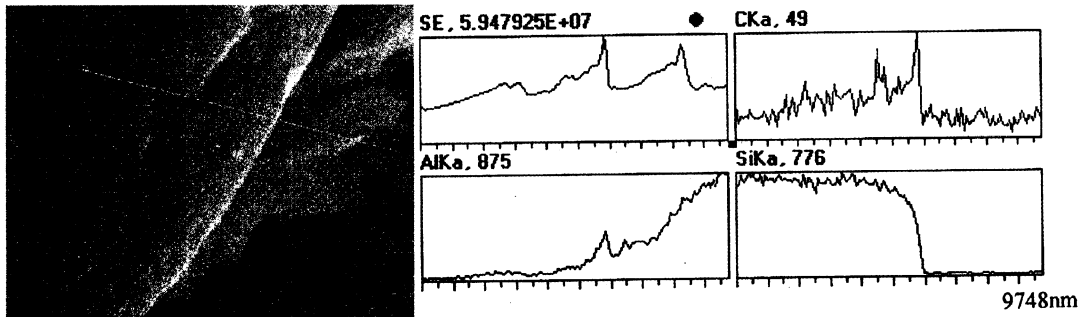


图 3 RC1 试样界面及其元素线扫描图

Fig.3 Interface of RC1 and its linescan of elements

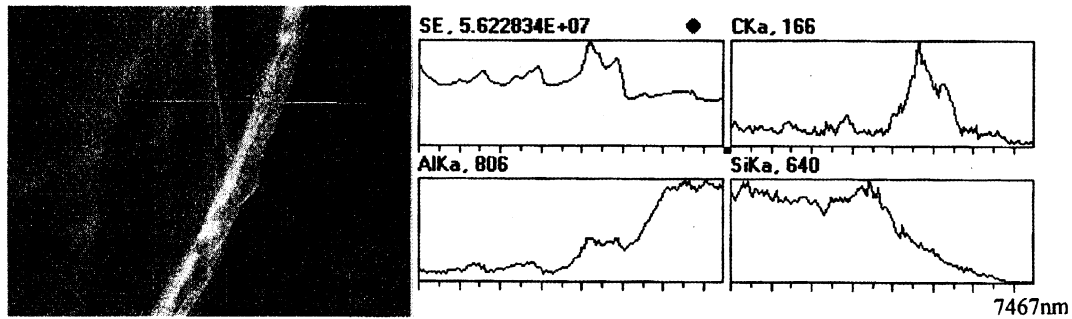


图 4 RC2 试样界面及其元素线扫描图

Fig.4 Interface of RC2 and its linescan of elements

高的较多, RC2 界面内生成 Al、C 脆性相多, 界面性能差, 基体和界面结合也差, 使运动位错受阻塞积的也较多, 导致界面开裂多, 应力也不断松弛, 所以 RC2 的界面传递载荷的能力差于 RC1, 这就是 RC2 纤维断裂次数和 AE 大信号少于 RC1, 界面开裂和 AE 中信号较 RC1 的多的原因所在。图 5 为 RC2 试样的断口照片, 图中的脱粘清楚表明界面性能差, 纤维和基体结合差, 重滑移带的存在是纤维和界面处的局部应力集中使大量位错运动所致。

由图 6 可见, 经双涂层处理后, 外部的 BN 层保护了内部的富 C 层, 故图中的界面光滑、微开裂少, 比图 2 中的涂 C 的界面好得多, 尤其 RD1 的界面 (图 6a) 比 RD2 的界面 (图 6b) 更光滑, 几乎

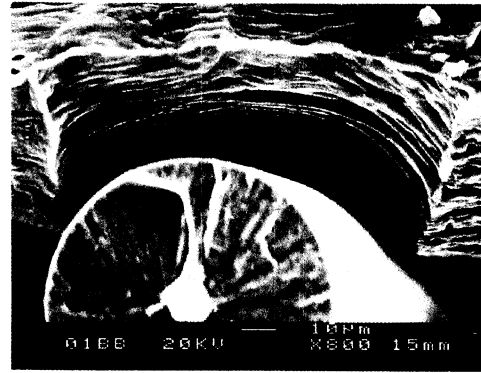


图 5 RC2 试样的断口形貌

Fig.5 Fractograph of RC2

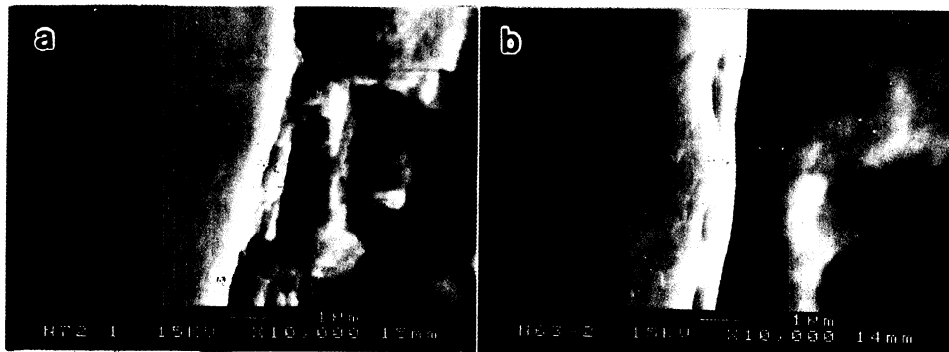


图 6 界面形貌 (a)RD1 和 (b)RD2

Fig.6 Interface morphology of (a) RD1 and (b) RD2

看不到微裂纹,表明它的界面结合更好.这导致 RD1 的 τ_1 和 σ_f 高于 RD2 的.双涂层试样的 τ_1 比单涂层 C 的 τ_1 高很多, σ_f 也高(表 2).图 7(a)表明, RD1 试样的界面处, Al 元素陡降,而 C 元素有峰出现,表明 Al、C 没有反应生成脆性相,因此界面结合良好, τ_1 高,拉伸过程不易开裂,能较好地传递载荷.但图 7(b)表明,界面处有 C 峰,界面中有较多的 Al 元素存在,分布向内部逐渐减少,表明由于该类试样的温度、压力过高,在足够时间内,界面外侧的 Al 元素突破 BN 的阻挡,向界面内扩散,有可能与 C 涂层中的 C 反应生成脆性相,降低了界面性能.因而 RD2 试样中的界面易开裂,导致界面传递载荷的能力劣于 RD1,故 RD2 试样的纤维断裂次数少于 RD1.这就是图 1(c)中的大幅信号多于图 1(d),中幅信号少于图 (d) 的原因所在.由此可见,热压温度过高,压力过大,保温时间过长,双涂层中 BN 保护 C 涂层的作用就会受到破坏,界面性能随之蜕化,表 1 的数据再次证明了上述分析.

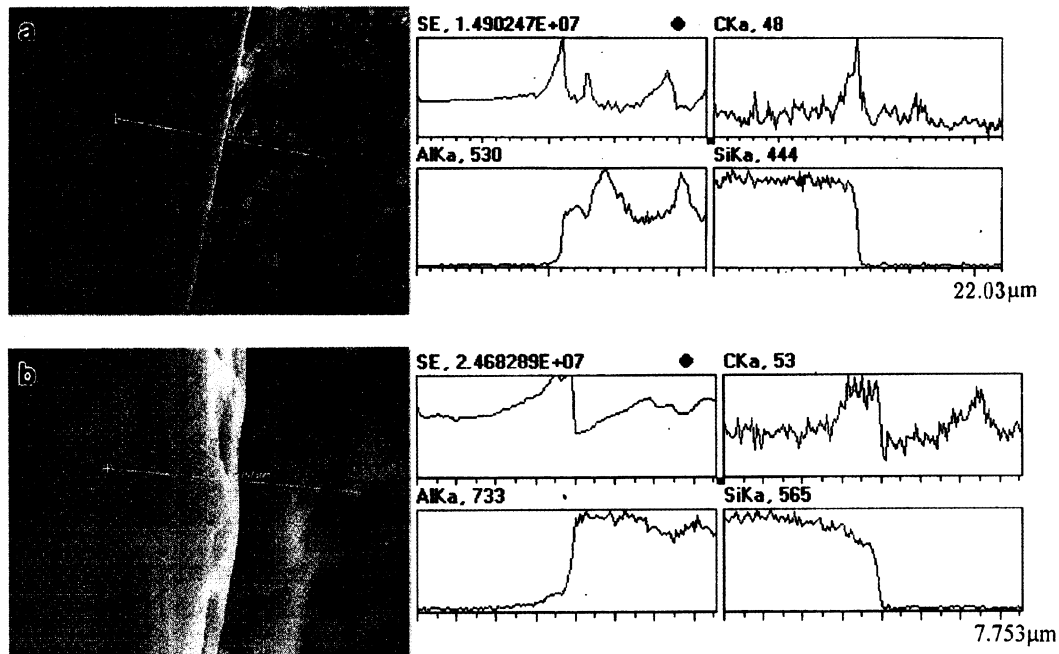
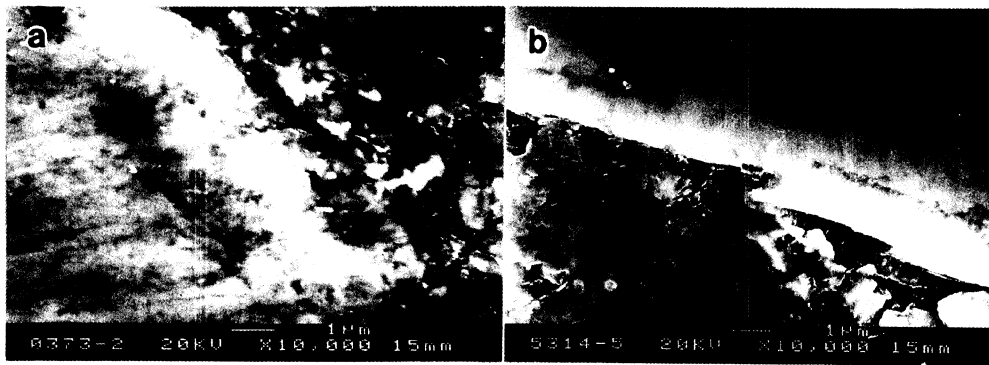
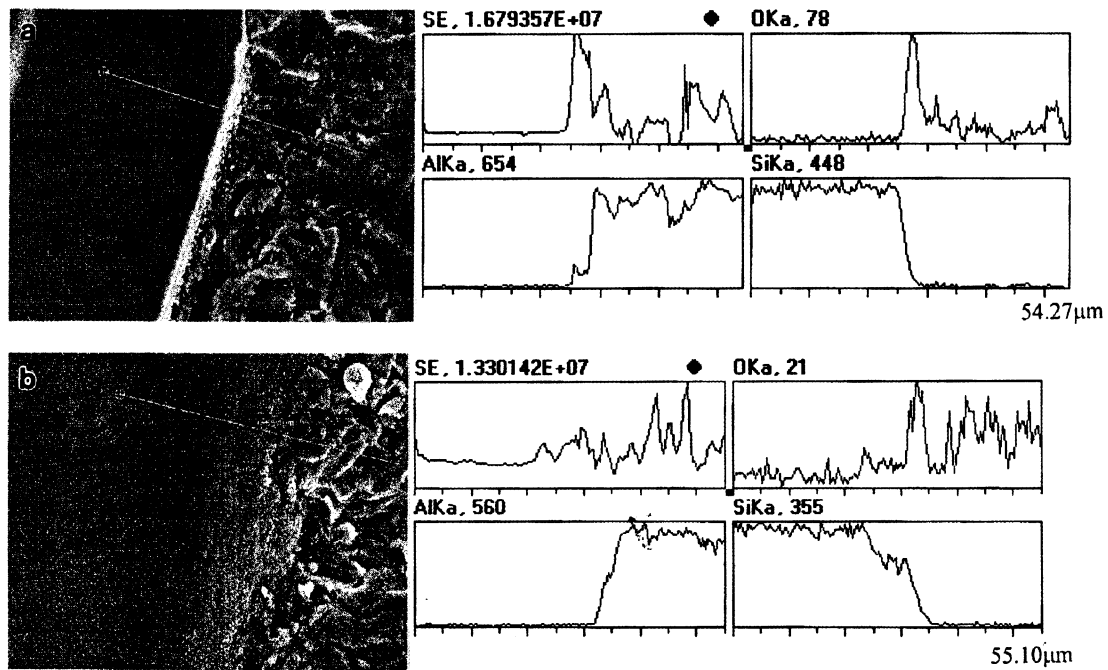


图 7 双涂层试样界面及其元素的线扫描图

Fig.7 Interface of samples with double coating and its linescan of elements (a) RD1 (b) RD2

图 8 表明, RSiO_22 比 RSiO_21 的界面致密,这是由于前者的温度和压力高,促进了界面 Al 元素向界面内的扩散,使与 SiO_2 反应生成 Al_2O_3 和游离 Si 的反应产物增多, Al_2O_3 与 Al 不起反应,有较好的化学相容性,改善了界面结合,使 RSiO_22 的 τ_1 比 RSiO_21 的高(表 1),也改善了界面传递载荷的能力,使纤维断裂次数增多,大信号多,而界面开裂次数少,中幅信号也少(图 1e 和 f).对比富 C 处理试样的界面形貌(图 2),富 SiO_2 处理后的试样,界面结合要比前者好,故相应的 τ_1 也高.由图 9(a)可见,在界面处 O 峰与一小 Al 峰重叠,证明有 Al、O 化合物生成,而未生成脆性相,改善了界面的性能.图 9(b)显示了界面附近与 O 峰重叠的 Al 峰变大,这意味着 Al、O 化合物增多,显然由于温度、压力的升高,加速扩散所致,因而 RSiO_22 的界面性能优于 RSiO_21 ,从而也改善了 σ_f 的性能,故有表 1 的结果,这也是图 1(f)比 (e) 中的大幅信号多,中幅信号少的原因.

图 8 富 SiO_2 处理试样的界面形貌Fig.8 Interface morphologies of samples with rich SiO_2 (a) RSiO_2 1 (b) RSiO_2 2图 9 富 SiO_2 处理的试样界面及其元素线扫描图 (a) RSiO_2 1(b) RSiO_2 2Fig.9 Interfaces of samples with rich SiO_2 and its line scan of elements (a) RSiO_2 1 (b) RSiO_2 2

3 结 论

温度和压力过高,使涂 C 处理的材料界面中 Al、C 脆性相形成更多导致界面性能降低,纤维强度也变小。双涂层处理克服了单 C 涂层材料界面内易生成 Al、C 脆性相降低界面性能的缺点,大大改善界面性能。但若热压温度、压力过高,会破坏外涂层 BN 的保护作用,使界面性能蜕化。热压温度和压力能改善富 SiO_2 处理材料的界面性能。

参 考 文 献

- 1 GUO Yanfeng(郭延风), ZHU Zuming(朱祖铭), SHI Nanlin(石南林), DAI Bing(戴 兵), Chinese Journal of Materials Research(材料研究学报), **13**(1), 76(1999)
- 2 MA Tongda(马通达), Study on effect of heat treatment and coating on interface properties of SiC_f/Al composite, (热处理及涂层处理对 SiC_f/Al 复合材料界面性能影响的研究) Thesis (Master) ((硕士) 学位论文), Institute of Metal Research, Chinese Academy of Sciences (中国科学院金属研究所 (1999))
- 3 ZHU Zuming(朱祖铭), SHI Nanlin(石南林), WANG Zhongguang(王中光), LIANG Yong(梁 勇), Acta Metallurgica(金属学报), **32**(9), 998(1996)
- 4 (ZHU Zuming(朱祖铭), GUO Yanfeng(郭延风), SHI Nanlin(石南林), ZHU Guiqiu(朱桂秋), FENG Jiwei(冯纪伟), Chinese Journal of Materials Research(材料研究学报), **16**(1), 67(2002)
- 5 Zuming Zhu, Yanfeng Guo, Nanlin Shi, Progress in Acoustic Emission 1X, V-29(1998)
- 6 ZHU Zuming(朱祖铭), SHI Nanlin(石南林), WANG Zhongguang(王中光), LIANG Yong(梁 勇), Acta Metallurgica(金属学报), **32**(9), 1003(1996)
- 7 I.H.Kham, Metall, Trans. A, **7A**, 1281(1976)
- 8 ZHU Zuming(朱祖铭), SHI Nanlin(石南林), GUO Yanfeng(郭延风), Chinese Journal of Materials(材料研究学报), **11**(1), 15(1997)