

SiC_p/6061Al 复合材料的界面优化与控制^①

崔 岩

(北京航空材料研究院先进复合材料国防科技重点实验室, 北京 100095)

耿 林 姚忠凯

(哈尔滨工业大学材料科学工程学院, 哈尔滨 150001)

摘 要 系统地研究了一种控制 SiC_p/Al 复合材料中轻微界面反应的新工艺, 并通过界面结构观察和弯曲性能测试, 成功地评价了该工艺的效果。结果表明: 酸洗工艺可以通过改变碳化硅颗粒表面的化学特性来实现 SiC-Al 界面状态的优化及控制, 进而达到调整该种复合材料的力学性能、以适应不同应用工况条件的目的。

关键词 碳化硅颗粒 铝基复合材料 酸洗 界面优化及控制

界面是制约复合材料性能的关键因素, 同时界面效应的存在也为复合材料的设计与改进提供了广阔的途径^[1]。因此, 通过界面的优化与控制来实现复合材料的性能设计, 以期满足不同应用背景的要求, 这已渐渐成为人们公认的研究重点。但现有的研究结果主要局限于以长纤维作为增强相的复合材料, 而就非连续增强金属基复合材料来说, 有关界面控制的研究工作却开展得很少, 且无统一结论^[2]。以其中最具应用前景的 SiC_p/Al 复合材料为例, 尽管人们毫不怀疑控制其界面反应, 形成最佳界面结构是该种材料生产、应用的关键技术问题, 但在具体而且实用的控制工艺方面却仅处于探索阶段^[3], 特别是以不影响基体本身的性能为前提条件的增强相表面处理工艺, 目前仅限于防止 SiC-Al 之间发生直接界面反应的涂层工艺: 用溶胶-凝胶法获得 MgO 或 Al₂O₃ 涂层^[4], 预氧化产生 SiO₂ 层^[5]。而涂层工艺却无法获得既无任何生成物又无过渡层的干净界面, 也很难控制轻微界面反应的发生与类型。本文的目的则在于提出一种行之有效的控制 SiC_p/6061Al 复合材料中发生轻微界面反应,

进而优化材料的界面状态与力学性能的新工艺; 试图通过电镜观察和弯曲性能测试来评价工艺效果, 并对控制原理加以探讨。

1 材料及试验过程

出于突出界面效应的考虑, 本文采取高体积分数(45%)、小粒径(3.5 μm)的设计方案。颗粒选用沈阳砂轮厂生产的纯度为 94.3% 的不规则形状碳化硅粒子, 基体为 6061 铝合金。制备方法为挤压铸造法, 压铸工艺参数见表 1。

表 1 压铸工艺参数

T_d/K	T_p/K	T_m/K	p/MPa	t/s
873	873	1073	100	180

T_d —模具预热温度; T_p —预制块预热温度; T_m —浇铸温度; p —保压压力; t —保压时间

本文在上述工艺条件下分别制备了两种 SiC_p/6061Al 复合材料, 两种材料在制备方法上唯一的区别是复合前碳化硅颗粒表面状态不同, 分别是原始态和酸洗态(在 5% 氢氟酸溶液中浸泡 2h)。本文利用 Philips CM-12 型透射电

① 国家自然科学基金重点资助项目 收稿日期: 1996-09-25; 修回日期: 1997-01-12

崔 岩, 男, 27 岁, 博士后

镜和 JEM-2000EX 型高分辨电镜对两种材料的界面结构进行了观察分析,并在 INSTRON-1186 型万能电子拉伸机上对材料的弯曲性能进行了测试。三点弯曲试样尺寸为 3.0 mm × 4.0 mm × 36.0 mm,跨距为 30 mm(符合 JIS 规范);为保证数据及结论的可靠性,每组包含七个试样,除样本均值外,还计算出每组数据的标准差。

2 试验结果及分析

2.1 界面观察与分析

对界面的 TEM 观察发现:在以原始态碳化硅颗粒作为增强相的复合材料中,多数界面上存在离散分布的小颗粒状界面反应物,尺寸约为 50~ 100 nm,如图 1 所示。对此物相进行了选区电子衍射操作和 EDAX 分析,结果为:包括图 2 在内的多套衍射斑点的标定结果均与具有尖晶石结构的 MgAl₂O₄ 一致,EDAX 分析也表明界面反应物是镁铝含量很高的物相。另外在 X 射线衍射图谱中也显示出 MgAl₂O₄ 的衍射峰。

由于氧化膜很薄,所以反应产物的数量应该较少。化学成分测定结果显示,由于该界面反应的发生使基体中的镁的含量由 1.03% 降至 0.69%。由此可以估算出,反应物的总量相当于在碳化硅表面均匀分布着 10 nm 厚的反应层,实际情况为与此相当数量的反应物以颗粒状离散分布于界面。这样就可以定量地证明界面状态为轻微反应型界面,至于该种界面状态对力学性能有何影响则需通过对比试验加以研究。

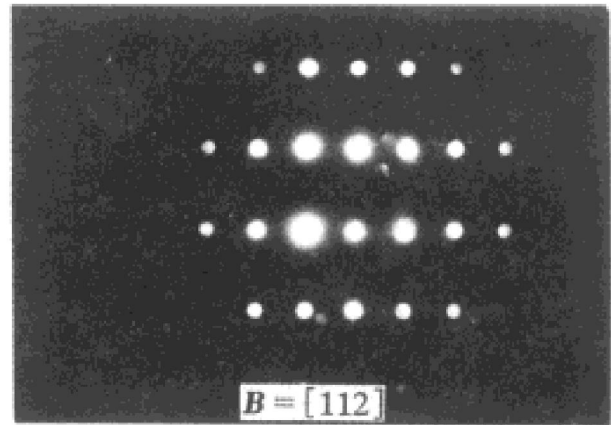


图 2 界面反应物[112]晶带的衍射花样

相比之下,与上述界面不同的是,在以经过酸洗的碳化硅颗粒作为增强相的复合材料中,界面则是干净的,界面上既无反应物也无非晶层,是 SiC-Al 之间的直接结合,见图 3 和图 4。不难推断出,这种干净界面的获得显然是由于在酸洗过程中碳化硅表面的氧化膜被氢氟酸所溶解,使新鲜的碳化硅表面在后续的复合过程中与铝合金直接结合构成干净界面,其

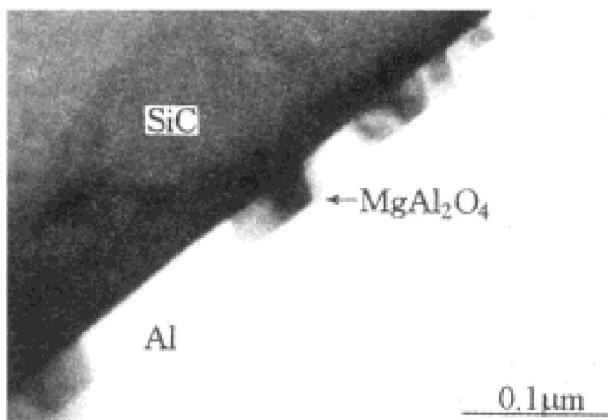


图 1 界面及界面反应物的 TEM 照片

文献[6-8]指出:该种界面产物的出现是原始态碳化硅表面固有的氧化膜(主要成分为 SiO₂)与熔融的铝合金之间发生化学反应的结果。目前普遍认可的反应方程式为

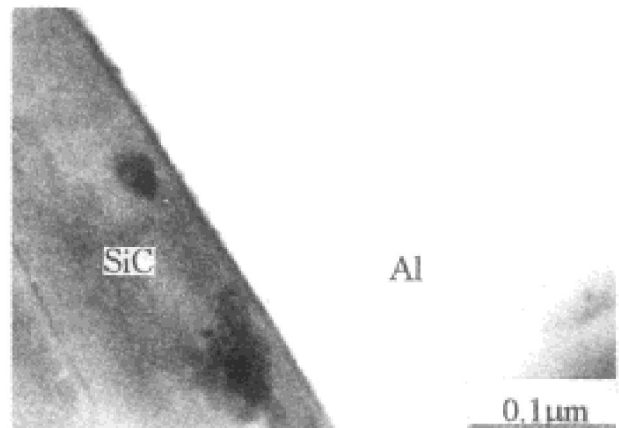
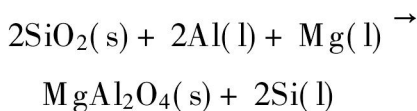


图 3 酸洗 SiC 作为增强相的界面形貌 TEM 照片

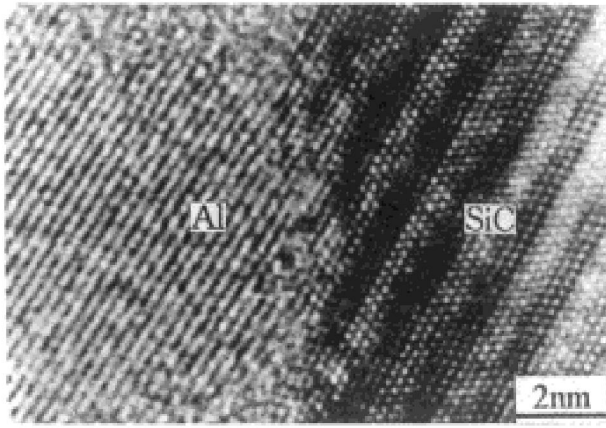


图4 酸洗 SiC 作为增强相的界面形貌 HRTEM 照片

原因是: 压铸工艺条件与普通的搅拌铸造不同, 即熔融铝合金与具有新鲜表面的碳化硅颗粒接触时间极短; 另外同 SiO₂ 相比, 碳化硅与含镁铝合金之间发生直接的界面反应所需的吉布斯能要高得多, 因此在压铸条件下未能发生 Al-SiC 之间的界面反应。由于浸润性问题, 在一般的制备工艺(如粉末冶金法或搅拌铸造法)条件下这种碳化硅表面与铝很难复合, 但高压铸造则使这一矛盾得以解决, 实现了界面的紧密结合。以上足以证明酸洗工艺可控制 SiC-Al 界面状态, 但该工艺是否具有实际意义则取决于它对性能的影响规律。

2.2 界面状态与力学性能的关系

两种不同的界面状态所对应的压铸态复合材料的弯曲性能测试结果见表 2。

表 2 具有不同界面状态的

SiC_p/6061Al 复合材料压铸态弯曲性能

性能	反应界面	干净界面
弹性模量 E /GPa	164.9 ± 2.1	148.0 ± 2.9
弹性极限 σ_s /MPa	156.7 ± 6.6	146.0 ± 4.5
抗弯强度 σ_b /MPa	497.8 ± 7.2	564.4 ± 9.7
断裂应变 ϵ_f /%	0.73 ± 0.03	1.05 ± 0.03

一般说来, 弯曲试验只用来测试材料的弹性模量和抗弯强度, 但经特别定义之后, 完全可以相对地衡量两种材料之间弹性极限和断裂应变的差别。本文根据弯曲过程中测定的应力应变曲线计算出这两个参数, 方法如下: 弹性极限为塑性应变达到 0.01% 时对应的应力值,

而断裂应变则是对应于断裂时刻的塑性应变值。

从表 2 可以看出: 测得的各种性能指标所对应的标准差与其样本均值相比都很小, 这说明每组数据的分散程度很低。因此可以断定: 本文所采用的控制工艺对 SiC_p/6061Al 复合材料的力学性能有显著影响, 且对不同的性能指标影响规律不同, 其微观机制可以解释为: 在较低的应力应变水平下, 轻微界面反应对材料的宏观力学性能产生了积极的作用, 即通过部分界面很强的化学结合(其结合能远高于界面的物理结合)以及反应物的机械镶嵌作用使界面结合增强、传载效率提高(目前普遍认为^[9, 10]: 非连续增强金属基复合材料的弹性模量明显受载荷传递的影响), 进而使弹性模量比界面干净的复合材料提高 11.4%。同时, 传载效率的提高以及反应物的镶嵌还可更有效地约束基体特别是近界面基体的变形, 从而使材料的弹性极限提高 7.3%; 而在较高的应力应变水平下, 由于界面反应物 MgAl₂O₄ 的断裂韧性很低(仅为碳化硅的 1/3^[21]), 因此易萌生裂纹并将导致界面的早期脱粘, 从而使材料的断裂强度和断裂应变比界面干净的复合材料有明显降低(两个指标后者比前者分别高出 13.4% 和 43.8%)。

上述界面状态影响 SiC_p/6061Al 复合材料性能之独特规律的存在, 为该种材料性能的设计与优化提供了一条有效途径, 即可根据应用工况条件对材料不同的性能指标所提出的要求来选择界面状态, 并通过控制工艺加以实现, 从而扩大了 SiC_p/Al 复合材料的应用范围。特别是面向航天、先进武器系统等尖端领域, 超过 10% 的性能指标调节幅度都会引起相当的重视。

3 结论

(1) 采用酸洗后压铸的材料制备方法, 可以获得一般的制备工艺难以得到的既无非晶层又无过渡层或反应层的 SiC-Al 直接紧密结合

的干净界面。

(2) 新工艺的采用使一种轻微界面反应影响 SiC_p/Al 复合材料力学性能的独特规律首次得到揭示和验证。

(3) 由于新工艺成本低、易于掌握、并对界面状态的控制及材料力学性能指标的优化行之有效, 因此可以为针对不同应用工况条件(特别是航天领域)的 SiC_p/Al 复合材料性能设计提供很有价值的参考。

参考文献

- 1 李恒德, 肖纪美. 材料表面与界面. 北京: 清华大学出版社, 1990: 303.
- 2 王 磊. MM 的浪潮—金属基复合材料的制法、特性、行情. 沈阳: 东北大学出版社, 1991: 58.
- 3 张国定. 见: 张志民主编, 第九届全国复合材料学术会议论文集. 北京: 世界图书出版公司, 1996: 559.
- 4 Liu Y L and Kindl B. *Scr Metall Mater*, 1992, 27: 1367–1372.
- 5 Ribes H, Suery M and Lesperance G *et al.* *Metall Trans*, 1990, 21A: 2489–2496.
- 6 Salvo L, Lesperance G and Suery M *et al.* *Mater Sci Eng*, 1994, A177: 173–183.
- 7 Ribes H, Da Silvo R and Suery M *et al.* *Mater Sci Technol*, 1990, 6: 621–628.
- 8 Wang Ning, Wang Zhirui and George C. *Metall Trans*, 1992, 23A: 1423–1437.
- 9 Mahon G T, Mowe J M and Kasudevan A K. *Acta Metall Mater*, 1990, 38: 1503.
- 10 Fei W D, Jiang X D and Li C *et al.* *J Mater Sci Lett*, 1996, 15: 1966.

INTERFACE OPTIMIZATION AND CONTROL IN SiC_p/6061 Al COMPOSITES

Cui Yan

*National Key Laboratory of Advanced Composites,
Beijing Institute of Aeronautical Materials, Beijing 100095*

Geng Lin, Yao Zhongkai

*School of Materials Science and Engineering,
Harbin Institute of Technology, Harbin 150001*

ABSTRACT A systematic study of a new technology——acid washing treatment plus squeeze casting for controlling the slight interfacial reaction in SiC_p/6061Al composites has been carried out. The effect of the technology was successfully evaluated by examining interface microstructure and testing flexural properties of materials. The results show that acid washing treatment may control and optimize SiC-Al interface state by changing chemical nature of the surface of SiC particulates, which in turn modifies the mechanical properties of the materials to meet various applications.

Key words silicon carbide particulates aluminium matrix composite acid washing interface optimization and control

(编辑 彭超群)