

原位 Al_2O_3 颗粒增强 Al-20Si 复合材料的制备及微观组织

王光磊, 曲迎东, 李广龙, 周启文, 田 畅

(沈阳工业大学材料科学与工程学院, 辽宁沈阳 110870)

摘要: 目前原位 Al_2O_3 颗粒对Al-Si合金组织性能的研究较多, 但对过共晶Al-Si合金的研究较少。本研究通过在半固态温度区间下添加 SiO_2 粉末制备 $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{p})/\text{Al}-20\text{Si}$ 复合材料, 探究搅拌速率、 SiO_2 粉末添加量对Al-20Si合金的影响。研究表明: 当搅拌速率为800 r/min时, Al_2O_3 颗粒在基体中的分散效果最好; 添加 SiO_2 粉末与Al基体发生反应生成的 Al_2O_3 颗粒主要分布于初生Si边界处, 可显著抑制初生Si的生长, 但当 SiO_2 添加量增加到7%时, 生成的 Al_2O_3 颗粒出现了团聚现象。加入质量分数为5%的 SiO_2 粉末所制备的 $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{p})/\text{Al}-20\text{Si}$ 复合材料组织中 Al_2O_3 颗粒均匀分布, 硬度较基体合金提高了14%。

关键词: SiO_2 粉末; Al-20Si合金; 原位 Al_2O_3 颗粒; 铝基复合材料

作者简介:

王光磊(1996-), 男, 硕士, 主要从事金属凝固理论及铸造合金新材料等方面的研究。E-mail:1805480428@qq.com

通讯作者:

曲迎东, 男, 教授, 博士, 硕士生导师。电话: 13889375206, E-mail:quyingdong@163.com

中图分类号: TG333

文献标识码: A

文章编号: 1001-4977(2020)

08-0834-05

基金项目:

辽宁省特聘教授资助项目(2018-35-21)。

收稿日期:

2020-04-06。

Al_2O_3 颗粒增强铝基复合材料具有质量轻、比强度高、热膨胀系数低及良好的耐热性和耐磨性等优点, 在军工装甲、航空航天及汽车制造等领域有着较为广泛的应用^[1-3]。 Al_2O_3 颗粒增强铝基复合材料的制备主要分为原位和外加两种方法, 相比于外加法, 原位法制备的复合材料具有界面干净、颗粒形貌良好、颗粒与基体结合性好等优点^[4-6]。Cheng L等^[7]通过粉末冶金法制备得到原位自生 Al_2O_3 颗粒增强Al-5Si复合材料, 研究发现 Al_2O_3 颗粒可以抑制共晶Si的生长, 从而促使共晶Si形态发生改变。Meng M等^[8]通过熔体反应法制备得到 Al_2O_3 颗粒增强A356合金复合材料, 发现 Al_2O_3 颗粒的加入可以有效细化基体组织的晶粒。张瑞英等^[9]针对共晶Al-Si合金通过液相接触法制备得到 Al_2O_3 颗粒增强铝基复合材料, 研究表明生成的 Al_2O_3 颗粒主要分布于Al-Si共晶组织的晶界处, 可起到阻碍共晶Si长大从而细化共晶Si的作用。花程等^[10]针对共晶Al-10Si合金采用熔体反应法制备得到铝基复合材料, 发现原位反应的发生会使熔体中Si含量增加, 从而导致凝固组织中出现了初生Si。Jiang L等^[11]针对 Al_2O_3 颗粒增强ADC12合金复合材料进行了研究, 发现相比于外加 Al_2O_3 颗粒, 原位 Al_2O_3 颗粒形状规则且尺寸细小, 而且团聚现象显著减少。

综上所述, 目前利用原位自生法制备 Al_2O_3 增强铝基复合材料的基体材料主要集中于亚共晶、共晶Al-Si合金, 而对于过共晶Al-Si合金制备的研究少见报道。Choi等人^[12]研究了外加 Al_2O_3 颗粒对过共晶Al-20Si合金的影响, 表明 Al_2O_3 颗粒可以作为初生Si异质形核核心, 使得初生Si得到细化, 但由于添加量有限, 其他作用并未提及。本文为进一步研究 Al_2O_3 颗粒对Al-20Si合金的影响, 基体材料同样选用过共晶Al-20Si合金, SiO_2 粉末的添加量为3%~7%进行 $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{p})/\text{Al}-20\text{Si}$ 复合材料的制备, 并且详细研究了机械搅拌速率、 SiO_2 粉末添加量对Al-20Si合金组织的影响。

1 试验材料及方法

试验材料为Al-20Si合金(纯度为99.8%), 平均粒径为30 μm 的 SiO_2 粉末(纯度为99.9%)。

先用稀 HNO_3 清洗 SiO_2 粉末,以去除 SiO_2 粉末中的杂质,酸洗完成后,再用蒸馏水反复清洗至pH值为7左右后烘干备用。将800 g的Al-20Si合金放到真空电阻炉中,进行抽真空并通入氩气,加热至合金熔化,随后关闭电源。待熔体降温至590~610℃半固态温度区间内,用机械搅拌设备进行搅拌,在搅拌的同时加入 SiO_2 粉末。待粉末全部加入熔体中后,将熔体温度升高至900℃并保温30 min。最后采用机械搅拌设备搅拌5 min,使其充分混合且充分反应,降温至720℃进行浇注,所得铸件尺寸为 $\Phi 60\text{ mm} \times 104\text{ mm}$ 。对制备的复合材料取样、抛光后,利用日本岛津XRD-7000型X射线衍射仪,带有能谱仪(EDS)的TM-3030型扫描电子显微镜(SEM)分析生成的 Al_2O_3 颗粒对复合材料的显微组织的影响。用UH250型数显维氏硬度测试仪分析 Al_2O_3 颗粒对复合材料硬度的影响。

2 试验结果与讨论

2.1 搅拌速率对复合材料显微组织的影响

搅拌速率作为复合材料制备过程中的重要参数,将对原位自生的 Al_2O_3 颗粒在复合材料中的分布具有重要影响。在添加3% SiO_2 粉末的条件下,分别在400 r/min、600 r/min、800 r/min和1 000 r/min四组不同搅拌速率的条件下制备 $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{p})/\text{Al}-20\text{Si}$ 复合材料,并进行对比分析以确定最佳搅拌速率。图1为在不同搅拌

速率下制备的复合材料显微组织照片。

从图1a可以看出,当搅拌速率为400 r/min时,所制备的原位自生 Al_2O_3 颗粒增强铝基复合材料显微组织中未见黑色颗粒,这是由于搅拌速率较小导致添加的 SiO_2 粉末无法被加入到熔体中,而堆积在熔体表面造成的结果,与王乐军^[13]的研究结果一致。如图1b-d所示,当搅拌速率分别为600 r/min、800 r/min、1 000 r/min时,复合材料组织中出现明显黑色颗粒,这与搅拌速率为400 r/min时的组织相比发生显著变化。

图2为Al-20Si基体合金及所制备的 $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{p})/\text{Al}-20\text{Si}$ 复合材料的XRD图谱。将图2a和图2b进行对比可以发现,所制备复合材料的XRD图谱中出现了明显的 Al_2O_3 衍射峰而没有 SiO_2 衍射峰,这表明加入的 SiO_2 已经完全反应并与铝基体发生反应生成了 Al_2O_3 颗粒,通过与标准衍射图谱对比分析,可确定复合材料中生成的 Al_2O_3 颗粒即为 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 颗粒,还存在少量 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 颗粒。

为进一步确定生成的黑色颗粒的元素组成,对复合材料组织中的黑色颗粒进行能谱分析,结果如图3所示。从图3b中可以看出,组成元素仅有Al和O,由图2b可知,黑色颗粒即为原位反应生成的 Al_2O_3 颗粒。从图3a中可以看出,生成的 Al_2O_3 颗粒较为圆整,尺寸为微米级。同时 Al_2O_3 颗粒表面存在诸多缝隙,这是因为 SiO_2 的密度小于 Al_2O_3 的密度,所以在 SiO_2 与Al合金熔

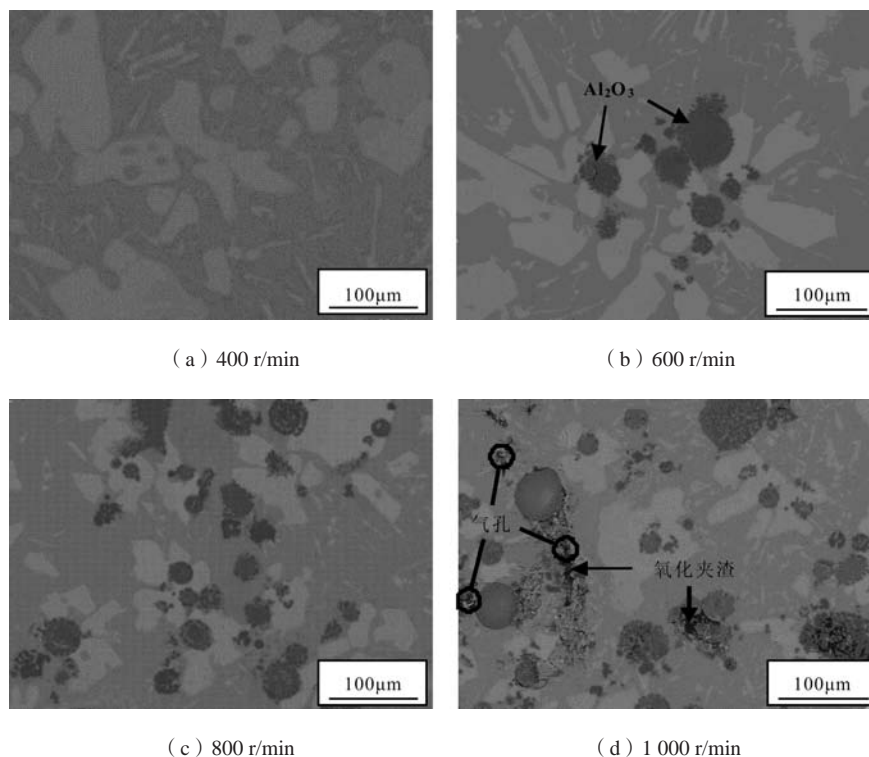


图1 不同搅拌速率下复合材料的显微组织

Fig. 1 Microstructure of composites at different stirring rates

体发生置换反应生成 Al_2O_3 的过程中会发生体积收缩,而这些缝隙会为铝液向 SiO_2 颗粒内部扩散提供扩散通道,这与季鹏飞等人^[14]的研究结果一致。

图1b所示为搅拌速率为600 r/min时基体中生成的 Al_2O_3 颗粒分布情况,从图中可以看出 Al_2O_3 颗粒数量少且分布比较集中。如图1c所示,当搅拌速率达到800 r/min时,基体中 Al_2O_3 颗粒数量相比于图1b明显增多且分布均匀,这归因于搅拌速率的增加会促使熔体内剪切应力增强,这有利于颗粒和铝熔体的接触及混合,从而能够实现颗粒在复合材料中均匀分布。当搅拌速率持续增加到1 000 r/min时,基体中虽然 Al_2O_3 颗粒数量较多且分布相对均匀,但是基体中出现了较多的气孔和氧化夹渣,如图1d所示。这是由于虽然进行抽真空并通入氩气保护,但炉内仍然会有少量氧气存在,无法完全实现无氧环境,当搅拌速率过大时,搅拌桨所形成的负压过大,在液面处波动较大造成严重裹气,从而导致在凝固组织中形成较多气孔和氧化夹渣^[15]。综上所述,搅拌速率设置为800 r/min是制备 $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{p})/\text{Al}-20\text{Si}$ 复合材料较为合理的转速条件。

2.2 SiO_2 添加量对复合材料的影响

为探究 SiO_2 颗粒含量对复合材料的影响,在搅拌速率为800 r/min的条件下,分别添加3%、5%、7%的 SiO_2 粉末制备复合材料。图4为Al-20Si基体合金及添加不同 SiO_2 粉末添加量的 $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{p})/\text{Al}-20\text{Si}$ 复合材料的显微组织照片。从图4a可以看出,在过共晶Al-Si合金基体中,初生Si呈粗大的不规则多边形,平均尺寸约为160~180 μm ,共晶Si为粗大的针片状组织。这些形态的初生Si和共晶Si组织严重割裂了基体合金的连续性,在外力作用下,合金中的Si相尖端和棱角部位将引起局部应力集中,从而使合金的性能降低^[16]。

图4b-d为添加不同含量 SiO_2 粉末所制备的复合材料显微组织照片,显微组织中都存在黑色 Al_2O_3 颗粒,且随着 SiO_2 粉末添加量的增加数量明显增多。从图4b可以看出,添加3% SiO_2 粉末时, Al_2O_3 颗粒主要分布于初生Si边界处,少量分布于初生Si内部,而另外一些则分布在基体上,同时初生Si的形态由粗大的不规则多边形转变成条状和块状,平均尺寸减小到80~110 μm 。从图4c可以看出,添加5% SiO_2 粉末时, Al_2O_3 颗粒分布

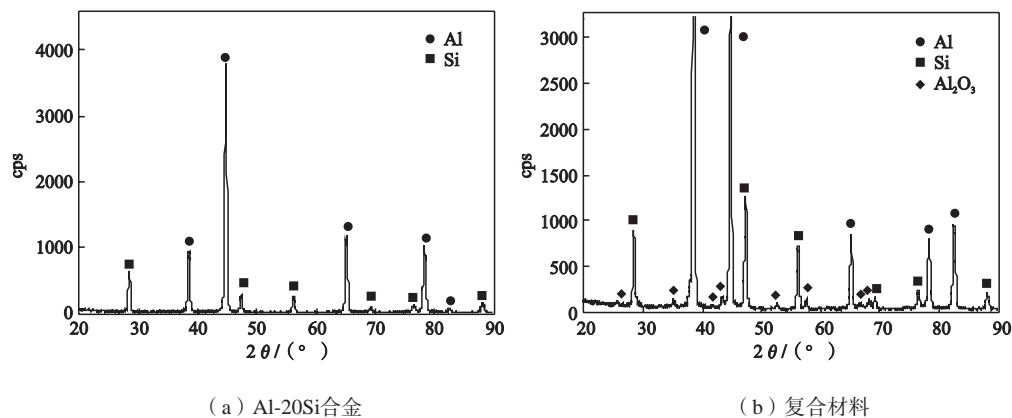


图2 Al-20Si合金和复合材料的XRD图谱
Fig. 2 XRD patterns of Al-20Si alloy and composites

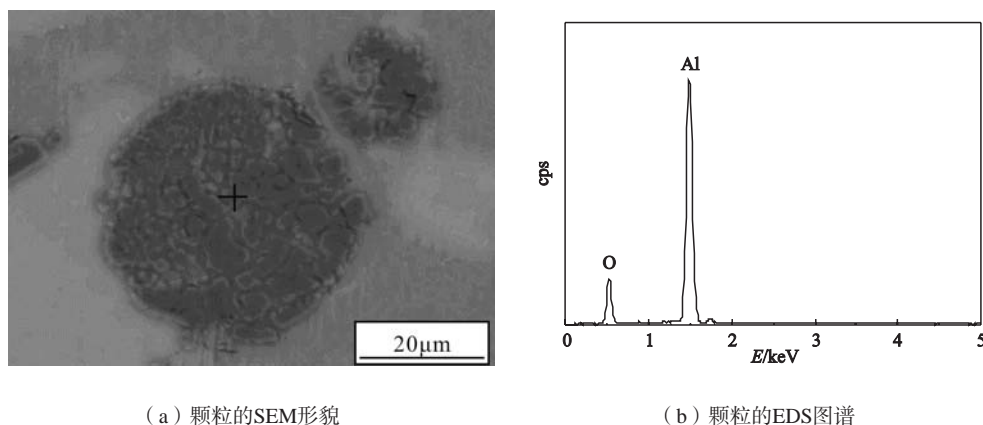


图3 Al_2O_3 颗粒的SEM形貌和EDS图谱

Fig. 3 SEM morphology and EDS spectrum of Al_2O_3 particles

情况与图4b一致但数量显著增多,同时初生Si更进一步地被细化成平均尺寸大约为 $40\sim 65\ \mu\text{m}$ 的小块状组织,这表明 Al_2O_3 颗粒对合金中的初生Si有一定的细化效果。Li等人^[17]报道了 Al_2O_3 颗粒能够作为初生Si的异质形核核心,在凝固过程中可提高初生Si的形核率,从而细化初生Si。同时本文发现,沿初生Si边界分布的 Al_2O_3 颗粒可以有效抑制初生Si的生长,从而起到细化初生Si的作用。因此,原位 Al_2O_3 颗粒通过异质形核和抑制生长的组合作用成功细化初生Si。图4d为添加7% SiO_2 粉末时,虽然 Al_2O_3 颗粒仍可抑制初生Si生长,但 Al_2O_3 颗粒发生了明显团聚,团聚处存在较多孔隙,由于颗粒团聚严重,达不到均匀分散的制备要求,这将严重影响复合材料的力学性能。

Al-20Si基体合金及添加3%和5% SiO_2 粉末制备得到 $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{p})/\text{Al}-20\text{Si}$ 复合材料的平均硬度分别为HBW60.19、HBW71.36和HBW86.69,与基体合金相比,复合材料硬度随 SiO_2 添加量的增多而提高,这主要是因为反应生成的 Al_2O_3 是陶瓷颗粒,硬度高于基体合金,当 Al_2O_3 颗粒均匀地分布于基体中时,受压过程中颗粒能承受更多的压力,继而提高复合材料硬度。但当添加 SiO_2 粉末的量达到7%时,复合材料平均硬度为HBW82.67,相比添加5% SiO_2 硬度降低,且各选点位置硬度值浮动较大,这是由于反应生成的 Al_2O_3 颗粒发生了明显团聚(图4d),团聚处颗粒周围伴有大量孔隙,这将导致复合材料抵抗载荷能力降低。

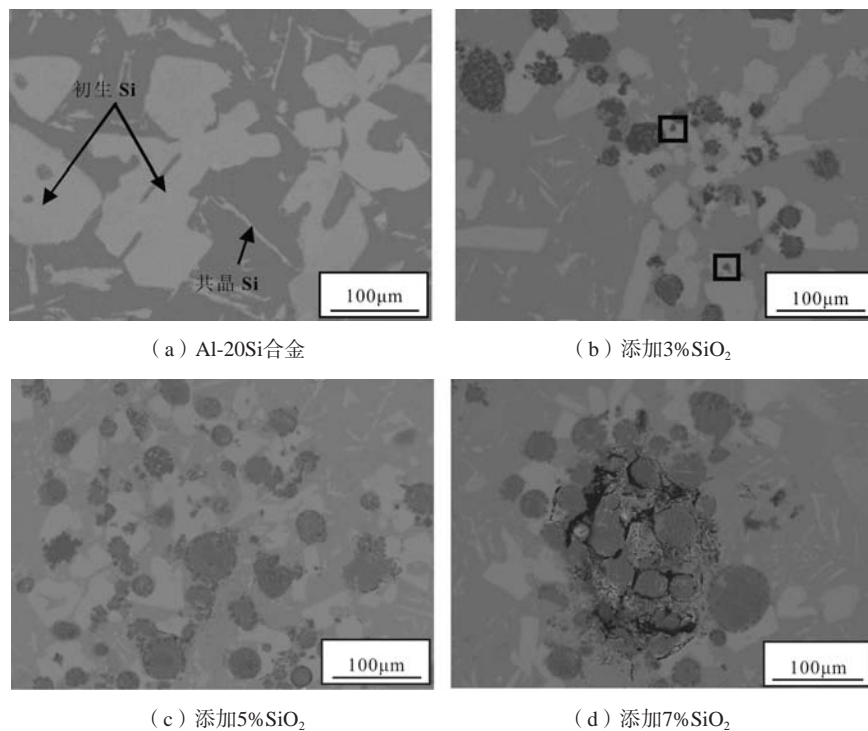


图4 基体Al-20Si合金及复合材料显微组织

Fig. 4 Microstructure of Al-20Si alloy and composites

3 结论

(1) 在 $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{p})/\text{Al}-20\text{Si}$ 复合材料制备过程中发现,随着搅拌速率的增大,使得熔体内剪切应力增强,促进了 Al_2O_3 颗粒和铝熔体的接触及混合,进而实现颗粒在复合材料中均匀分布,在搅拌速率为800 r/min的工艺条件下, Al_2O_3 颗粒分散效果最好,继续增加搅拌速率将导致复合材料的卷气严重,显微组织中将出现较多的气孔和氧化夹杂。

(2) 原位 Al_2O_3 颗粒能够有效地细化Al-20Si合金中的初生Si组织,当添加3% SiO_2 粉末时,初生Si的形态由粗大的不规则多边形转变成条状和块状,平均尺寸减小到 $80\sim 110\ \mu\text{m}$;当添加5% SiO_2 粉末时,初生Si更进一步地被细化成平均尺寸大约为 $40\sim 65\ \mu\text{m}$ 的小块状组织;然而,继续增加 SiO_2 粉末添加量到7%时,虽然 Al_2O_3 颗粒仍可抑制初生Si生长,但 Al_2O_3 颗粒发生了明显团聚。

(3) 原位 Al_2O_3 颗粒不仅可以通过异质形核来细化初生Si,而且分布于初生Si边界处的 Al_2O_3 颗粒能够有效抑制初生Si生长,因此,原位 Al_2O_3 颗粒通过异质形核和抑制生长的组合作用成功细化初生Si。

参考文献:

- [1] 吴瑞瑞, 袁铮, 李秋书. 挤压法制备 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al}$ 铝基复合材料的组织及性能 [J]. 铸造, 2017, 66 (1): 29-32.
- [2] 吴瑞瑞, 王荣峰, 李秋书. 转喷微注法制备 $\text{Al}_2\text{O}_3/7075$ 铝基复合材料的组织及力学性能 [J]. 铸造, 2018, 67 (8): 695-698.
- [3] WANG H, LI G, ZHAO Y, et al. In situ fabrication and microstructure of Al_2O_3 particles reinforced aluminum matrix composites [J]. Materials Science and Engineering A, 2010, 527 (12): 2881-2885.
- [4] 贺儒, 闫洪, 钟卫民. 原位 Al_2O_3 颗粒增强ADC12复合材料的制备与组织的研究 [J]. 铸造, 2012, 61 (4): 396-399.
- [5] WANG K, LI W, DU J, et al. Thermal analysis of in-situ $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2(\text{p})/\text{Al}$ composites fabricated by stir casting process [J]. Thermochemica Acta, 2016, 641: 29-38.
- [6] ZHU H, GUO G, CUI T. Influences of carbon additions on reaction mechanisms and tensile properties of Al-based composites synthesized in-situ by Al- SiO_2 powder system [J]. Materials Science and Engineering A, 2015, 623: 78-82.
- [7] CHENG Ling, ZHU De, GUI Gao, et al. Microstructure and properties of in situ fabricated Al-5wt.%Si- Al_2O_3 composites [J]. Advanced Materials Research, 2012, 567: 15-20.
- [8] MENG M, CHEN G, ZHANG Z, et al. Analysis of properties for in situ $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{p})/\text{A356}$ composites synthesised from the Al- SiO_2 system [J]. Materials Science and Technology, 2017, 33 (12): 2291-2297.
- [9] 张瑞英, 史志铭, 李红霞. SiO_2 原位制备 $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{p})/\text{Al-Si}$ 复合材料 [J]. 特种铸造及有色合金, 2010, 30 (7): 668-671.
- [10] 花程, 陈刚, 史经浩, 等. 原位反应制备 $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{p})/\text{Al}$ 复合材料机理研究 [J]. 热加工工艺, 2016, 45 (8): 154-158.
- [11] JIANG L, JIANG B, WANG Z, et al. In situ prepared Al-Si alloy matrix composites reinforced by γ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{p}$ [J]. Journal of University of Science and Technology Beijing, 2007, 14 (3): 276-279.
- [12] CHOI H, KONISHI H, LI X. Al_2O_3 nanoparticles induced simultaneous refinement and modification of primary and eutectic Si particles in hypereutectic Al-20Si alloy [J]. Materials Science and Engineering A, 2012, 541: 159-165.
- [13] 王乐军, 郭建, 关绍康, 等. $\text{SiCp}/6061\text{Al}$ 复合材料搅拌铸造工艺的优化 [J]. 热加工工艺, 2009, 38 (11): 40-43.
- [14] 季鹏飞, 陈刚, 周小亮, 等. 原位 Al_2O_3 颗粒增强Al-10Si基复合材料制备的研究 [J]. 功能材料, 2014, 45 (7): 83-87.
- [15] 周超. $\text{B}_4\text{Cp}/\text{A356}$ 复合材料的半固态搅拌铸造过程中温度场及流场分析研究 [J]. 工业加热, 2018, 47 (4): 7-11.
- [16] LU D, JIANG Y, GUAN G, et al. Refinement of primary Si in hypereutectic Al-Si alloy by electromagnetic stirring [J]. Journal of Materials Processing Technology, 2007, 189 (1-3): 13-18.
- [17] LI Q, XIAT, LAN Y, et al. Effect of in situ γ - Al_2O_3 particles on the microstructure of hypereutectic Al-20%Si alloy [J]. Journal of Alloys and Compounds, 2013 (577): 232-236.

Preparation and Microstructure of In-Situ Al_2O_3 Particle Reinforced Al-20Si Composites

WANG Guang-lei, QU Ying-dong, LI Guang-long, ZHOU Qi-wen, TIAN Chang

(School of Materials Science and Engineering, Shenyang University of Technology, Shenyang 110870, Liaoning, China)

Abstract:

At present, there are more researches on the microstructure and properties of Al-Si alloy reinforced by in-situ Al_2O_3 particles, but less on hypereutectic Al-Si alloys. In this study, $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{p})/\text{Al-20Si}$ composites were prepared by adding SiO_2 powder in a semi-solid temperature range, and the effects of the stirring rate and the amount of SiO_2 powder added on Al-20Si alloy were investigated. The results show that when the stirring rate is 800 r/min, the Al_2O_3 particles are relatively well dispersed in the matrix. The Al_2O_3 particles generated by the reaction between Al and SiO_2 powder are mainly distributed at the boundary of primary Si, inhibiting significantly the growth of primary Si. However, when the amount of SiO_2 added reaches 7wt.%, the generated Al_2O_3 particles appear agglomerated. The $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{p})/\text{Al-20Si}$ composite material prepared by adding 5wt.% SiO_2 powder has a uniform distribution of Al_2O_3 particles in the structure, and the hardness is 14% higher than that of the base alloy.

Key words:

SiO_2 powder; Al-20Si alloy; in-situ Al_2O_3 particles; aluminum matrix composite