复合材料学报 第19卷 第5期 10月 2002年
ACTA MATERIAE COMPOSITAE SINICA Vol. 19 No. 5 October 2002

文章编号: 1000-3851(2002)05-0057-05

SiC晶须增强铝基复合材料热膨胀行为与内应力关系的研究

胡 明[1], 郑 馥[2], 费维栋[1], 王黎东[1], 姚忠凯[1]
(1. 哈尔滨工业大学 材料科学与工程学院 433信箱, 哈尔滨 150001; 2. 哈尔滨工业大学 理学院, 哈尔滨 150001)

摘 要: 本文作者研究了600℃水淬和600℃退火处理的碳化硅晶须增强铝基复合材料的热膨胀行为, 阐述两者热膨胀行为与内应力的内在关系。结果表明: 淬火后复合材料基体的位错密度、内应力、及材料的有效屈服强度较高; 而退火后复合材料基体的位错密度、内应力、及材料的有效屈服强度较低。当材料在600℃淬火后, 升温过程中材料的热膨胀系数曲线在80℃和245℃各出现一个峰值, 且后者明显高于前者; 而600℃退火后材料的热膨胀系数曲线只在80℃出现一个波峰, 且其峰值低于淬火材料相应的峰值。分析表明: 材料热膨胀系数曲线出现的第一个峰是基体内拉应力释放的结果; 而淬火后材料热膨胀系数曲线出现的第二个峰是基体压应力释放速率的标志。

关键词: 热膨胀; 内应力; 碳化硅晶须; Al基复合材料
中图分类号: TG151 **文献标识码:** A

STUDY ON THE RELATIONSHIP BETWEEN THERMAL EXPANSION BEHAVIOR AND INTERNAL STRESSES OF AN SiC WHISKER REINFORCED COMPOSITE

HU Ming[1], ZHENG Fu[2], FEI Wei-dong[1], WANG Li-dong[1], YAO Zhong-kai[1]
(1. School of Materials Science and Engineering of Harbin Institute of Technology, P. O. Box 433, Harbin 150001, China;
2. School of Science of Harbin Institute of Technology, Harbin 150001, China)

Abstract: This paper deals with the relationship between thermal expansion behaviors and internal stresses of SiC_w/Al composites quenched from 600℃ by water and annealed from 600℃ with a cooling rate of 1℃/min. The results show that the dislocation density, residual tensile stress in the matrix and yield strength of the quenched composite are larger than those of the annealed composite. There are two peaks on the curve of the coefficients of thermal expansion (CTE) vs heating temperature of the quenched composite. The first peak appears at about 80℃, and the second one appears at 245℃, and the latter is much higher than the former. But only one peak appears at 80℃ on the curve of the CTEs vs temperature of the annealed composite, and the peak is smaller than the first one of the quenched specimen. The CTE of the annealed specimen increases with temperature increasing gradually. The first peak on the curve of CTE vs temperature is the result of relaxation of the residual tensile stress in the matrix, while the second one is a signal of the relaxation rate of the compressive stress in the matrix of the composite.

Key words: thermal expansion; internal stress; SiC whisker; aluminum matrix composite

碳化硅晶须增强铝基复合材料由于具有高的比刚度、比强度、良好的耐磨及抗疲劳性能, 在航空、航天、汽车等领域内表现出了广泛的应用前景[1, 2]。日本、美国等其它国家已经把它列为二十一世纪重点发展的战略材料[3]。作为一种结构材料, 除了要求其具有良好的机械性能之外, 还应具有低而稳定的热膨胀系数, 以满足在一定场合下, 工件尺寸稳定性的需求。因此, 研究复合材料热膨胀行为与材料微观组织结构、内应力等方面的关系具有重要的理论意义和工程价值。

收稿日期: 2001-02-12; 收修改稿日期: 2001-04-04
基金项目: 本研究得到了国家自然科学基金的资助, 项目编号为59631080
作者介绍: 胡 明(1962), 男, 硕士, 副教授, 主要从事金属基复合材料残余应力及小变形行为的研究。

迄今为止,众多的材料工作者深入细致地研究了长纤维、颗粒增强复合材料的热膨胀行为[4~10],并提出了许多模型。如,混合法则,Turner 模型,Kerner 模型,Schapery 模型等[4],涉及晶须增强复合材料热膨胀行为的文献却不多[11]。

由于复合材料中增强体与基体合金热膨胀系数相差较大(室温下碳化硅晶须与铝合金热膨胀系数之比为 1∶5),所以复合材料在制备过程中不可避免地产生热错配应力。由于复合材料这一特性,复合材料热膨胀行为与内应力之间必然存在着密切联系。Masutti[12]利用热膨胀曲线研究了高温下长纤维增强复合材料的残余应力和屈服强度的关系。然而,令人遗憾的是尚未见到有关 SiC_w/Al 复合材料热膨胀行为与微观组织、内应力关系的详细报道。

本文作者利用不同热处理工艺处理后材料的热膨胀系数曲线及热膨胀曲线,并结合材料的微观组织结构、内应力、屈服强度及相应的理论模型,探讨了 SiC_w/Al 复合材料热膨胀行为与材料微观组织结构、内应力及微屈服强度的关系。

1　试验材料及方法

试验用的增强体为日本东海碳素公司生产的 U-碳化硅晶须,长径比约为 25∶1。基体合金选择了工业纯铝(纯度为 99.99mass%)。利用挤压铸造技术制备成碳化硅晶须体积分数为 18% 的复合材料。试验用全部样品均取自于圆柱形铸锭同一半径圆的圆周上。试样的热处理工艺为 600℃保温 2 h 后水冷和 600℃保温 2 h 后炉冷。炉冷的冷却速度为 1℃/min。热膨胀试样尺寸为:Φ5mm×18mm。试验在德国 Netzsch 公司生产的 Dil402C 热膨胀仪进行。加热速度为 2.5℃/min。利用该公司提供的热分析软件进行分析,并得出复合材料的热膨胀系数曲线。为了分析问题方便,在完全相同的测试条件下,对纯铝也进行了热膨胀试验。

借助于 Philips 公司生产的 X 射线衍射仪,利用文献[13]提出的方法,对不同工艺处理的样品进行了应力测试。同时,借助于 X 射线衍射仪和文献[14]提出的方法,利用吉林大学测试中心提供的软件进行基体位错密度的测量。将经过离子减薄后的样品放置于 CM-12 型透射电子显微镜进行微观组织观察。

2　试验结果

2.1　SiC_w/Al 复合材料微观组织及内应力

图 2 是经过不同处理样品的位错密度组态,操作矢量为<111>。显然,两个样品的位错组态相差很大。经 600℃ 2h 水淬的样品基体位错密度很高,且位错相互缠结在一起。这种现象不仅出现在晶须周围,远离晶须处也依然可见,如图 1(a)所示。而在 600℃缓冷条件下,样品内位错的数量较少,并且呈现平直状态,如图 1(b)所示。这一点在 X 射线测量位错密度的结果上也得到证实。由于基体材料位错密度的差异,导致复合材料微屈服强度的不同[15]。

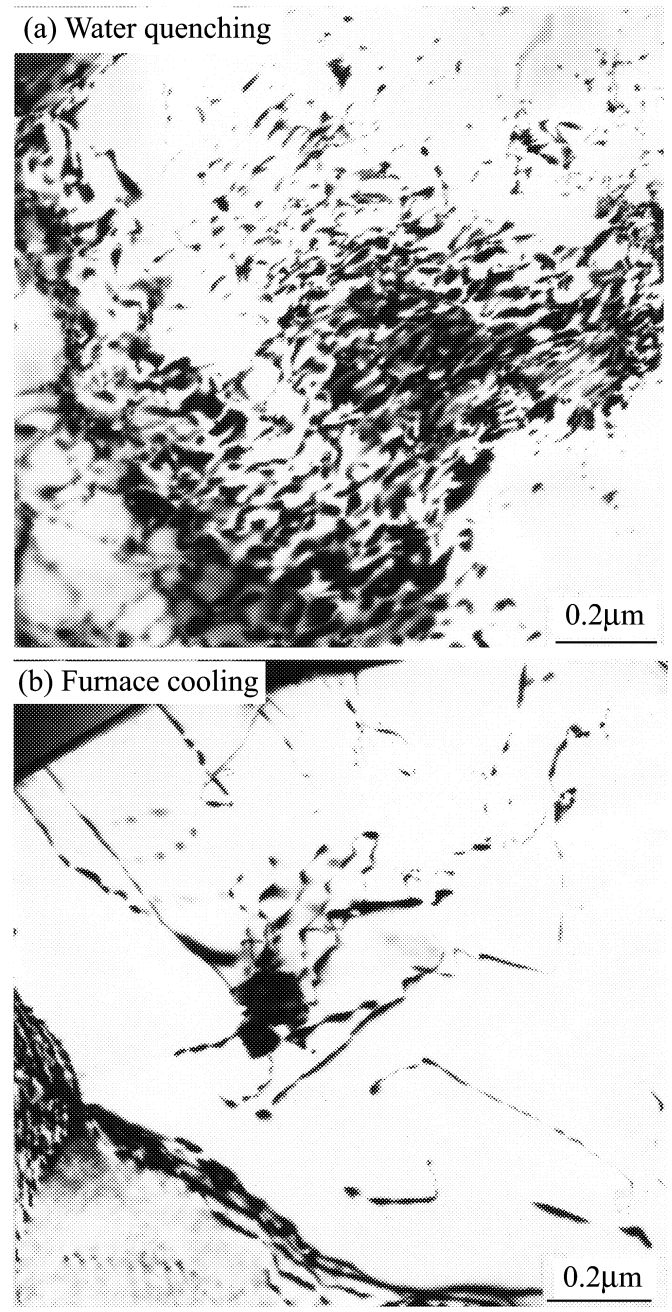

图 1　不同处理工艺的 SiC_w/Al 复合材料位错组态

Fig.1　Dislocation morphology of the SiC_w/Al composites

由表 1 还可以发现,600℃淬火态试样的内应力明显高于缓冷态试样。这可从如下的分析得到解释。

表 1　不同处理工艺下 SiC_w/Al 复合材料的部分测试结果

Table 1　The experimental data of the composites at different treatments

	淬火态	退火态
基体内应力 / MPa	286	180
基体位错密度/$10^{13}M^{-2}$	7.8	0.55

当复合材料于 600℃下保温时,由于基体屈服强度极低,复合材料的热错配应力很小。当复合材料冷却时,由于基体的收缩大于晶须的收缩,从而会在基体

中引入拉应力,而在晶须中引入压应力。事实上,基体中的拉应力很容易超过基体的屈服强度使基体产生塑性变形,从而在基体中引入高密度位错。只是在较低的温度下,因基体屈服强度较高,内应力才会以残余应力的形式保持下来。与此同时,当复合材料处于较高的温度时,基体的位错因回复而湮灭的过程也要发生。所以,材料冷却到室温时基体的位错密度取决于基体位错的增殖速度和湮灭的速度的竞争。而基体的有效屈服强度则由基体中的位错密度决定。显然基体的位错密度越高,其有效屈服强度越高,其内应力也越大。对于淬火态样品,由于冷速很大,冷却过程中位错湮灭很少,故基体一直维持较高的屈服强度,从而导致淬火态试样的内应力高于缓冷态试样[15,16]。

2.2　SiC_w/Al 复合材料热膨胀行为

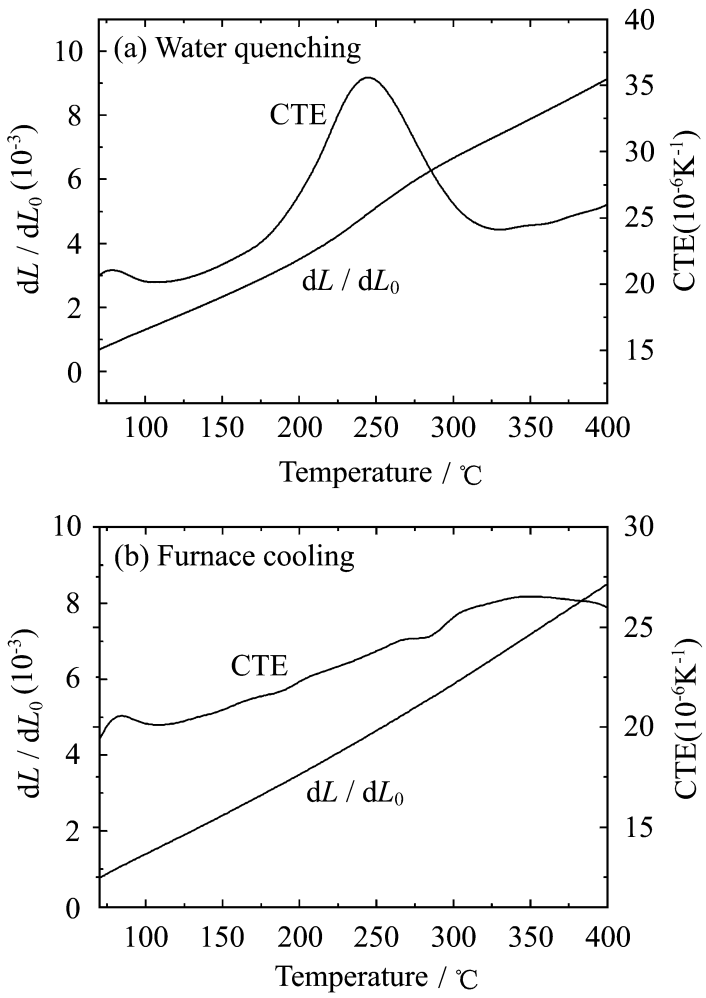

图 2　不同工艺处理后 SiC_W/Al 复合材料热膨胀曲线及热膨胀系数曲线

Fig. 2　The thermal expansion curves and CTEs curves of the SiC_W/Al composite

淬火和退火后材料的热膨胀曲线和物理热膨胀系数曲线见图 2。从图中不难看出,淬火后样品的热膨胀曲线在 250℃左右出现一个明显增加,峰值约为 36×10^{-6}℃$^{-1}$。这可能是复合材料基体压应力松弛的结果。而退火样品的热膨胀行为则不然,其热膨胀相对伸长量随温度升高而逐渐增加。这说明该样品的残余应力及其变化与淬火处理样品的相差较大,详见 2.3。这一点也可以从表 1 看出。从图中还可以看出,淬火处理材料物理热膨胀系数对温度的曲线在 80℃和 245℃各出现一个极小峰值和极大峰值,并且后者更为明显;而退火处理材料物理热膨胀系数对温度的曲线只在 80℃出现一个小峰,并且该峰低于淬火处理后材料的第一个峰。此后该材料物理热膨胀系数曲线随温度的升高而逐渐增加。

比较图 2 中的(a)和(b)可以发现,SiC_w/Al 复合材料的热膨胀行为与预先热处理、基体的内应力等关系密切。一方面,不同基体的原始残余应力及残余应力的变化可以导致不同的热膨胀行为(不同的热膨胀曲线和热膨胀系数曲线),也就是说,在解释 SiC_w/Al 复合材料的热膨胀曲线时,必须考虑基体残余应力及其变化。另一方面,复合材料不同的热膨胀行为可以反映基体内应力及其状态的变化,也就是说,热膨胀系数曲线可以作为分析处理基体内应力变化的工具。

2.3　讨　论

虽然在预测复合材料热膨胀系数,分析其热膨胀行为方面,出现过一些理论模型[15],但定量描述晶须增强铝基复合材料热膨胀系数及内应力的关系仍十分困难。

由于在整个热膨胀试验温度范围内,SiC_w/Al 复合材料的界面结合是良好的[17],故可以假定在试验温度范围内界面不发生滑移。在忽略材料的剪切变形的情况下,则有方程(1)

$$\frac{V_m}{K_m}de_m = dV_m - V_m U_m dT$$
$$\frac{V_f}{K_f}de_f = dV_f - V_f U_f dT \tag{1}$$

式中: e_m 和 e_f 分别是基体和增强体内应力; V_m 和 V_f 分别是基体和增强体的体积; K_m 和 K_f 分别是基体和增强体的体弹模量; U_m 和 U_f 分别是基体和增强体的体膨胀系数; dV_m 和 dV_f 分别是基体和增强体在温度范围 T 到 T+ dT 的体积变化。从方程(1),可得到

$$K_f dV_m + K_f dV_f = (K_f V_m U_m + K_f V_f U_f)dT + V_m de_m + V_f de_f \tag{2}$$

众所周知,复合材料中两相之间的应力保持平衡,即

$$V_m e_m + V_f e_f = 0 \tag{3}$$

整理方程(2)和方程(3),考虑到 K_f 和 K_m 远远大于

e_f 和 e_m，并忽略小量后有

$$T_c = T_M + \frac{V_m}{3}\left(\frac{1}{K_m} - \frac{1}{K_f}\right)\frac{de_m}{dT} \qquad (4)$$

式中：T_m，T_f，T_c 和 T_M 分别是基体、增强体、复合材料和利用混合法则计算得到

$$T_M = V_m T_m + V_f T_f \qquad (5)$$

的线膨胀系数；V_m 和 V_f 分别是基体和增强体的体积分数。

基于上述简单的模型，SiC_W/Al 复合材料的热膨胀行为可简略解释如下：

一方面，当复合材料受热时，由于铝的热膨胀系数远高于碳化硅晶须的热膨胀系数，即铝的膨胀量大于晶须的膨胀量，从而使得基体内原有的残余拉应力下降，即 $\frac{de_m}{dT} < 0$，此时，$T_c < T_M$。该应力松弛机制被称之为热弹性松弛。当温度进一步升高时，基体内残余拉应力则可能转化为压应力，此时，一定有 $T_c < T_M$ 的成立。

另一方面，当温度升高时，基体的有效屈服强度降低，基体发生塑性变形，内应力松弛。这种松弛机制被称之为热塑性松弛。

对于随机分布晶须增强铝基复合材料，内应力属于短程力[17]，不同区域内的变形也是随机的。因此，由热塑性松弛机制导致的塑性变形不会导致材料体积变化。然而，内应力的松弛导致了弹性内应力的下降，使得材料的体积发生变化。由公式(4)可知，基体拉应力的松弛导致材料热膨胀系数下降，而基体压应力松弛则导致材料热膨胀系数增加。

当复合材料被加热到一定温度时，基体有效拉伸屈服强度降低，基体中的拉应力超过了基体的屈服强度，发生了塑性松弛，从而使复合材料的热膨胀系数降低。图 3(a)和图 3(b)中 80℃对应的小峰就是属于此种情况。由于缓冷处理后基体的残余应力低于淬火处理后基体的残余应力，见表 1，缓冷处理的材料通过基体塑性变形所导致的拉伸内应力松弛量也低于淬火处理材料基体的内应力松弛量，见图 3。即缓冷处理复合材料热膨胀系数的第一峰值小于淬火处理复合材料的第一个峰值。

复合材料基体内的拉应力会随温度升高而转化为压应力，如同基体内残余拉应力塑性松弛一样，压应力在积累到一定程度后也同样可以通过塑性变形进行松弛，并使得复合材料的热膨胀系数增加。

对于淬火处理后的复合材料，由于基体高的屈服强度和位错密度，使得其基体压应力可以积累到较高的程度。当温度足够高时，基体的压应力以非常高的速度松弛，以后，由于基体内应力的下降，松弛速度逐渐降低。这也是该材料热膨胀系数出现第二个峰的原因，呈现图 2(b)所示的变化情况。

对于退火处理后的复合材料，由于其基体位错密度和屈服强度较低，压应力难以积聚到较高的程度。该材料基体压应力的松弛是随基体压应力的产生同时进行的。因此，在缓冷处理后材料热膨胀系数曲线上见不到第二个峰，如图 3(b)所示。

按照上述分析，由于复合材料热膨胀系数依赖于基体内应力的松弛，我们就可能依据热膨胀曲线的变化趋势，来阐述复合材料基体内应力随温度的变化规律，见图 3、图 4。图中，T_M 由方程(5)来确定。碳化硅晶须在试验温度范围内的热膨胀系数为一常数，取值 $4.5\times10^{-6}K^{-1}$。试验发现，当温度高于 80℃，纯铝的热膨胀系数曲线可以用方程(6)表示。

$$T_{Al} = (25 + 0.64\times10^{-2}T)\times10^{-6} \qquad (6)$$

将方程(6)代入方程(5)即可求得 T_M。

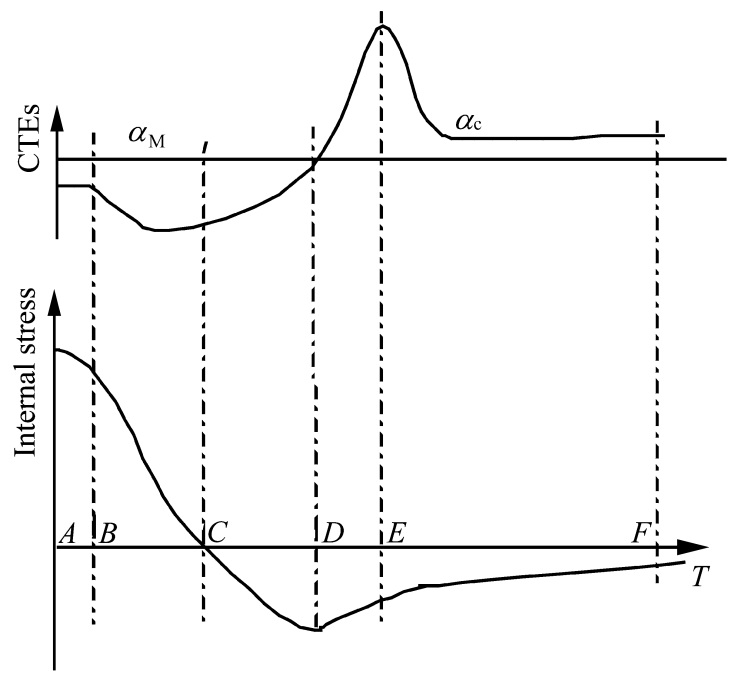

图 3　淬火态 SiC_W/Al 复合材料热膨胀系数曲线及基体应力变化示意图

Fig. 3　Schematic diagram of the changing tendency of internal stress in the quenched SiC_W/Al composite

淬火处理后的复合材料热膨胀系数曲线和内应力变化，见图 3。从 A 点到 D 点的复合材料热膨胀系数 T_c 小于由混合法则确定的膨胀系数 T_M，即 $\frac{de_m}{dT} < 0$。从 B 点到 C 点的热膨胀系数曲线属于第一个峰，而对应基体内应力的变化为残余拉应力的快速松弛。这或许也说明了此温度区间内基体拉应力的松弛机制为热塑性松弛。从 C 点到 D 点，基体内应力由拉应力状态转变为压应力状态，其绝对值随温

度升高而增加。在 D 点, 压应力达到最大值, $\frac{de_m}{dT}=0$。此温度下, 复合材料的热膨胀系数与按照混合法则计算值相同, 即 $T_c = T_M$。从 D 点到 E 点温度较高, 材料的压缩屈服强度下降, 导致基体发生较大的塑性变形, 基体压应力的绝对值迅速降低, 即 $\frac{de_m}{dT} > 0$。随后, 压应力松弛速度逐渐下降, 于是出现了从 E 点到 F 点曲线的变化情况。

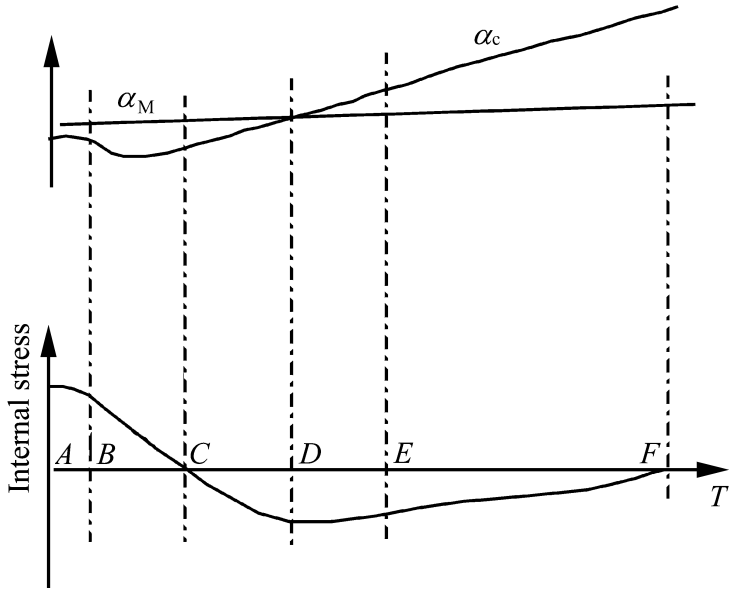

图 4　退火态 SiC_W/Al 复合材料热膨胀系数曲线及基体应力变化示意图

Fig. 4　Schematic diagram of the changing tendency of internal stress in the annealed SiC_W/Al composite

对于退火处理后的复合材料热膨胀系数曲线和内应力变化趋势, 见图 4。可以用类似的分析来解释。由于基体的位错密度、材料的屈服强度均较低, 因此, 难以在较高的温度区间出现高的压应力聚集的现象, 当然更谈不上压应力的快速释放。在热膨胀曲线上自然也就见不到第二个峰的出现。该材料中压应力的产生与松弛几乎同时进行。

3　结　论

淬火后 SiC_W/Al 复合材料基体内的位错密度、内应力和材料的屈服强度均较高; 而退火后的 SiC_W/Al 复合材料基体内位错密度、内应力和材料的拉伸屈服强度均较低。

不同工艺处理的 SiC_W/Al 复合材料热膨胀行为相差很大。淬火处理材料的热膨胀系数曲线在 80℃和 245℃各出现一个峰值, 并且后者远比前者明显; 而退火处理的材料只在 80℃出现一个小峰, 并且该峰低于淬火处理后材料的第一个波峰。

SiC_W/Al 复合材料热膨胀系数曲线在 80℃出现一个小峰是基体残余拉应力松弛的结果; 而淬火处理的复合材料在 245℃出现一个极大峰值则是由于基体压应力松弛速率不同造成的。

参考文献:

[1] 师昌绪. 材料科学技术的生长点 [J]. 材料科学进展, 1990, 4(2): 97- 104.

[2] 吴人洁. 金属基复合材料的现状及展望 [J]. 金属学报, 1997, 33(1): 78- 84.

[3] Nair S V, Tian J K, Bates R C. SiC-reinforced aluminum metal matrix composite [J]. Int Met Rev, 1985, 30(6): 275.

[4] Vaidya Rajendra U, Chawla K K. Thermal expansion of metal matrix composites [J]. Composites Science and Technology, 1994, 50(1): 13- 22.

[5] Levy, Papazian J M. Tensile properties of a whisker-reinforced SiC_W/Al composites—— Ⅱ: Finite element analysis [J]. Meta Trans, 1990, 21(A): 411- 419.

[6] Hahn T H. Metal matrix composite: Mechanism and properties [M]. EVERETT R K, ARSENAULT R J, ed. Boston, MA: Academic Press, 1991. 329.

[7] Mykura H, Mykura N. Thermal expansion and relaxation of metal matrix composite [J]. Composites Science and Technology, 1992, 45(4): 307.

[8] Lemieux S, ElomarI S, Nemes J A, et al. Thermal expansion of isotropic duralcan metal matrix composite [J]. J Mater Sci, 1998, 33(17): 4387.

[9] Chang Shouyi, Lin Sujien, Fiemings Merton C. Thermal expansion behavior of silver matrix composite [J]. Mater Trans A, 2000, 31A(1): 291.

[10] Dunn Martin L, Ledbetter Hassel, Li Zhuang. Thermal expansion of morphologically textured short-fiber composites [J]. Metal Mater Trans A, 1999, 30A(1): 291.

[11] Geng L, OchiaI S, Yao C K. Study on temperature dependence of thermal expansion behavior of SiC_W/Al composite by internal stress analysis [J]. J Mater Sci Letter, 1998, 17(22): 1933S.

[12] Masuti D, Lentz J P, Delannay F. Measurement of internal stresses and of the temperature dependence of the matrix yield stress in metal matrix composites from thermal expansion curves [J]. J Mater Sci Lett, 1990, 9(3): 340- 342.

[13] Fei W D, Liu Q Y, Liang N G, Yao C K. Thermal mismatch stress in SiC whisker reinforced aluminum composite—— A new measurement method by X-ray diffraction [J]. Materials Science and Technology, 2000 (in press).

[14] Wang Y M. X-ray Diffraction of Solid [M]. Huang S T ed. Beijing: High Education Press, 1985. 54.

[15] Hu M, Fei W D, Yao C K. Effect of heat treatment on the tensile deformation of SiC_W/Al composite [J]. J Mater Sci Lett, 2001(in press).

[16] Hu J, Luo R S, Fei W D, Yao C K. Effect of annealing treatment on the microstructure of SiC_W/Al composite [J]. J Mater Sci Letter, 1999, 18(18): 1525.

[17] Arsenault R J, Pande C S. Interfaces in metal matrix composites [J]. Scripta Metall, 1984, 18(10): 1131.