

文章编号: 1004-0609(2005)01-0079-05

TLP 连接技术在不锈钢-3003 铝合金复合板制备中的应用^①

祖国胤¹, 王 宁¹, 于九明¹, 温景林²

(1. 东北大学 轧制技术及连轧自动化国家重点实验室, 沈阳 110004;

2. 东北大学 材料与冶金学院, 沈阳 110004)

摘 要: 借鉴 TLP 连接技术在其它领域的最新研究进展, 提出利用 4045 铝合金为中间层材料, 采用轧制复合的方法生产不锈钢-3003 铝合金复合板的新工艺。研究表明: 在加热温度为 570 ℃ 的条件下, 依靠轧制过程中产生的变形热, 中间层 4045 铝合金出现了理想的瞬间液化现象, 复合界面处发生了一系列类似于 TLP 连接过程的物理冶金行为, 两种基体实现了良好的复合, 复合板的主要力学性能得到了明显的改善。提出了轧制复合工艺中 TLP 连接过程的四阶段模型, 认为中间层熔化阶段是该工艺的技术核心。

关键词: 复合; TLP 连接; 中间层; 扩散; 界面

中图分类号: TB 321

文献标识码: A

Application of TLP joining techniques in preparing bonding plates of stainless steel/ A3003

ZU Guoyin¹, WANG Ning¹, YU Jiurming¹, WEN Jing-lin²

(1. State Key Laboratory of Rolling Technology and Automation,

Northeastern University, Shenyang 110004, China;

2. School of Materials and Metallurgy, Northeastern University, Shenyang 110004, China)

Abstract: In the light of recent development of TLP joining techniques in other fields, the new technology of preparing bonding plates of stainless steel/ A3003 was presented using hot-rolling when A4045 aluminum alloy was used as intermediate materials. The results show that at 570 ℃ depending on the heat gained from deforming, there are perfect transient liquid phases in intermediate layer A4045 aluminum alloy and a series of physical metallurgical behaviors like TLP joining process on the bonding interface. The interface of two types of core materials gains good bonding and the main mechanical performances of bonding plates are improved markedly. In the experiment, the model of TLP joining was provided and technical core of this process is the melting step inside intermediate materials.

Key words: bonding; TLP joining; intermediate layer; diffusion; interface

从 20 世纪 80 年代以来, 双金属复合材料的研究就已经成为材料科学研究的热点^[1]。在双金属复合材料的各种生产工艺中, 轧制复合工艺由于技术比较成熟, 可以实现连续化生产等特点应用范围较广。但对于应用前景非常广阔的不锈钢复合板而言, 传统的热轧复合工艺存在着生产率低, 氧化严

重等缺陷; 而冷轧复合工艺又由于不锈钢的变形抗力很大, 从而对轧机刚度提出了更高的要求^[2], 因而急需开发出一种新的高效、节能, 适合大规模工业生产的不锈钢复合板的制备工艺。

目前 TLP 连接技术以其工艺简单、生产率高, 连接牢固等特点在焊管的生产以及多类异种材料的

① 基金项目: 国家自然科学基金资助项目(50174019)

收稿日期: 2004-06-01; 修订日期: 2004-11-01

作者简介: 祖国胤(1977-), 男, 博士研究生。

通讯作者: 祖国胤, 博士研究生; 电话: 024-83686415; E-mail: zuguoyin@163.com

连接中得到了广泛的应用,并受到各国学者的密切关注^[3-7]。本文作者将 TLP 连接技术成功地应用于不锈钢-3003 铝合金复合板的制备工艺中,借助于中间层 4045 铝合金在轧制过程中所实现的瞬间液化效果,使不锈钢与 3003 铝合金在加热温度为 570 ℃,变形率为 30% 的条件下实现了良好的复合,复合板的各项力学性能均达到或超过同类产品的相关标准。实验中所得到的工艺参数对实际生产具有重要的参考价值。

1 实验

1.1 实验材料

1) 3003 铝合金带 规格为:宽 25 mm,厚 1.80 mm。主要成分(质量分数,%)为:Si ≤0.20, Mn 1.20, Mg 0.20, Cu 0.20, Zn ≤1.50, Al 余量。

2) 不锈钢带 采用奥氏体不锈钢 304,规格为:宽 25 mm,厚 0.25 mm。主要成分(质量分数,%)为:C 0.05, Si 0.47, Mn 1.22, Cr 18.19, Ni 8.34, Fe 余量。

3) 中间层材料 采用 4045 铝合金箔,规格为:宽 25 mm,厚 0.05 mm。主要成分(质量分数,%)为:Si 10, Fe 0.8, Cu 0.3, Mn 0.05, Mg 0.05, Al 余量。

1.2 实验工艺

在本实验中采用传统的表面清理、轧制复合、扩散退火的“三步法”复合生产工艺。对于不锈钢采用钢质铁刷手工清刷后用丙酮清洗,烘干的清理方法。铝的清理工序为先用 15% 的 NaOH 溶液碱洗 3~5 min,取出用清水冲净后在 10% 的 HNO₃ 溶液中酸洗中和 2~3 min,经冲洗后烘干。

采用 4045 铝合金作为轧制复合的中间夹层材料,其主要原因在于 4045 铝合金本身具有良好的综合性能,尤其是具有良好的焊接性。4045 铝合金与两种基体间的润湿性较好,不会形成有害的金属间化合物,并且在经济性方面也较为理想^[8-10]。4045 铝合金的熔点为 582 ℃,低于 3003 铝合金的熔点,而硅元素也是一种比较理想的 MPD 元素^[11],因此 4045 铝合金适宜做为不锈钢与 3003 铝合金轧制复合的中间层材料。由于 4045 铝合金很脆,所以在熔铸时采用 Al-Ti-B 细化剂进行晶粒细化,以使其具有良好的塑性。

坯料的加热温度设定为 520、550、570 和 590 ℃,变形率设定为 20%、30% 和 40%。

实验中测定了复合板主要的力学性能参数。复合板的反复弯曲次数可以直观地反映材料的冷弯加工性能,根据 GB2073-93 双金属弯曲性能的测试标准制备试样,试样宽度为 15~18 mm,夹口圆弧半径为 $r=8$ mm。在 Instron4206 电子材力试验机上测定了复合板的抗拉强度和延伸率的指标。

2 结果及分析

2.1 金相组织分析

图 1 所示为采用不同加热温度而实现轧制复合的不锈钢-3003 铝合金复合板的金相显微组织。图 1(a)所对应的加热温度为 520 ℃,从图中可以看到中间层 4045 铝合金的形貌为典型的轧制态组织,其中 Si 颗粒呈多边形,且基本上均匀地分布在铝基体上。此时基体 3003 铝合金和中间层 4045 铝合金的主要元素 Al 和 Si 已经处于很高的活化状态,在轧制压力的作用下各自的氧化膜被挤碎,纯净的金属发生直接接触并形成牢固的结合。对于变形抗力很大的不锈钢,轧制压力的作用并不能使其表面致密的氧化膜(主要成分为 Cr₂O₃)破碎,主要的结合方式为 4045 铝合金在不锈钢表面形成一些不连续的“粘和”点,两种材料之间发生的是结合强度很低的“机械啮合”。虽然在退火热处理的过程中可以使“粘和”点的结合更加牢固,但是结合强度尤其是弯曲强度依然不是很高,使复合板的再加工性能受到制约。在加热温度为 520 和 550 ℃时复合板的结合方式较类似于传统的钎焊工艺,区别在于在轧制复合的过程中,轧制力发挥了很大的作用,适当的轧制力可以起到良好的去膜作用,同时由于轧制复合在极短的时间内即可完成,避免了钎焊工艺需要钎剂保护的缺点。但由于中间层 4045 铝合金同不锈钢基体的结合强度较低,影响了复合板的整体综合性能,产品不能满足相关的要求。

图 1(b)所示复合板的加热温度为 570 ℃,对比图 1(a)可以发现,中间层 4045 铝合金的显微组织存在着明显的差异。在图 1(b)中白色圆球状的物质为初生 α (Al),树枝间隙中为(α +Si)共晶组织,共晶组织中的深灰色粒状物为共晶 Si,在共晶组织中,少量的灰色片状物是一些杂质相,杂质相绝大多数呈短杆状分布,此时 4045 铝合金的组织形貌同铸造态时的形貌基本相似。造成这种情况的主要原因在于已经被加热到 570 ℃的坯料被送入轧机后,在轧制压力作用下产生了大量的变形热,变形热使得坯料的温度进一步上升,当温度达到 4045

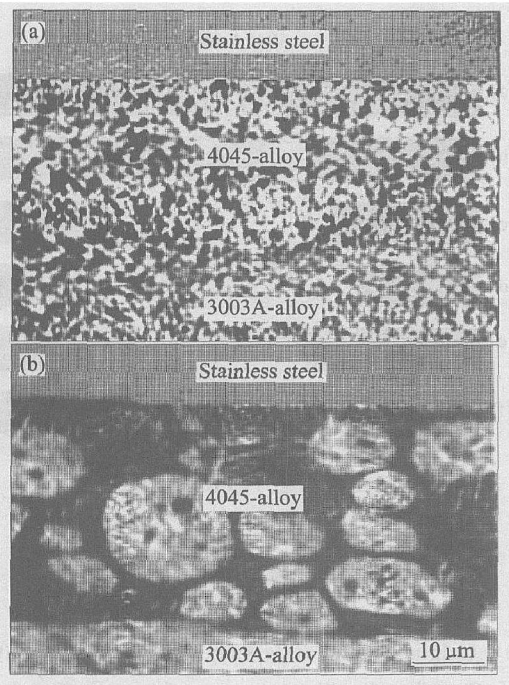


图 1 不同加热温度下复合板的金相显微组织

Fig. 1 Metallurgical structures of bonding plate at different temperatures
(a) -520 °C; (b) -570 °C

铝合金的熔点后, 4045 铝合金就产生了瞬间液化现象, 之后在复合界面上发生了一系列类似 TLP 连接过程的物理冶金变化。

2.2 背反射扫描像

图 2 所示为在加热温度为 570 °C 的条件下未经退火的复合板复合界面的背反射像, 从图中可以看到整个的复合界面可以分为中间层区、中间层金属/基体金属界面扩散区、基体金属区等几个部分。

中间层 4045 铝合金由于在轧制复合的过程中产生了瞬间液化现象, 处于液态的金属极易发生扩

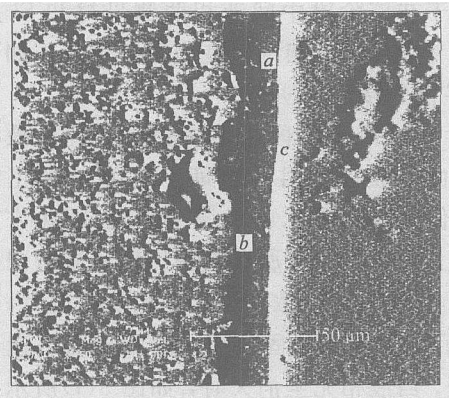


图 2 复合界面的 SEM 背反射像

Fig. 2 SEM back-reflection image on composite interface

散, 两种基体中 3003 铝合金的成分与 4045 铝合金的较为接近, 并且铝原子和锰原子的活性更高, 因而相比之下中间层 4045 铝合金更易向 3003 铝合金基体中扩散, 由图可见轧制后的中间层 4045 铝合金(*a* 区) 的厚度仅为 10~ 15 μm, 而 4045 铝合金/3003 铝合金的扩散区(*b* 区) 的厚度也可以达到 5~ 10 μm, 说明在这种工艺制度下扩散已经进行得较为理想, 在复合界面上发生了十分有利于复合的“扩散机制”。在中间层 4045 铝合金与不锈钢交界处出现的白亮色条状区域(*c* 区) 是不锈钢一侧的 C 元素向 4045 铝合金中扩散的结果, 扩散后造成这一区域成为贫碳区。贫碳区的塑性极差, 表现为具有很高的脆性, 从而导致复合板的结合强度急剧下降, 在测试复合板的弯曲强度的过程中可以发现分层主要发生在这一区域。

2.3 变形率对复合板结合强度的影响分析

在 TLP 连接过程中, 需要施加适当的压力, 但压力过大或过小都会影响结合效果^[12], 在轧制复合工艺中, 压力的影响主要通过变形率的变化来体现。表 1 列出了不同工艺条件下复合板的主要力学性能数据, 从中可以发现变形率对复合板结合强度的影响规律。

表 1 不同工艺条件下复合板的主要力学性能参数

Table 1 Main mechanical property parameters of composite board under different processing conditions				
Heating up temperature/ °C	Deformation rate/ %	Tensile strength/ MPa	Numbers of flexure	Elongation/ %
520	20	222.4	9	42.34
520	30	234.8	12	45.71
520	40	256.7	14	45.94
550	20	236.5	10	47.13
550	30	249.6	12	49.25
550	40	254.2	13	54.76
570	20	232.4	16	59.27
570	30	269.3	20	65.35
570	40	170.6	18	53.86
590	20	192.3	6	44.38
590	30	199.6	6	48.16
590	40	210.4	7	50.23

从表 1 可以发现, 在加热温度为 520 和 550 °C 时, 复合板的主要力学性能值随着变形率的增大而提高。这是由于随着变形率的增大, 中间层的铺展面积增大, 压力所做的机械功转化为材料的表面

能, 表面能的增加能够有效改善材料的润湿性。另外变形率的增大可以提高不锈钢表面氧化膜的破坏率, 增加不锈钢基体与中间层 4045 铝合金形成的有效接触面积, 从而提高其结合强度。当加热温度提高到 570 °C 后, 由于在轧制复合的过程中发生了中间层的瞬间液化过程, 因此变形率对复合板结合强度的影响规律有所不同, 在变形率为 30% 时, 复合板的各项力学性能达到最佳。这是由于在变形率为 20% 时, 中间层同基体之间存在着一定的间隙, 造成了中间层的扩散不能够充分进行, 使结合强度受到影响。当变形率达到 40% 以后, 一方面会使熔化态的 4045 铝合金被大量挤出, 熔融中间层的粘度变大, 流动性降低, 中间层难以和基体形成充分地接触。另一方面剩余的液态中间层过少, 不足以和基体产生一定程度的润湿、溶解、扩散等相互作用, 导致结合性能变差。通过实验发现在变形率为 30% 时, 复合板的各项力学性能均比较理想, 中间层 4045 铝合金的连接作用得到了充分发挥。因此本实验中加热温度为 570 °C, 变形率为 30% 是不锈钢-3003 铝合金复合板的最佳生产工艺。在加热温度达到 590 °C 后, 已经在加热中呈液态存在的 4045 铝合金在进入轧机后几乎被全部挤出, 复合板的结合强度很低。

3 轧制复合工艺中 TLP 连接过程模型

对于 TLP 扩散连接过程, Tuahr-Poku 等^[13]提出了四阶段方法来描述整个过程, 但由于本实验采用轧制工艺来实现异种金属之间的复合, 所以其连接过程又有别于传统的四阶段过程。图 3 所示为在轧制复合工艺条件下 TLP 扩散连接的实现过程。

1) 中间层熔化阶段 如图 3(a) 所示, 当将坯料从加热炉中取出时, 由于所设定的加热温度 570 °C 尚未达到中间层 4045 铝合金的熔点, 所以母材和中间层均处于固态。将坯料送入轧机进行轧制时, 在轧制过程中产生了大量的变形热, 变形热使坯料温度进一步升高, 同时在轧制压力的作用下, 在中间层 4045 铝合金与两侧基体的界面处产生了一定的摩擦热, 因而在这一区域温度上升得更快。当温度达到 4045 铝合金的熔点 582 °C 后, 中间层出现液化现象, 中间层与母材的接触界面处发生溶解, 形成液态共晶体, 即过渡到图 3(b) 所表征的阶段。在本实验中中间层 4045 铝合金轧后厚度仅为 20 μm 左右, 因此虽然轧制时间很短, 但依然可以保证中间层的完全融化, 这可以从未经热处理的试

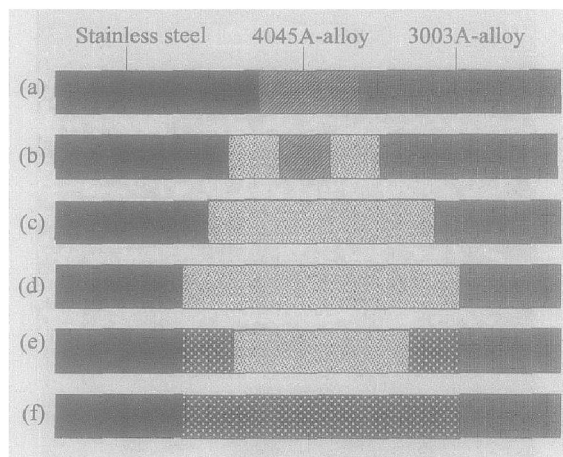


图 3 轧制复合工艺中 TLP 连接过程示意图

Fig. 3 Diagrammatic sketch of TLP joining in roll process

- (a) —Solid state stage of intermediate layer;
- (b) —Original liquid state stage of intermediate layer;
- (c) —Complete liquid state stage of intermediate layer;
- (d) —Uniform stage of liquid phase;
- (e) —Original stage of isothermal solidification;
- (f) —End stage of isothermal solidification

样的金相组织中得到证明。当如图 3(c) 所示中间层完全溶解时, 中间层熔化阶段结束。

2) 液相均匀化阶段 相比于传统的 TLP 扩散连接过程, 由于采用轧制复合工艺时复合在很短的时间内完成, 并且没有进行保温处理, 因此均匀化的效果并不明显。但由于中间层液相中溶质原子 Si 存在着从液相中央到固液边界的正的浓度梯度, 因而促使液相中 Si 原子继续向固液边界扩散, 使得不锈钢和 3003 铝合金溶解, 液相中溶质原子 Si 的平均浓度含量不断降低。当中间液相与熔化边缘的固相成分达到平衡时, 液相层达到了最大宽度, 即达到图 3(d) 所示的效果, 此时液相均匀化阶段结束。由于在该阶段中间液相两侧母材和 Si 发生反应而溶解, 所以液相继续变宽, 但效果不如一般的 TLP 扩散连接过程明显。

3) 等温凝固阶段 当液相层达到了最大宽度之后, 由于液相和固相之间还存在 Si 的正的浓度梯度, 促使固液边界处 Si 原子继续向母材扩散, 但由于温度迅速降低, 所以这种扩散非常微弱^[14]。当液固边界处 Si 原子浓度小于固相线浓度时, 如图 3(e) 所示发生等温凝固现象, 液固界面迅速向液相中推进。当液相完全消失时, 如图 3(f) 所示等温凝固阶段结束。

4) 接头均匀化阶段 由于在固相中溶质原子的扩散速度较慢, 因而造成该阶段完成时间较

长^[15], 在轧制复合工艺中, 在等温凝固结束后, 连接过程已经完成, 并没有一般意义上的接头均匀化阶段。不过在对试样进行后续退火热处理的过程中, 在复合界面上会发生类似接头均匀化的效果, 使复合强度得到进一步的提高。

REFERENCES

- [1] 于九明, 孝云祯, 王群骄. 金属层状复合技术及其新进展[J]. 材料研究学报, 2000, 14(1): 12-16.
YU Jiur-ming, XIAO Yun-zhen, WANG Qun-jiao. New development of technology of clad metal[J]. Chinese Journal of Materials Research, 2000, 14(1): 12-16.
- [2] 于九明, 李河宗, 黄素霞. 有助复剂温轧不锈钢复铝板实验研究[J]. 东北大学学报, 2002, 23(6): 563-565.
YU Jiur-ming, LI Her-zong, HUANG Su-xia. Investigation of stainless steel/aluminum bonding sheets by aid composite reagent temperature rolling[J]. Journal of Northeastern University, 2002, 23(6): 563-565.
- [3] 李文, 金涛, 孙晓峰. 镍基单晶高温合金 TLP 连接[J]. 金属学报, 2001, 37(11): 1165-1168.
LI Wen, JIN Tao, SUN Xiaofeng. TLP bonding of Ni-base single crystal superalloy[J]. Acta Metallurgica Sinica, 2001, 37(11): 1165-1168.
- [4] YU Zhi-shui, WANG Feng-jiang, LI Xiao-quan, et al. Transient liquid phase diffusion bonding of copper alloy to stainless steel using CuMn alloys as interlayer[J]. Trans Nonferrous Met Soc China, 2000, 10(3): 349-352.
- [5] 张贵峰, 张建勋. 非晶态金属箔带作中间层的瞬间液相扩散焊焊管技术[J]. 焊接, 2000, 4(2): 35-37.
ZHANG Guifeng, ZHANG Jianxun. The pipe welding technique by transient liquid phase diffusion bonding with amorphous ribbon[J]. Welding, 2000, 4(2): 35-37.
- [6] 曲文卿, 庄鸿寿, 张彦华. 异种材料 TLP 扩散连接过程的非对称性[J]. 中国有色金属学报, 2003, 13(2): 300-304.
QU Wen-qing, ZHUANG Hong-shou, ZHANG Yan-hua. Dissymmetry of TLP diffusion bonding of dissimilar materials[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2003, 13(2): 300-304.
- [7] 李晓红, 毛唯, 程耀永. Ni₃Al 基超合金的瞬间液相扩散连接接头的微观结构和性质[J]. 中国有色金属学报, 2001, 11(3): 405-408.
LI Xiaohong, MAO Wei, CHENG Yaoyong. Microstructures and properties of transient liquid phase diffusion bonded joints of Ni₃Al base superalloy[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2001, 11(3): 405-408.
- [8] 曲文卿, 王奇娟, 张彦华. 铝基复合材料与铝合金的 TLP 扩散连接[J]. 焊接学报, 2002, 23(6): 67-70.
QU Wen-qing, WANG Qir-juan, ZHANG Yan-hua. TLP diffusion bonding of aluminum base composite and aluminum alloy[J]. Transactions of The China Welding Institution, 2002, 23(6): 67-70.
- [9] SUN Da-qian, LIU Weihong, JIA Shusheng, et al. Formation process, microstructure and mechanical property of transient liquid phase bonded aluminum-based metal matrix composite joint[J]. Trans Nonferrous Met Soc China, 2004, 14(1): 105-110.
- [10] 孙大谦, 刘卫红, 吴建红, 等. 铝基复合材料瞬间液相扩散连接接头的组织与力学性能[J]. 焊接学报, 2002, 23(5): 65-68.
SUN Da-qian, LIU Weihong, WU Jianhong, et al. Microstructure and mechanical property of transient liquid phase bonded aluminium-based metal matrix composite joints[J]. Transactions of The China Welding Institution, 2002, 23(5): 65-68.
- [11] Hoppin G S, Berry T F. Activated diffusion bonding[J]. Welding Journal, 1970, 49(11): 505-509.
- [12] 张贵峰, 张建勋, 王士元, 等. 瞬间液相扩散焊与钎焊主要特点之异同[J]. 焊接学报, 2002, 23(6): 92-96.
ZHANG Guifeng, ZHANG Jianxun, WANG Shiyuan, et al. Similarities and differences in main characteristics between transient liquid phase bonding and brazing process[J]. Transactions of The China Welding Institution, 2002, 23(6): 92-96.
- [13] Tuan-Poku I, Dollar M, Massalski T B. Study of the transient liquid phase bonding process applied to a Ag/Cu/Ag sandwich joint[J]. Metallurgical Transactions, 1998, 19A: 675-686.
- [14] Shirzadi A A, Wallach E R. Analytical modelling of transient liquid phase (TLP) diffusion bonding when a temperature gradient imposed[J]. Acta Mater, 1999, 47(13): 3551-3560.
- [15] 周飞, 李志章. Ti/Cu/Ti 部分瞬间液相连接 Si₃N₄ 的界面反应和连接强度[J]. 中国有色金属学报, 2001, 11(2): 273-278.
ZHOU Fei, LI Zhizhang. Interfacial reaction and joint strength of Si₃N₄ partial transient liquid phase bonded with Ti/Cu/Ti multi-interlayer[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2001, 11(2): 273-278.

(编辑 龙怀中)