

文章编号: 1004 - 0609(2004) 06 - 0973 - 06

利用高频磁场制备自生梯度复合材料的熔体温度选择^①

李赤枫, 王 俊, 疏 达, 李 克, 孙宝德

(上海交通大学 金属基复合材料国家重点实验室, 上海 200030)

摘 要: 研究了通过在熔体凝固过程中的不同温度范围施加高频磁场制备自生梯度复合材料的工艺。对于 Al/Mg₂Si/Si 自生梯度复合材料, 近似计算及实验结果表明: Al+ Mg₂Si 二元共晶区(555~ 595 ℃)是施加高频磁场的最佳温度范围, 此时处于低粘性熔体中的增强颗粒容易被外加电磁阿基米德力分离。高频磁场施加温度过高或过低, 均不易使增强颗粒产生梯度分布效果。

关键词: 自生梯度复合材料; 高频磁场; 过共晶; Al/Mg₂Si/Si 合金

中图分类号: TB 331

文献标识码: A

Temperature selection in melt for preparing in-situ graded composites with high frequency magnetic field

LI Chi-feng, WANG Jun, SHU Da, LI Ke, SUN Bao-de

(State Key Laboratory of Metal Matrix Composites, Shanghai Jiaotong University,
Shanghai 200030, China)

Abstract: The method for preparing in-situ graded composites was investigated by imposing high frequency electromagnetic field in different temperature ranges during their solidifications. Through approximate calculations and experiments, it is showed that the best temperature range for exerting the high frequency electromagnetic field exists in the Al+ Mg₂Si binary eutectic area(555 ~ 595 ℃) in the case of Al/Mg₂Si/Si in-situ graded composite, where the reinforcing particles can be easily separated in the low viscous melt. Otherwise, reinforcements can hardly distribute as desired.

Key words: in-situ graded composite; high frequency magnetic field; hyper eutectic; Al/Mg₂Si/Si alloy

在颗粒增强金属基复合材料的原位复合方法中, 原位结晶复合由于增强颗粒通过原位结晶形成, 高温下复合材料熔体中无既存增强颗粒, 因而该方法所制备的复合材料, 在重熔回用性方面比用其他原位制备方法获得的复合材料有更显著的优势。同时, 该方法采用的加热温度与常规熔炼温度相近, 更适合轻合金基自生复合材料的制备, 也可方便地在复合材料的凝固过程中对自生增强颗粒施加各种不同的作用, 以实现增强颗粒形态、尺寸、分布等方面的“可设计性”^[1, 2]。这种复合方法正逐

渐成为制备“可设计”的金属基复合材料的一条重要途径。

利用金属熔体与其中非金属异质相之间显著的导电性差异分离非金属相的原理首次由 Leenov 等^[3]提出。当金属熔体置于通有高频电流的螺线管内部时, 在金属中会感生出频率和外加高频电流一致的涡流。相互正交的涡流和感应高频磁场之间的作用, 使金属熔体受到径向电磁收缩力的影响。此时金属熔体中若存在非金属颗粒, 颗粒将受到与熔体受力相反的径向电磁阿基米德力的作用, 最终使

① 基金项目: 国家自然科学基金资助项目(50101005); 国家高技术研究发展计划资助项目(2002AA336072)

收稿日期: 2003 - 09 - 20; 修订日期: 2003 - 11 - 24

作者简介: 李赤枫(1978 -), 男, 硕士研究生。

通讯作者: 王 俊, 副教授; 电话: 021 - 62932870; E-mail: Junwang@sjtu.edu.cn.

非金属颗粒向外表面产生径向迁移和富集。这一方法目前已被用于铝合金熔体的净化研究^[4~6]，而将其与原位结晶复合方法相结合，制备自生径向梯度复合材料的报道较少。

在利用高频磁场制备原位结晶梯度复合材料的过程中，熔体温度过高会造成增强颗粒重熔，温度过低则增强颗粒又会因熔体粘度增加而难以迁移。因此，高频磁场的施加存在最佳的熔体温度时机，它与铸模材料的散热能力及磁场本身的加热效应等因素有密切关系。本文作者拟针对上述现象，重点考察施加高频磁场时的熔体温度对 Al/Mg₂Si/Si 自生复合材料梯度效果的影响。

1 实验

以工业纯 Al、Mg 及多晶 Si 为原料，在电阻炉加热的石墨坩埚中熔配自生 Mg₂Si 颗粒增强复合材料(Al-15%Mg₂Si-5%Si 过共晶合金，质量分数)。熔配合金时用少量 MgCl₂/MgO 系覆盖剂覆盖熔体，以减少 Mg 元素的烧损。合金熔配温度 770 °C，熔体于 730~750 °C 用 C₂Cl₆ 进行精炼处理，静置 10~15 min 后浇注成复合材料锭。该复合材料经 800 °C 重熔后，浇入置于高频磁场中的 SiC 铸模中(见图 1)。自生 Mg₂Si 增强颗粒将在熔体凝固过程中原位形成，并在电磁阿基米德力作用下定向迁移至铸件外表面。最终可获得半径为 5 mm 的自生梯度复合材料棒。

首先采用多通道数据采集系统记录高频磁场作用下，Al/Mg₂Si/Si 复合材料熔体在预热到不同温度的模具内的冷却曲线，以得到铸模预热温度与入模熔体温度之间的经验关系。然后根据上述关系，在复合材料凝固过程中的不同温度范围施加高频磁场，以考察高频电磁场作用对自生复合材料梯度效果的影响。高频电磁场的频率为 20 kHz，高频磁场输入功率为 10 kW^[7]。记录高频磁场的作用时间和熔体的冷却曲线，并利用 LECO-IA32 图像分析系统对所得复合材料进行金相观察。

2 结果与讨论

测量了 Al/Mg₂Si/Si 系复合材料熔体在砂型铸模中的冷却曲线，结果见图 2。由图 2 可知，Al/Mg₂Si/Si 系复合材料(Al-15%Mg₂Si-5%Si 过共晶合金)在凝固过程中存在 5 段特征温度范围，分别表

示为液相冷却区(A)、Mg₂Si 初生相析出区(B)、Al+Mg₂Si 二元共晶区(C)、Al+Mg₂Si+Si 三元共晶区(D)及固相冷却区(E)，如图 2 所示。当复合材料处于液相或固相时，感生高频磁场不能造成增强体的宏观迁移运动，因而区域 B、C、D 是实验中需要考察的施加高频磁场的熔体温度范围。从 Al-

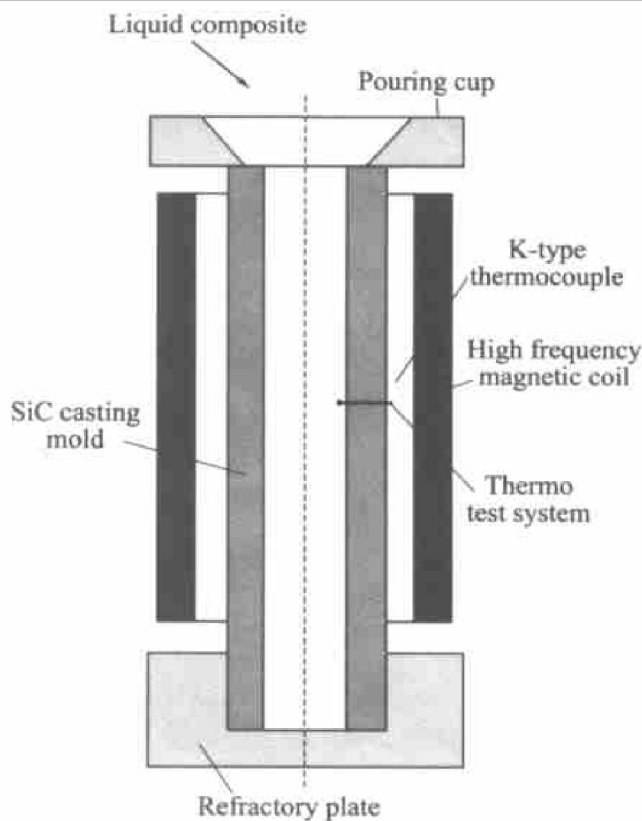


图 1 利用高频磁场制备自生梯度复合材料的实验装置

Fig. 1 Experimental setup for preparing in-situ graded composites with high frequency magnetic field

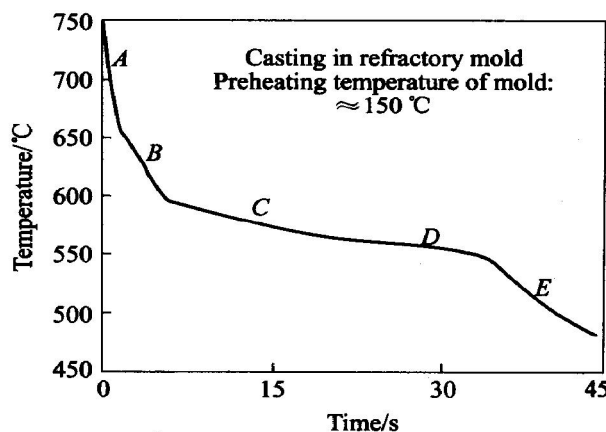


图 2 Al/Mg₂Si/Si 自生复合材料的冷却曲线

Fig. 2 Cooling curve of Al/Mg₂Si/Si in-situ composites

Mg-Si 三元相图中可得到区域 B、C、D 的温度范围

分别为 595~ 645 ℃、555~ 595 ℃及 555 ℃左右^[8, 9], 实际测量结果与有关文献报道的温度范围基本一致。

由于浇注过程中液态复合材料受到铸造模具激冷作用等因素的影响, 因而入模熔体温度比浇注温度低。通过实验测量的铸造模具预热温度和入模熔体温度之间的经验关系如图 3 所示。图 3 表明, 当铸造模具预热温度在 20 ℃~ 300 ℃范围内变化时, 入模熔体温度可以从 550 上升至 650 ℃。实验利用的高频磁场在液态复合材料浇注之前开启, 因而复合材料的入模温度即为高频磁场的开始作用温度。因此, 通过改变铸造模具的预热温度可基本控制高频磁场的开始作用温度。

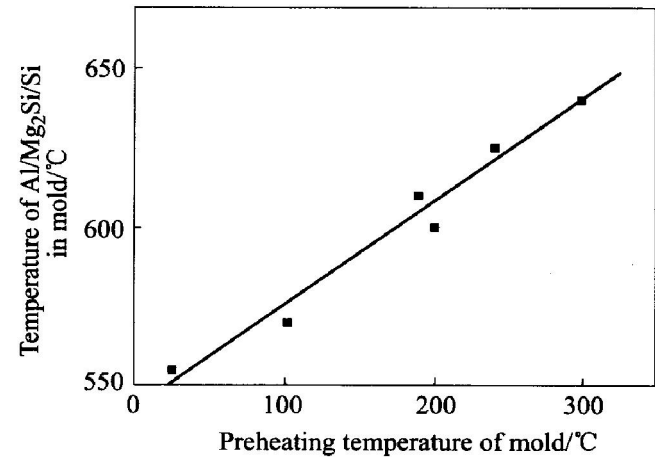


图 3 铸造模具预热温度与入模熔体温度的关系

Fig. 3 Relationship between temperature of in-situ composite pouring in mold and preheating temperature of mold

根据铸造模具预热温度和入模熔体温度之间的经验关系, 研究了在材料凝固过程中的不同温度范围施加高频磁场的影响。根据材料冷却曲线上出现的波动即可判断高频磁场的作用温度范围、作用时间, 以及铸造模具预热温度等影响制备自生梯度复合材料的工艺参数, 如图 4 所示。实验的工艺参数如表 1 所示。

在 Al/Mg₂Si/Si 系自生复合材料凝固过程中的不同温度范围施加感生高频磁场时, 在半径 $r = 1$ mm(近铸件中心)至 $r = 5$ mm(边缘)径向区域内材料的微观组织如图 5 所示(左侧为 $r = 1$ mm, 右侧为 $r = 5$ mm)。其中黑色的是 Mg₂Si 增强体, 白色的为 α (Al), 灰色的是共晶组织。当施加高频磁场时熔体的温度偏高(初生 Mg₂Si 析出区见图 5(a))或偏低(Al+ Mg₂Si+ Si 三元共晶区, 见图 5(d)),

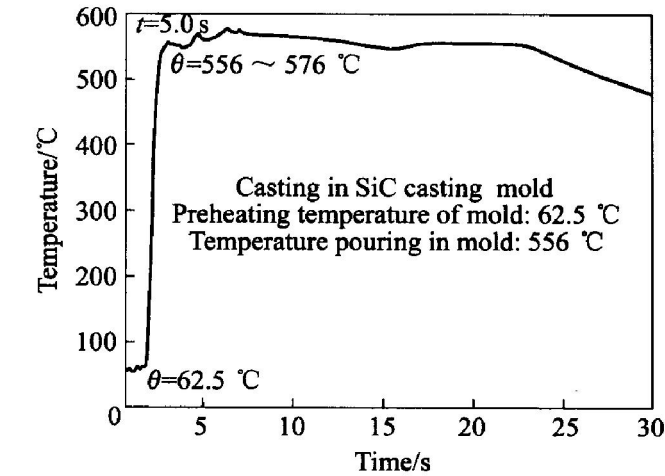


图 4 在 Al+ Mg₂Si 二元共晶区施加感生高频磁场时 Al/Mg₂Si/Si 自生复合材料的冷却曲线

Fig. 4 Cooling curve of Al-Mg₂Si-Si in-situ composite with high frequency magnetic field exerting in Al+ Mg₂Si binary eutectic temperature range

表 1 高频磁场实验的主要工艺参数

Table 1 Main experimental processing parameters of high frequency magnetic field

Sample	Preheating temperature of SiC casting mold/ ℃	Temperature range/ ℃	Imposing time/ s
(a)	24. 9	535. 8~ 550. 9	11. 1
(b)	62. 5	556. 0~ 576. 0	5. 1
(c)	113. 0	577. 1~ 606. 6	6. 5
(d)	289. 7	630. 0~ 654. 1	5. 9

增强体在基体组织中的分布基本上是均匀的, 说明高频磁场未对自生增强颗粒产生有效的偏聚作用; 当高频磁场的施加温度在 Al+ Mg₂Si 二元共晶区时(见图 5(b)、(c)), 高频磁场在比较短的时间内(分别为 5. 1, 6. 5 s, 如表 1 所示)就可以完成对自生增强体的偏聚作用, 增强颗粒基本上都集中在材料径向外表面约 2 mm 的区域内。

为了使铸件的外层具有更优异的性能(如耐磨性、硬度等), 以满足材料“外硬内韧”梯度性能的可设计性, 仍需进一步增加 Mg₂Si 增强颗粒向外表面偏聚程度, 也即在不导致熔体显著温升的条件下, 延长高频磁场对熔体的作用时间。相关工艺研究有待深入, 本文仅讨论施加高频磁场时熔体最佳温度的选择问题。

在直棒状铸造模具中球形增强颗粒的迁移速度

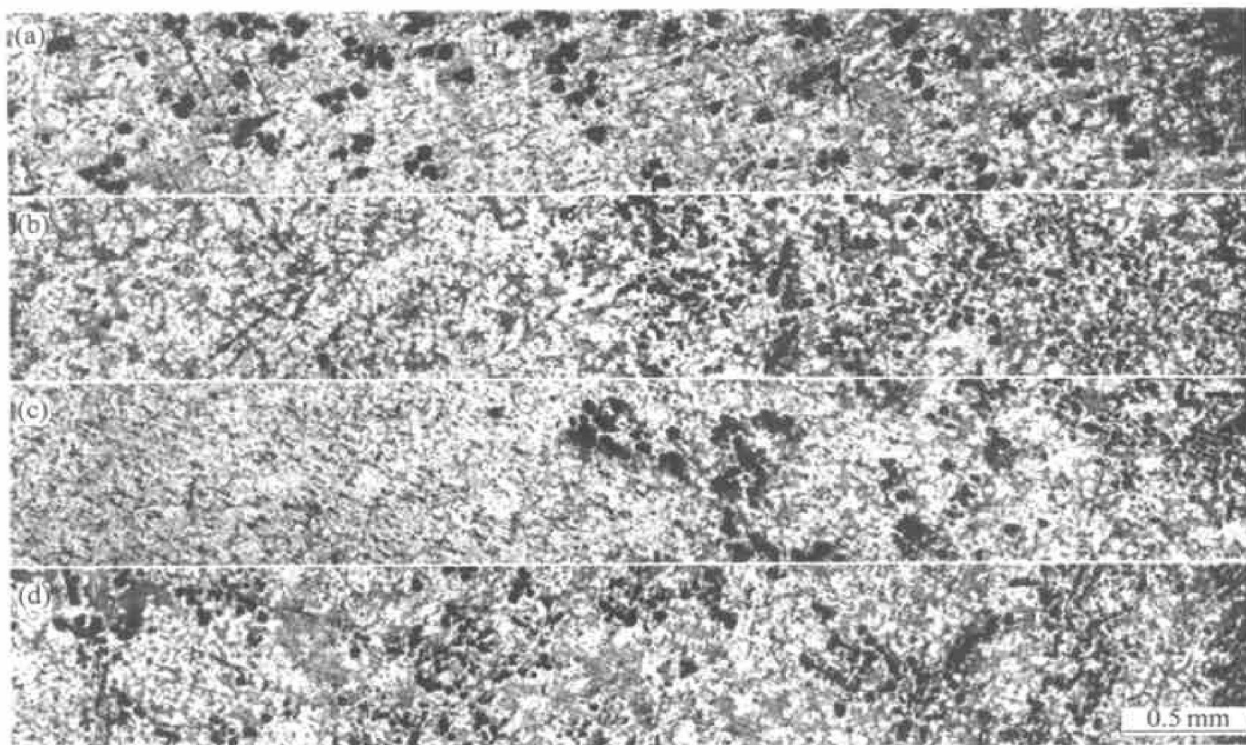


图 5 高频磁场施加于熔体不同温度范围时 Al/Mg₂Si/Si 自生复合材料的微观组织

Fig. 5 Microstructures of Al/Mg₂Si/Si in-situ composites prepared with high frequency magnetic field exerting in various temperature range of melt
(a) -630.0~654.1 °C; (b) -577.1~606.6 °C; (c) -556.0~576.0 °C; (d) -535.8~550.9 °C

(v) 是颗粒直径(d) 和熔体粘度(η) 的函数^[10~12], 可表示为

$$v = k_1 \frac{d^2}{\eta} \quad (1)$$

式中 k_1 为与高频磁场参数有关的系数。

熔体的粘度(η) 可以近似表示为温度(θ) 的函数^[13], 即

$$\eta = 10^{-3.3} \exp(3.34\theta_L / \theta - 0.25\theta_L) \quad (2)$$

式中 θ_L 表示合金的液相线温度。对于实验采用的 Al/Mg₂Si/Si 自生复合材料, 可近似以 Al-15% Mg₂Si-5% Si 过共晶合金的液相线温度代替^[14], 即 $\theta_L = 645$ °C。

假设自生 Mg₂Si 增强颗粒以球形存在于复合材料熔体中, 并且以质量均匀增加的方式长大。可以近似认为 Mg₂Si 增强颗粒在初生相析出区及 Al-Mg₂Si 二元共晶区完成生长过程^[15]。球形增强颗粒的尺寸(d) 与时间(t) 的关系可近似表示为

$$d = k_2 \sqrt{t} \quad (3)$$

式中 k_2 是与增强颗粒长大方式有关的系数。

根据实验测量的熔体冷却曲线可以推测, 在初生相析出区(645~595 °C) 及 Al+Mg₂Si 二元共晶区(595~555 °C) 内, 复合材料的降温速度相差约 4.5 倍(见图 2)。假设经过时间 t , 复合材料的温度为

θ , 则时间 t 可表示为温度 θ 的分段函数(复合材料在初生相析出区的降温速度为 v_H , 在 Al+Mg₂Si 二元共晶区的降温速度为 $v_H/4.5$):

$$t = \begin{cases} \frac{1}{v_H} (645 - \theta) & (\theta = 595 \sim 645 \text{ °C}) \\ \frac{1}{v_H} (2727 - 4.5\theta) & (\theta = 555 \sim 595 \text{ °C}) \end{cases} \quad (4)$$

将式(4)代入式(3)可得到增强颗粒的尺寸(d) 与温度(θ) 之间的分段函数:

$$d = \begin{cases} k_3 (645 - T)^{1/3} & (\theta = 595 \sim 645 \text{ °C}) \\ k_3 (2727 - 4.5T)^{1/3} & (\theta = 555 \sim 595 \text{ °C}) \end{cases} \quad (5)$$

式中 k_3 是与增强颗粒长大方式及冷却环境等有关的比例系数。

由式(1)、(2)、(5), 可以求得球形增强颗粒迁移速度(v) 与温度(θ) 之间的关系式:

$$v = \begin{cases} k \exp[3.34/(0.25 - \theta/645)] (645 - \theta)^{2/3} & (\theta = 595 \sim 645 \text{ °C}) \\ k \exp[3.34/(0.25 - \theta/645)] (2727 - 4.5\theta)^{2/3} & (\theta = 555 \sim 595 \text{ °C}) \end{cases} \quad (6)$$

式中 k 是与实验环境及材料特性等有关的比例系数。由于近似计算仅考察球形增强颗粒迁移速度与其最大迁移速度之间的相对关系, 因而不必考虑

k 、 k_1 、 k_2 、 k_3 的具体表达关系。

通过实验, 得出 v 、 θ 之间的关系如图 6 所示。

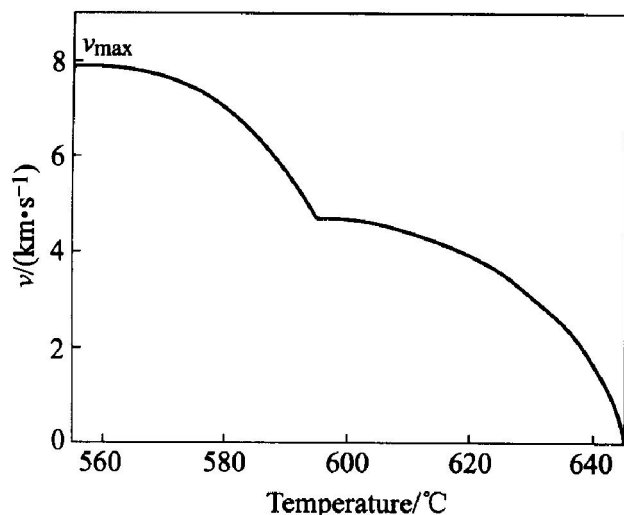


图 6 球形增强颗粒迁移速度与温度之间的关系

Fig. 6 Relationship between moving velocity of reinforcements and temperature

由图 6 可知, 当 $\theta = 555\text{ }^{\circ}\text{C}$ 时, 球形增强颗粒迁移速度(v)有最大值 $v_{\max}$ 。取 $v = 0.5v_{\max} \sim 1.0v_{\max}$, 可以近似求得高频磁场的最佳施加温度范围: $\theta = 555 \sim 605\text{ }^{\circ}\text{C}$, 即 Al+ Mg₂Si 二元共晶区。

比较近似计算及实验结果可知, 高频磁场的施加温度与计算结果一致。高频磁场在 Al+ Mg₂Si 二元共晶区施加时, 增强颗粒受到的基体粘滞阻力较小, 可以产生良好的偏聚效果。当高频磁场在 Mg₂Si 初生相析出区作用时, 由于热效应导致的温升, 增强颗粒将迅速重熔, 当高频磁场作用终止后, 增强颗粒又会重新析出, 并在固/液界面推移等因素的影响重新析出于偏聚层以外的区域, 导致自生复合材料难以获得需要的梯度效果。而当高频磁场在 Al+ Mg₂Si+ Si 三元共晶区施加时, 虽然此时增强颗粒已经形成, 但熔体粘度很高, 将严重阻碍增强颗粒的移动, 因此仍然不能获得具有良好梯度效果的自生复合材料。

3 结论

1) 在 Al-Mg₂Si-Si 自生复合材料中, Al-Mg₂Si 二元共晶区 ($560 \sim 580\text{ }^{\circ}\text{C}$) 是施加高频磁场的最佳温度范围。

2) 高频磁场施加时熔体的温度偏高或者偏低, 都不能使自生复合材料得到梯度分布效果。

REFERENCES

- [1] 王 俊, 李赤枫, 何树先, 等. 自生金属基复合材料的研究进展[J]. 铸造技术, 2002, 23(3): 142 - 149.
WANG Jun, LI Chifeng, HE Shuxian, et al. Review of in situ metal matrix composites[J]. Foundry Technology, 2002, 23(3): 142 - 149.
- [2] 李赤枫, 王 俊, 李 克, 等. 原位结晶法制备自生颗粒增强金属基复合材料的研究进展[J]. 材料导报, 2003, 17(10): 65 - 67.
LI Chifeng, WANG Jun, LI Ke, et al. A review of in situ crystallization technique in preparing MMCP[J]. Mater Rev, 2003, 17(10): 65 - 67.
- [3] Leenov D, Kolin A. Theory of electromagnetophoresis (I) — magnetohydrodynamic forces experienced by spherical and symmetrically oriented cylindrical particles[J]. J Chemical Physics, 1954, 22(4): 683 - 688.
- [4] Asai S. Recent development and prospect of electromagnetic processing of materials[J]. Sci Tech Adv Mater, 2000(1): 191 - 200.
- [5] 李 克, 孙宝德, 李天晓, 等. 利用高频磁场分离 Al 熔体中的非金属夹杂[J]. 金属学报, 2001, 37(4): 405 - 410.
LI Ke, SUN Baode, LI Tianxiao, et al. Application of high frequency magnetic field to separate inclusion particles in aluminum melt[J]. Acta Metall Sinica, 2001, 37(4): 405 - 410.
- [6] 李 克, 孙宝德, 疏 达, 等. 利用交变磁场分离空心圆柱状金属熔体中的非金属夹杂[J]. 上海交通大学学报, 2001(3): 375 - 379.
LI Ke, SUN Baode, SHU Da, et al. Separation of inclusion particles in hollow-cylinder like melt using alternating electromagnetic field[J]. J Shanghai Jiaotong University, 2001(3): 375 - 379.
- [7] 疏 达. 电磁分离铝熔体中非金属夹杂的理论研究[D]. 上海: 上海交通大学, 2001. 15 - 22.
SHU Da. Theoretic Study of Electromagnetic Separation of Nonmetallic Inclusions from Aluminum Melt[D]. Shanghai: Shanghai Jiaotong University, 2001. 15 - 22.
- [8] Barabash O M, Lyogka T M, Sulzhenko O V, et al. Thermodynamic analysis of the fusibility diagram for Al-Mg-Si system[J]. Metal Physics and Advanced Technologies, 2001, 19: 691 - 697.
- [9] LI S P, ZHAO S X, PAN M X, et al. Eutectic reaction and microstructure characteristics of Al(Li)-Mg₂Si alloys[J]. J Mater Sci, 2001, 36: 1569 - 1575.
- [10] SHU D, SUN B D, WANG J, et al. Study of electromagnetic separation of nonmetallic inclusions from aluminum

- melt[J]. Metall Mater Trans A, 1999, 30A: 2979 - 2988.
- [11] SHU Da, SUN Bao-de, WANG Jun, et al. Numerical calculation of the electromagnetic expulsive force upon non-metallic inclusions in an aluminum melt: Part II. cylindrical particles[J]. Metall Mater Trans B, 2000, 31B: 1535 - 1540.
- [12] SHU Da, SUN Bao-de, WANG Jun, et al. Numerical calculation of the electromagnetic expulsive force upon non-metallic inclusions in an aluminum melt: Part I. spherical particles[J]. Metall Mater Trans B, 2000, 31B: 1527 - 1533.
- [13] Shao G, Tsakiroopoulos P. Prediction of phase selection in rapid solidification using time dependent nucleation theory [J]. Acta Metall Mater, 1994, 42(9): 2937 - 2942.
- [14] Feufel H, Decke T G, Lukas H L, et al. Investigation of Al-Mg-Si system by experiments and thermodynamic calculations[J]. J Alloys Compounds, 1997, 247: 31 - 42.
- [15] ZHANG J, WANG Y, YANG B, et al. Effect of Si content on the microstructure and strength of an in situ Al/Mg₂Si composite[J]. J Mater Res, 1999, 14(1): 68 - 74.
- (编辑 龙怀中)