

先进焊接与连接

表面纳米化对高温 Ti 合金与 TiAl 合金的扩散连接工艺及力学性能影响

王浩淼¹, 史淑艳¹, 付雪松¹, 王晓晨¹, 周文龙¹, 许慧元², 李志强²

(1. 大连理工大学 材料科学与工程学院, 辽宁 大连 116085;

2. 中国航空制造技术研究院, 北京 100024)

摘要: **目的** 研究表面纳米化 Ti 合金与 TiAl 合金异质扩散连接的界面反应、力学性能和工艺条件。**方法** 利用高能喷丸技术对钛合金的表面进行纳米化处理, 然后在高温压力真空炉内进行扩散连接实验。**结果** Ti 合金/TiAl 扩散连接的结合强度与中间层厚度密切相关, 当中间层厚度为 1.7~2.0 μm 时, 剪切强度最大。**结论** 表面纳米化可以促进原子扩散、增加接头厚度、缩短扩散连接所需的时间。对于扩散界面存在缝隙接头, 在无压热处理条件下表面纳米化样品可以快速提高焊合率, 改善连接质量。

关键词: 表面纳米化; 扩散连接; 钛合金; 钛铝合金

DOI: 10.3969/j.issn.1674-6457.2020.02.008

中图分类号: TG453 **文献标识码:** A **文章编号:** 1674-6457(2020)02-0048-07

Effect of Surface Nanocrystallization on Diffusion Bonding Process and Mechanical Property of Titanium Alloy and Titanium Aluminium Alloy at High Temperature

WANG Hao-miao¹, SHI Shu-yan¹, FU Xue-song¹, WANG Xiao-chen¹,
ZHOU Wen-long¹, XU Hui-yuan², LI Zhi-qiang²

(1. School of Materials Science and Engineering, Dalian University of Technology, Dalian 116085, China;

2. AVIC Manufacturing Technology Institute, Beijing 100024, China)

ABSTRACT: The work aims to study the interfacial reaction, mechanical properties and process conditions of diffusion bonding between surface nanocrystallized Ti alloy and TiAl alloy. The surface layer of titanium alloy was nanocrystallized by high energy shot peening technology, and then diffusion bonding experiments were carried out in high temperature pressure vacuum furnace. The strength of Ti alloy/TiAl diffusion bonding was closely related to the thickness of the intermediate layer. When the thickness of the intermediate layer was in the range of 1.7-2.0 μm , the shear strength was the largest. Surface nanocrystallization can promote atom diffusion, increase joint thickness and shorten diffusion bonding time. For joints with gap in diffusion interface, surface nano-sample under non-pressure heat treatment strip can rapidly improve bonding rate and bonding quality.

KEY WORDS: surface nanocrystallization; diffusion bonding; TC11 titanium alloy; titanium aluminum alloy

在航空航天事业的快速发展中, 轻质高温结构材料及相应的加工制造技术日益成为影响航天飞机、高

推重比发动机、超高音速喷气式飞机等高新技术装备性能的重要因素^[1]。当使用温度不高于 600 $^{\circ}\text{C}$ 时, 钛

收稿日期: 2020-01-22

基金项目: 国家自然科学基金 (51975084a, 51405059); 航空科学基金 (20185425009); 中央高校基本科研业务费专项资金 (DUT19LAB16); 大学生创新创业项目

作者简介: 王浩淼 (1996—), 男, 硕士生, 主要研究方向为钛合金与钛铝合金的扩散连接、喷丸强化。

通讯作者: 付雪松 (1984—), 男, 博士, 副教授, 主要研究方向为喷丸强化与微动损伤防护。

合金以及 Ti-Al 系金属间化合物,相较于铁基和镍基高温合金,具有比强度高的突出优势^[2-3]。美国航空航天局将钛合金与 Ti-Al 基合金作为航空发动机主要的结构用材,估计到 2020 年可占发动机用材的一半^[4]。高温钛合金和 TiAl 基合金作为航空发动机的两种重要高温结构材料,已有实验表明^[5-8],TiAl 基合金在进行熔焊时容易在接头处出现裂纹,导致力学性能下降,而采用扩散焊接技术时温度可控性强,通过调整参数可以设计出较好的焊接工艺,所以钛合金/TiAl 异质合金扩散焊接技术是国内外学者关注的一个热点问题。

TiAl 基合金异种扩散连接工艺的一个突出问题是连接温度高、连接时间长,带来了工艺成本高、母材组织性能下降,限制了该技术的实际应用^[9-11]。扩散连接过程中,待连接面的表面状态(粗糙度、组织结构、化学成分)对扩散连接工艺参数和成品性能质量有重要影响。大量的扩散连接研究成果表明^[12-15],利用物理或化学方法改变待连接母材的表面状态可以显著提高表面原子扩散能力,降低扩散连接温度,缩短扩散时间,改善连接工件的质量。纳米组织中的晶界占比较大,以及大量的位错、亚晶界、空位等非平衡结构及能量贮存,这些特点能够为原子扩散拥有更多通道和驱动力,促进原子扩散和冶金反应^[16],因此,表面改性对推动高温 Ti 合金/TiAl 异质合金扩散连接在航空航天工业的应用具有重要意义和实用价值。

文中以 TiAl 基合金/高温 Ti 合金异种材质的扩散连接为研究对象,通过喷丸技术在待连接母材表面引入纳米晶层,以期提高材料表面原子的扩散能力,降低扩散连接条件(降低扩散温度、缩短扩散时间),提高高温 Ti 合金/TiAl 异种材质的扩散连接质量。

1 实验

扩散连接两侧所用的材料为 TC11 钛合金与 4822 钛铝合金,其金相组织如图 1 所示。利用电火花切割将钛合金切为 11 mm×11 mm×3 mm 大小的样品,将钛铝合金切为 10 mm×10 mm×3 mm 大小的样品,线切割后的试样一部分利用水砂纸由低到高打磨到 2 000#,随后将试样放进丙酮溶液,进行超声波去油污清洗。另一部分作表面处理,采用 JCK-FB1010FK 高能喷丸机进行循环动态再结晶,在 TC11 样品表面制备纳米晶层。表面纳米化处理的试样先浸泡在腐蚀试剂(2% HF+2% HNO₃+96% H₂O)(体积分数)中去除弹丸撞击过程中形成的氧化层,然后将其放入丙酮中并进行超声波清洗。

Ti 合金/TiAl 基合金的异质扩散连接试验在真空热压烧结炉进行。开展喷丸处理 TC11 钛合金与 TiAl 合金、未喷丸处理 TC11 钛合金与 TiAl 合金等 2 种状态扩散连接,对比分析表面纳米化影响。扩散连接实验的温度范围为 1023~1123 K,连接压力为 30 MPa,连接时间范围为 0.5~1.5 h。

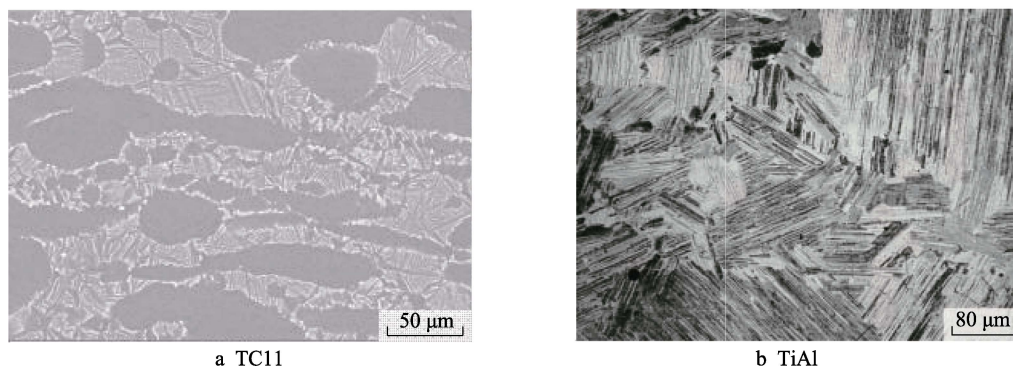


图 1 扩散连接母材显微组织

Fig.1 Microstructures of base metals for diffusion bonding

2 结果及讨论

2.1 表面纳米化 TC11/TiAl 扩散连接的连接时间与接头质量

图 2 为表面纳米化 TC11 钛合金与 TiAl 合金扩散连接试样扩散层的显微组织与元素分布曲线。扩散连接温度为 1073 K,扩散压力为 30 MPa、保温时间分别为 0.5, 1, 1.5 h。从图 2a—c 的背散射组织可以看出,反应层连接质量较好,未出现明显的空洞、缝隙。扩

散层随着连接时间的增加而增大,其厚度分别是 1.1, 1.7, 2.2 μm。在元素扩散曲线中,因两种连接材料的 Ti 和 Al 元素含量相差较大,在扩散连接中 Ti 和 Al 元素互相向另一侧母材扩散,随着时间增加, Ti 和 Al 原子扩散距离也逐渐增加,具体扩散距离分别为 1.8, 2.5, 3 μm。另外,经过表面纳米化处理后,接头中 TC11 钛合金的显微组织非常细小,尺寸约为 500 nm,而原始母材 Ti 合金的晶粒尺寸为 10 μm。从图 2 可见,钛合金的晶粒大小在连接时间增长过程中未发生显著变化。

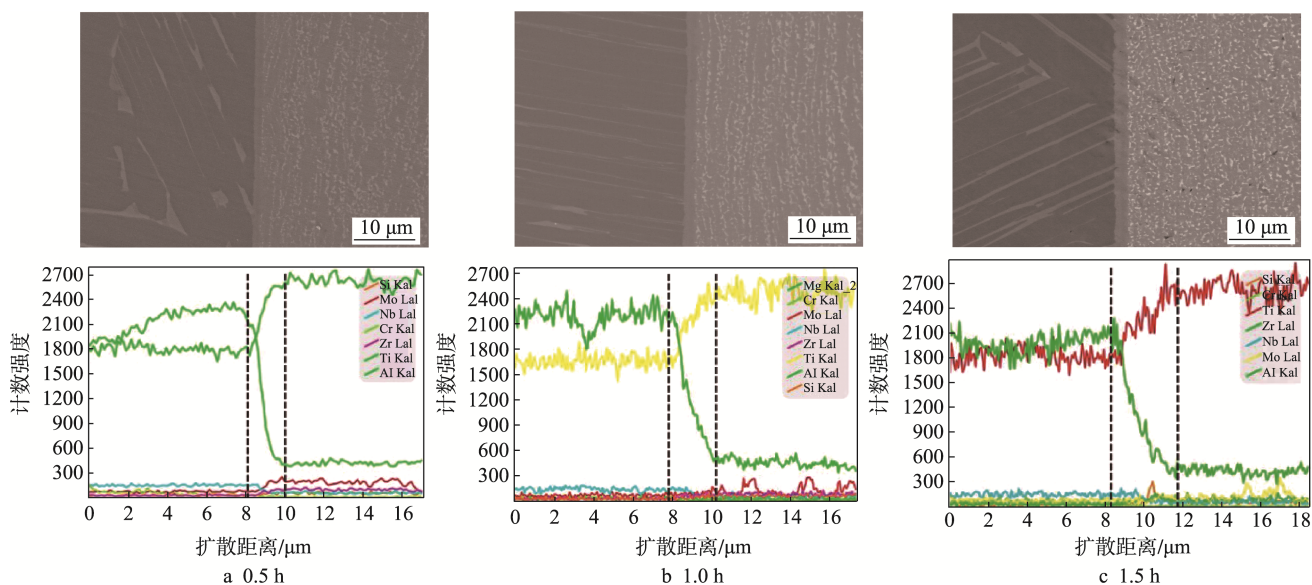


图2 在 1073 K、30 MPa 条件下, 连接时间对表面纳米化扩散层组织及元素分布影响
Fig.2 Effect of bonding time on microstructure and element distribution of diffusion layer with surface nanocrystallized at 1073 K and 30 MPa

图3为未表面纳米化 TC11 钛合金与 TiAl 合金连接试样扩散层组织与元素分布曲线。扩散连接接头均未看见孔洞与缝隙, 连接情况较好。接头厚度随着连

接时间的增加而增大, 具体数值分别是 0.7, 1.2, 1.7 μm 。在元素扩散曲线中, Ti 和 Al 元素扩散距离分别为 1.6, 2.3, 2.8 μm 。

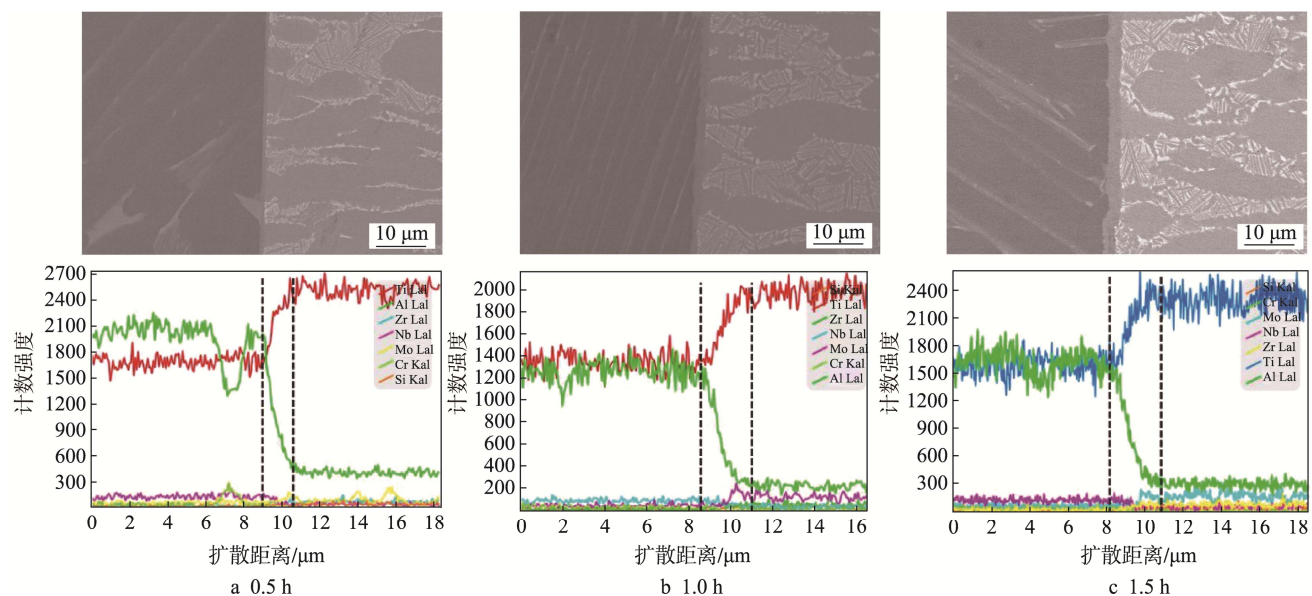


图3 在 1073 K, 30 MPa 条件下, 未表面纳米化试样扩散层组织及元素分布曲线随连接时间变化
Fig.3 Evolution of microstructure and element distribution curve of specimen diffusion layer with surface not nanocrystallized along with the bonding time at 1073 K and 30 MPa

对比表面纳米化 TC11 钛合金和未表面纳米化 TC11 钛合金试样扩散层厚度, 如图4所示, TC11 钛合金经过高能喷丸处理产生表面纳米化后, 在其他条件相同的情况下, 其扩散连接的反应层厚度更大, 且原子扩散距离也更大。这是由于细小的纳米晶组织相的晶界体积占比比正常组织更高, 这些晶界和高能的缺陷成为原子扩散的通道, 促进原子扩散, 并且表面纳米层中具有高自由能的非平衡相可以降低原子扩

散系数, 同样促进了原子扩散, 因此, 表面纳米化处理有利于原子的扩散, 促使扩散连接层厚度增大。

2.2 表面纳米化 TC11/TiAl 扩散连接的连接温度与接头质量

图5是在不同连接温度下 TC11 钛合金和 TiAl 合金接头显微组织, 连接温度分别为 1023, 1073, 1123 K。其中图 5a—c 为未进行喷丸处理的钛合金的扩散连

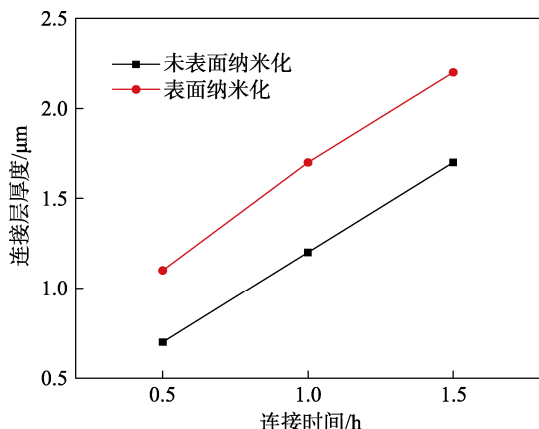


图 4 在 1073 K、30 MPa 条件下, 连接时间对 TC11/TiAl 扩散层厚度影响

Fig.4 Effect of bonding time on diffusion layer thickness of TiAl alloy/TC11 alloy at 1073 K and 30 MPa

接, 图 5d—f 为喷丸处理的钛合金的扩散连接。未

喷丸处理试样在 1023 K 时, 由于连接温度较低, 原子扩散能力弱, 扩散中间层存在缝隙, 且局部连接层厚度较小。在 1073 K 时, 扩散中间层缝隙缺陷基本消失, 中间层厚度也在增加。随着温度继续增加, 原子扩散能力增加, 扩散层厚度也随之增加。对于喷丸处理的表面纳米化试样, 在 1023 K 时扩散中间层的缝隙缺陷比较大, 这是由于表面喷丸后纳米化钛合金表面起伏较大, 扩散连接时母材表面接触面积小, 原子扩散效率低。随着连接温度的增加, 母材更容易发生塑性变形, 扩散界面的接触面积增大, 原子扩散效率提高, 扩散反应层厚度迅速增加。

对比两种状态的试样, 经过喷丸处理试样的扩散中间层厚度更大。这是因为喷丸处理后产生的表面细晶组织有助于降低元素的扩散激活能, 提升原子扩散速度和扩散反应。表面纳米化后钛合金组织细小, 当连接温度升高到 1123 K 时晶粒明显粗化。

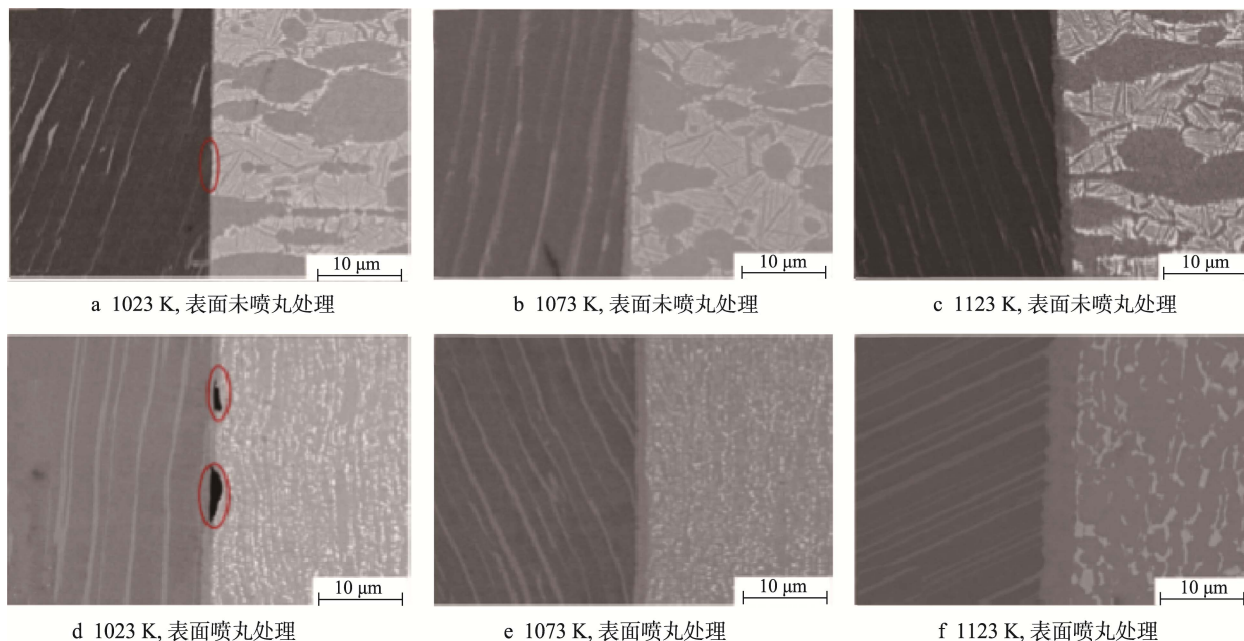


图 5 连接温度对 Ti 合金/TiAl 合金接头组织影响

Fig.5 Effect of bonding temperature on microstructure of joints of Ti alloy/TiAl alloy

无论是否经过喷丸处理, 扩散连接中间接头都会随温度升高而变宽, 但是经过喷丸处理后, 扩散层增长更快。

2.3 表面纳米化 TC11/TiAl 扩散连接的后续热处理与接头质量

在 1023 K、30 MPa、1 h 扩散连接条件下, 无论是否经过喷丸处理, TC11 钛合金与 TiAl 合金均未实现完全焊合, 连接界面存在缝隙和孔洞, 如图 5 所示。为了改善中间界面连接质量, 扩散连接后进行无压热处理, 连接试样在 1123 K 温度下进行无压退火热处理, 热处理时间分别为 1, 2, 3 h。

图 6 为 1023 K、30 MPa、10 min 表面纳米化 Ti 合金/TiAl 连接样经无压热处理后组织。在未开始热

处理前, 反应层连接质量较差, 出现较多未连接缝隙。从图 6b 可以看出, 在热处理 1 h 之后, 反应层厚度增加, 界面上的许多长条的缝隙开始连接到一起, 剩下圆形或椭圆的空洞。在热处理 2 h 之后, 反应层继续生长, 缺陷减少, 只剩下极少数的空洞存在。在热处理 3 h 之后, 反应层厚度继续变大, 其间的空洞和缝隙等缺陷消失不见。

图 7 为不同热处理时间下未喷丸处理试样扩散层形貌组织。热处理 1 h 后, 反应层厚度增大, 其缝隙逐渐连接, 留下未完全闭合的空洞。热处理 2 h 后, 部分空洞闭合, 空洞数目减少, 接头连接率增加。热处理 3 h 后, 反应层厚度继续增大, 此时未见空洞存在, 接头连接完好。

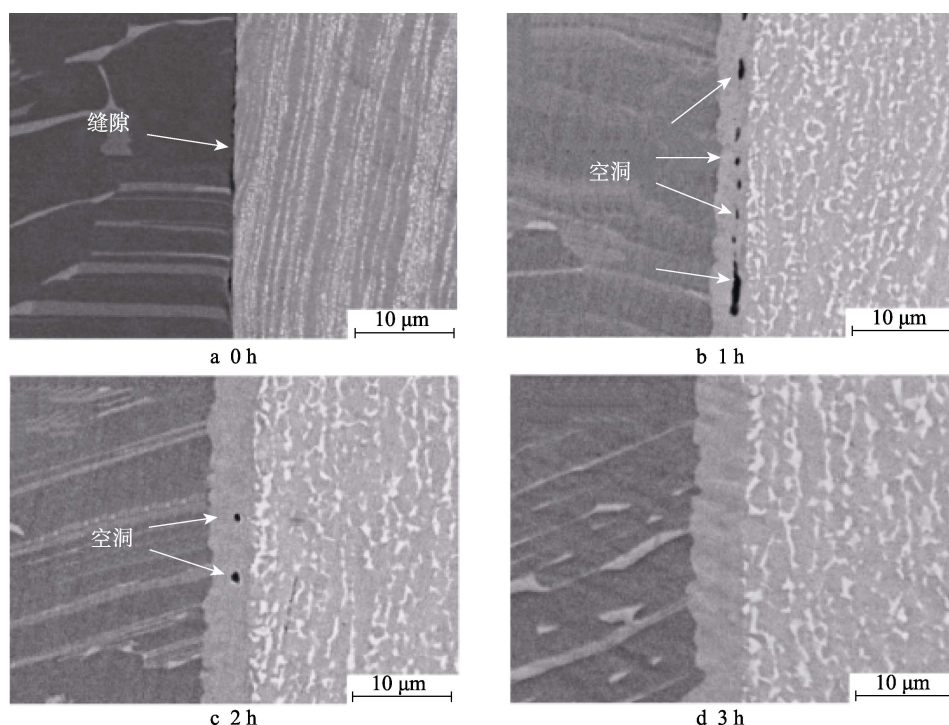


图 6 表面纳米化 Ti 合金/TiAl 接头经无压热处理后显微组织

Fig.6 Microstructure of Ti alloy /TiAl joints with surface nanocrystallized after pressureless heat treatment

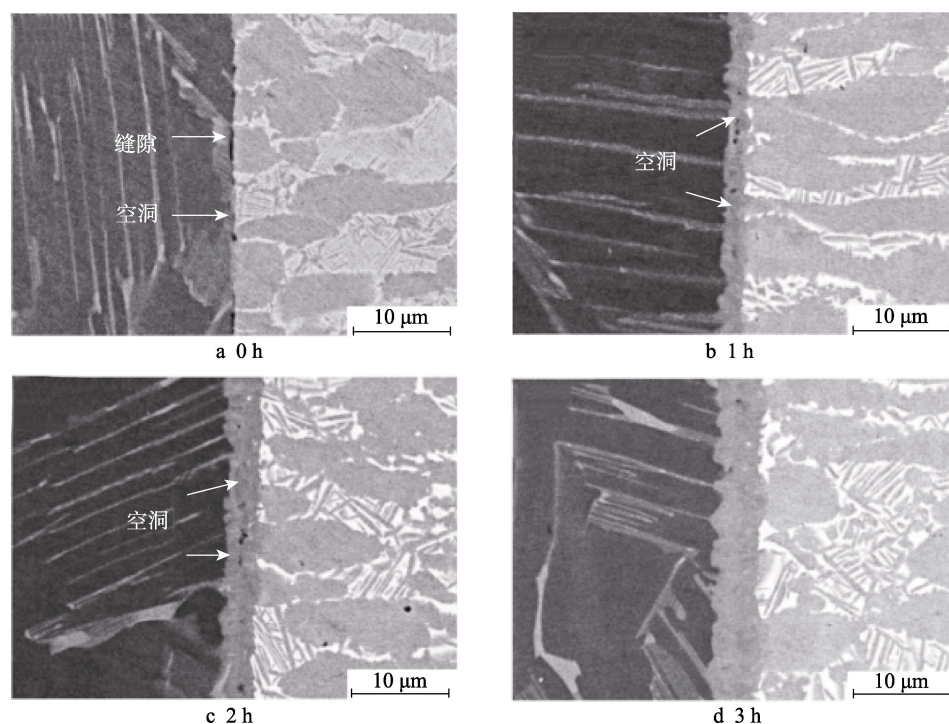


图 7 未喷丸处理 Ti 合金/TiAl 接头经无压热处理后显微组织

Fig.7 Microstructure of Ti alloy/TiAl joints with surface not nanocrystallized after pressureless heat treatment

从图 6 和图 7 可看出, 喷丸处理试样与未喷丸处理试样的连接率随热处理的进行而增加, 而两者的连接率有所差别。经统计学计算, 接头焊合率能直观体现出接头的结合情况, 其计算式如式 (1) 所示^[17]:

$$\delta = (L_0 - L) / L_0 \quad (1)$$

式中: δ 为焊合率; L_0 为焊缝总长度; L 为孔隙

缺陷长度。

从图 8 可以看出, 表面纳米化试样的焊合率在未热处理时只有 31%, 未表面纳米化的试样在热处理前焊合率为 64%。而随着热处理的进行表面纳米化试样的焊合率增长较快, 热处理 3 h 后两者都已完全连接, 焊合率达到了 100%。

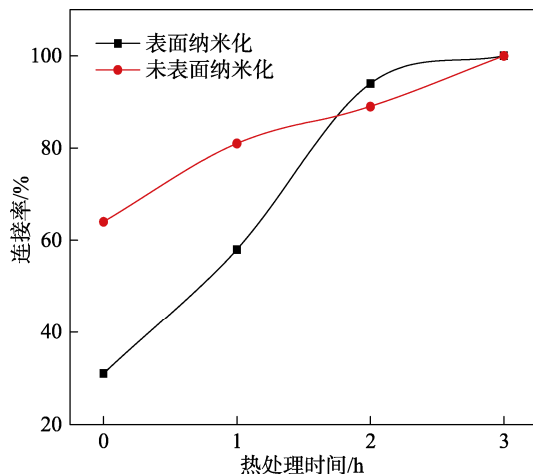


图 8 无压热处理对 TC11/TiAl 连接率影响

Fig.8 Effect of pressureless heat treatment on bonding rates of TC11/TiAl joints

在无压热处理过程中，连接区原子紧密接触，焊缝空洞闭合主要通过连接区原子相互扩散，反应形成新中间相，晶界迁移作用下微孔尺寸逐渐缩减，进而提高接头结合面积。从连接层焊合率变化情况看，经过表面纳米化连接试样焊合率提升较快。这说明在无压热处理进程中，纳米化细晶组织接头扩散反应更剧烈，反应生成中间相速度更快。

2.4 表面纳米化 TC11/TiAl 扩散连接的连接强度与接头厚度

剪切强度测试表明，TC11/TiAl 扩散连接的结合强度与中间层厚度密切相关，如图 9 所示。无论是否经过表面纳米化，剪切强度随扩散层厚度先增加再减小，即存在最优中间层厚度。当中间层厚度为 1.7~2.0 μm 时，剪切强度最大，表面纳米化对剪切强度最大值基本没有影响。这是因为厚度小时扩散焊合率较低，存在较多焊缝和空洞，剪切强度低。而厚度大时中间层 Ti_3Al 脆性相占比较大^[13]，容易出现脆性断裂，剪切强度也会降低。

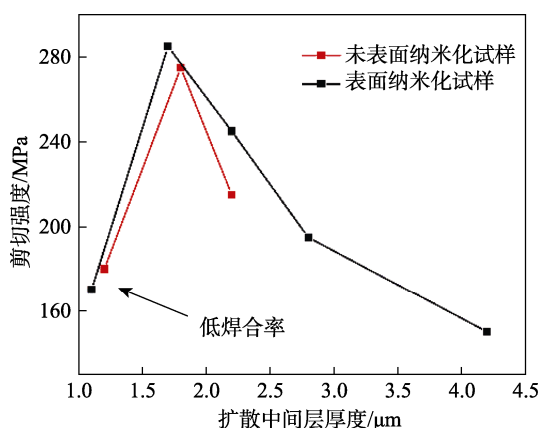


图 9 扩散连接层厚度对剪切强度影响

Fig.9 Effect of diffusion bonding layer thickness on shear strength

3 结论

1) 表面纳米化可以促进扩散连接接头原子扩散，中间反应层厚度增大，降低扩散连接温度。表面纳米化处理可以使扩散连接在连接时间更短、连接温度更低的条件下，获得高质量连接接头。

2) 表面纳米化处理在扩散连接后续热处理中能促进空洞闭合，提高扩散连接的焊合率。

3) TC11/TiAl 扩散连接的结合强度与中间层厚度密切相关，当中间层厚度在 1.7~2.0 μm 时，剪切强度最大。

参考文献：

- [1] 唐见茂. 航空航天材料发展现状及前景[J]. 航天器环境工程, 2013, 30(2): 115—121.
TANG Jian-mao. A Review of Aerospace Materials[J]. Spacecraft Environment Engineering, 2013, 30(2): 115—121.
- [2] 王清江, 刘建荣, 杨锐. 高温钛合金的现状与前景[J]. 航空材料学报, 2014, 34(4): 1—26.
WANG Qing-jiang, LIU Jian-rong, YANG Rui. High Temperature Titanium Alloys: Status and Perspective[J]. Journal of Aeronautical Materials, 2014, 34(4): 1—26.
- [3] 许天才, 彭晓东, 姜军伟, 等. 钛合金连接异种材料新技术的研究应用[J]. 稀有金属, 2014, 38(4): 711—719.
XU Tian-cai, PENG Xiao-dong, JIANG Jun-wei, et al. Progress in Welding of Titanium Alloy and Dissimilar Materials[J]. Chinese Journal of Rare Metals, 2014, 38(4): 711—719.
- [4] DUDEK H J, BUHL H. Advanced Aerospace Materials[M]. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1993: 10.
- [5] LIU J, DAHM E M, VENTZKE V, et al. The Effect of Heat Treatment on Crack Control and Grain Refinement in Laser Beam Welded Beta-solidifying TiAl-baesd[J]. Intermetallics, 2013, 40: 65—70.
- [6] 张秉刚, 冯吉才, 吴林, 等. TiAl/TiAl 和 TiAl/TC4 真空电子束焊接接头组织结构及焊接性[J]. 焊接, 2004(5): 14—16.
ZHANG Bing-gang, FENG Ji-cai, WU Lin, et al. Study on Weldability and Microstructure of Butt Joints of TiAl/TiAl, TiAl/TC4 Welded by EBW[J]. Welding, 2004(5): 14—16.
- [7] LI Li-qun, CHEN Yan-bin, ZHANG Chun-li, et al. Crystallization Behavior of Ti3Al-Nb Alloy Laser Beam Welding Joints[J]. Transactions of Nonferrous Metals Society of China, 2005, 15(2): 16—20.
- [8] ARENAS M F, ACOFF V L. The Effect of Postweld Heat Treatment on Gas Tungsten arc Welded Gamma Titanium Aluminide[J]. Scripta Materialia, 2002, 46(3): 241—246.
- [9] HOLMQUIST M, RECINA V, OCKBORN J, et al. Hot

- Isostatic Pressing Diffusion Bonding of Titanium Alloy Ti-6Al-4V to Gamma Titanium Aluminide IHI Alloy 01A[J]. Scripta Materialia, 1998, 39(8): 1101—1106.
- [10] SETO Sachio, MATSUMOTO Koji, MASUYAMA Tomomasa, et al. Strength Characteristics on the Diffusion Bonded Joint of Intermetallic Compound TiAl and Structural Steel[J]. Quarterly Journal of the Japan Welding Society, 1998, 39(1): 59—65.
- [11] WICKMAN H A, CHIN E S C. Diffusion Bonding of Titanium-titanium Aluminide-alumina Sandwich[C]// Proceedings of the TMS' 95 Annual Meeting on Gamma Titanium Aluminides, Nevada, USA, 1995: 499—505.
- [12] 黄正, 罗根香, 吴国清, 等. 激光表面改性 Ni 基合金/ γ -TiAl 合金的扩散连接[J]. 焊接, 2005(1): 8—11.
HUANG Zheng, LUO Gen-xiang, WU Guo-qing, et al. Diffusion Bonding of Laser-surface Modified Ni Based Alloy/ γ -TiAl Based Alloy[J]. Welding & Joining, 2005(1): 8—11.
- [13] 韩月娇. 表面自纳米化不锈钢与高强铝合金扩散连接研究[D]. 成都: 西南交通大学, 2016.
HAN Yue-jiao. Investigation of Diffusion Bonding of Surface Nano-crystallined Stainless Steel and High Strength Aluminum Alloy[D]. Chengdu: Southwest Jiaotong University, 2016.
- [14] 罗军, 盛光敏, 袁新建. 表面自纳米化 304L 不锈钢/T2 铜扩散连接[J]. 中南大学学报(自然科学版), 2013, 44(1): 55—59.
LUO Jun, SHENG Guang-min, YUAN Xin-jian. Diffusion Bonding of SSNC 304L/Cu[J]. Journal of Central South University, 2013, 44(1): 55—59.
- [15] 韩靖. 表面自纳米化不锈钢与钛合金扩散连接研究[D]. 重庆: 重庆大学, 2009.
HAN Jing. Investigation of Diffusion Bonding of Surface Self-nanocrystallined Stainless Steel and Titanium Alloy[D]. Chongqing: Chongqing University, 2009.
- [16] 林万明. 铜及铜合金表面纳米化及其改性研究[D]. 太原: 太原理工大学, 2011.
LIN Wan-ming. Research on Surface Nanocrystallization and Modification in Pure Copper and Its Alloy[D]. Taiyuan: Taiyuan University of Technology, 2011.
- [17] 王晓晨. 表面纳米化高温钛合金与钛铝合金扩散连接研究[D]. 大连: 大连理工大学, 2018.
WANG Xiao-chen. Study on the Diffusion Bonding of High Temperature Ti Alloy and TiAl Alloy Treated by Surface Nanocrystallization[D]. Dalian: Dalian University of Technology, 2018.