

超声固结钛/铝箔材界面剥离强度与结合机理分析

姜波^{1,2}, 任学平¹, 侯红亮^{2,3,4}, 韩玉杰^{2,3}, 王耀奇^{2,3,4}, 张艳苓^{2,3,4}

(1. 北京科技大学, 北京 100083)

(2. 中国航空制造技术研究院, 北京 100024)

(3. 塑性成形技术航空科技重点实验室, 北京 100024)

(4. 数字化塑性成形技术及装备北京市重点实验室, 北京 100024)

摘要: 以 1100 铝箔和 TA1 钛箔为基体材料进行异种金属超声固结研究。制备了 Ti/Al 箔材金属层状复合材料试样, 应用剥离试验研究了振幅、静压力对 Ti/Al 箔材界面结合强度的影响规律, 利用扫描电镜研究了剥离界面的微观形貌, 采用 EDS 对剥离界面进行能谱分析, 通过透射电镜对 Ti/Al 箔材界面微观组织进行观察。结果表明, 超声固结可以实现 Ti/Al 箔材良好的结合, 界面结合强度随着静压力的增大先增大后减小, 随着振幅的增大单调递增; 在振幅 35 μm , 静压力 1.5 kN 条件下, 获得最佳的超声固结界面, 其剥离强度为 11.325 N/mm; Ti 箔材的剥离界面中 Al 元素均匀分布, 并存在明显的韧窝组织; Ti/Al 界面存在元素过渡区, 界面处晶粒细化明显; 铝箔表面氧化膜破碎, 且钛元素以弥散的形式嵌入到铝晶粒内部。

关键词: 超声波固结; 剥离强度; 结合机理

中图分类号: TG306

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2019)10-3372-07

超声波固结技术是一种制备先进材料与结构的低成本、绿色制造的新方法。它是以逐层叠加的方式借助超声能量的低振幅、高频率、机械搅拌及摩擦等将金属材料直接连接成形。超声波固结同时具有超声焊接^[1-3]和叠层状增材制造工艺的特点^[4], 该项技术可以实现金属材料面与面之间的固结。目前, 超声波固结制造技术理论体系逐渐完善, 工艺相对成熟, 作为一种高性能复合材料制备的新方法, 在制备金属层状复合材料、功能梯度材料、纤维增强金属基复合材料、智能金属复合材料等方面潜力巨大^[5-10]。应用超声波固结技术制备的材料将在先进材料的高效、高性能、低成本中发挥巨大的作用, 在航空航天、汽车工业、电子工业以及新材料制备等方面具有广泛的应用前景。

金属层状材料的叠层堆积是金属超声波固结技术的重要应用之一, 针对同种箔材以及异种箔材的超声固结各国学者展开了广泛而深入的研究。通过理论计算以及数值模拟, 建立了多层金属箔材物理模型以及超声固结能量传递模型^[11]。采用不锈钢箔材、黄铜箔材、铝合金箔材、镍合金箔材进行连接, 在合适的超声波固结工艺参数下, 铝合金之间、铝合金与不锈钢

之间都能形成冶金结合, 界面结合质量较好^[12,13]。此外, 某些学者利用超声固结与热压复合的方法制备了 Ti/TiAl₃ 层状复合材料, 并对材料性能进行了分析。研究显示, 提高振幅、静压力、焊接温度和降低焊接速度有利于提高焊合密度。

本研究对 1100 铝箔和 TA1 钛箔超声固结界面的结合强度以及微观组织进行分析, 并对界面的元素分布进行检测, 揭示了界面的结合机理。

1 实验

实验材料为 1100 铝箔以及 TA1 钛箔, 钛箔厚度为 100、150 和 200 μm , 铝箔厚度为 200 μm , 其状态为退火态, 其微观组织如图 1 所示。

通过超声固结设备进行 Ti/Al 层状复合材料制备。超声固结技术是利用超声波的高频振动, 使层与层之间的接触界面在静压力和弹性振动能量的共同作用下, 通过摩擦、温升等作用促进界面之间金属原子扩散, 实现层与层之间的固态冶金结合, 实验原理如图 2 所示。超声加工头宽度为 25 mm, 固结速度为 30 mm/min, 试验温度 200 $^{\circ}\text{C}$, 静压力为 1.0、1.5、2.0

收稿日期: 2018-10-16

基金项目: 中国航空工业集团公司航空科学基金 (2015ZE25006); 中航工业联合基金 (6141B05090303)

作者简介: 姜波, 男, 1977 年生, 博士, 高级工程师, 北京科技大学材料学院, 北京 100083, 电话: 010-85701374, E-mail: hanyujiehao@126.com

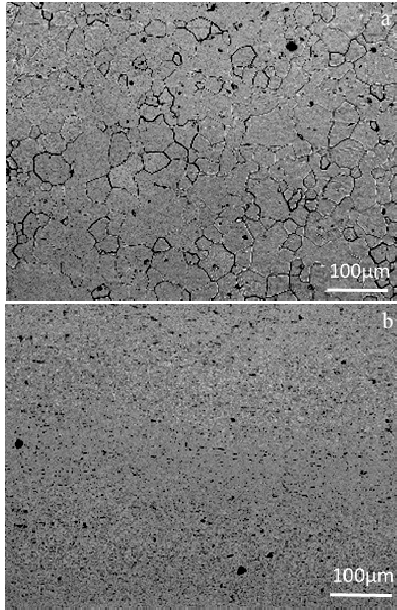


图 1 原始组织

Fig.1 Microstructures of raw material: (a) TA1 titanium and (b) 1100 aluminium

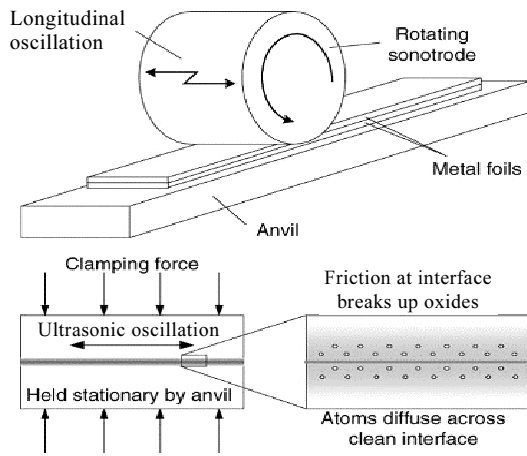


图 2 超声固结工艺原理图

Fig.2 Schematic of ultrasonic consolidation process^[2]

和 3.5 kN，超声振幅为 20、25、30 和 35 μm 。箔材经表面清洗。在基板上先固结一层铝箔，再固结一层钛箔，重复上面的过程，获得超声固结试样，所得金属层状材料微观组织如图 3 所示。

利用 Z100 电子万能材料试验机进行剥离试验。试验按照 GJB446-88 《胶黏剂 90°剥离强度测定方法》进行，剥离长度为 30 mm，剥离速度为 100 mm/min，通过式 (1) 计算界面的剥离强度：

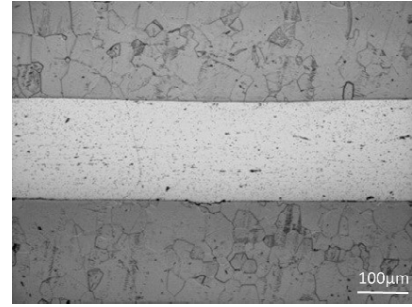


图 3 超声固结试样微观组织

Fig.3 Microstructure of ultrasonic consolidated specimen

$$\text{Peel strength} = \frac{\text{Peel force (N)}}{\text{Peel width (mm)}} \quad (1)$$

研究超声振幅、静压力对 Ti/Al 界面结合力的影响规律；通过 SEM 和 EDS 对剥离界面微观组织以及元素分布进行分析；利用 TEM 对界面组织形貌进行观察。

2 结果与讨论

2.1 超声固结参数对剥离强度的影响

图 4 为超声振幅 35 μm 时，不同压力条件下的剥离试验结果。图 5 为静压力 2.0 kN 时，不同超声振幅条件下的剥离试验结果。可以发现，随着剥离试验的进行，剥离力迅速上升，达到一定值后相对平稳，利用式 (1) 计算得出相应条件下的剥离强度大小。

图 6 为超声振幅为 35 μm 条件下，不同厚度钛箔界面的剥离强度与静压力关系曲线。可以看出，在材料厚度 TA1/0.15 mm+1100/0.2 mm、TA1/0.2 mm+1100/0.2 mm 条件下，随着静压力的增大，剥离强度先

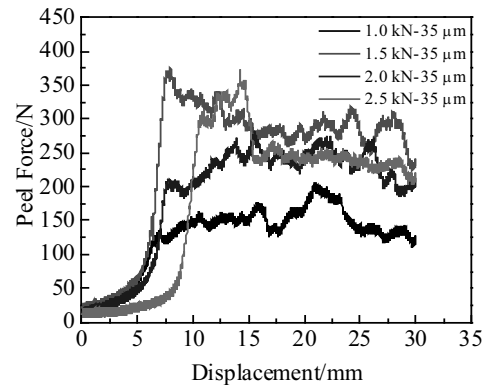


图 4 不同静压力下剥离试验结果

Fig.4 Results of peeling tests under different static forces

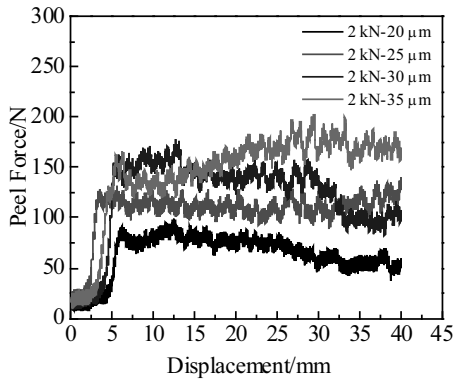


图 5 不同振幅下剥离试验结果

Fig.5 Results of peeling tests under different amplitudes

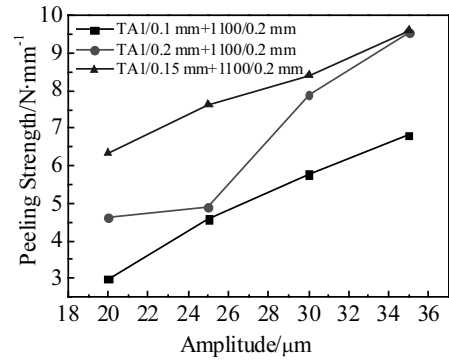


图 7 剥离强度与振幅的关系

Fig.7 Relationship between peeling strength and amplitude

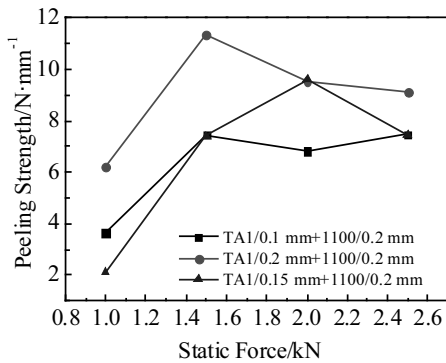


图 6 剥离强度与压力的关系曲线

Fig.6 Relationships between static force and peeling strength

增大后减小，在 1.5 和 2.0 kN 时剥离强度较大。这是因为，静压力使加工头处的超声振动有效地作用在金属箔材界面处。当静压力过低时，超声波振动能量不能有效地传递到箔材界面处，超声波能量损耗在加工头与箔材之间的表面滑动，使得界面处的摩擦作用较弱，不可能形成连接。但当静压力过大时，使得箔材界面之间的摩擦阻力过大，使得箔材间的相对摩擦运动减弱，并会降低有效振幅，使得剥离强度降低。在材料厚度 TA1/0.1 mm+1100/0.2 mm 条件下，随着静压力的增大，剥离强度先增加，而后变化不大。这是由于钛箔材厚度小，超声振动在厚度方向传递受压力影响较小。综上所述，在振幅 35 μm，静压力 1.5 kN 条件下，获得最佳的超声固结界面，其剥离强度为 11.325 N/mm。

图 7 为静压力 2.0 kN 条件下，不同厚度钛箔界面的剥离强度与振幅关系曲线。发现剥离强度随着超声振幅的增大而增大。这是因为，在静压力一定的条件下，随着超声振幅的增大，箔材界面之间的振动幅值增大，摩擦作用加剧，有利于箔材界面之间的结合，

提高界面结合质量。

2.2 超声固结界面的微观形貌分析

利用扫描电镜研究剥离界面的微观组织形貌。不同剥离强度的超声固结界面的微观形貌如图 8 所示。从图中可以看出，在低倍条件下 Ti/Al 箔材界面的剥离界面由白色区域和灰色区域组成。对比剥离强度不同的试样界面形貌可以发现，剥离强度大的剥离界面处白色区域较多且分布更加均匀。在高倍条件下可以发现，该区域由拉长韧窝和等轴韧窝组成，试样整体表现为韧性断裂特征，且随着剥离强度的增大，韧窝组织分布更加均匀。

选取典型的钛箔材剥离界面，通过 EDS 能谱对韧窝位置进行化学成分分析。剥离断口的微观形貌如图 9a 所示。EDS 能谱分析结果如图 9b 所示，该位置中 Al 的原子分数为 94.9%，Ti 的原子分数为 5.1%，说明 TA1 纯钛箔与 1100 纯铝箔界面形成了较强冶金结合，与其相连的一部分铝箔材被剥离开，附着于钛箔表面。在剥离过程中从 1100 纯铝箔基体一侧发生了断裂，在 TA1 纯钛箔基体一侧残留了大量的铝，进一步证明了其界面结合质量良好。

Ti/Al 层状复合材料剥离界面元素面分布如图 10 所示。由图可知，该界面存在不同形状和大小的凸起的部分。通过前期的研究证明，该区域为连接较好区域。在高倍条件下可以发现明显的韧窝组织。通过 EDS 面扫描可知，该区域存在钛元素和铝元素，进一步证明了在超声固结过程中 TA1 纯钛箔、1100 纯铝箔形成了较好的界面连接。在剥离试验过程中，铝箔材表面的金属随着钛箔材一同被剥离。但同时可以发现，并不是所有的区域都形成了很好的结合。

2.3 超声固结界面结合机理分析

加工头的表面具有一定的粗糙度，在超声固结加

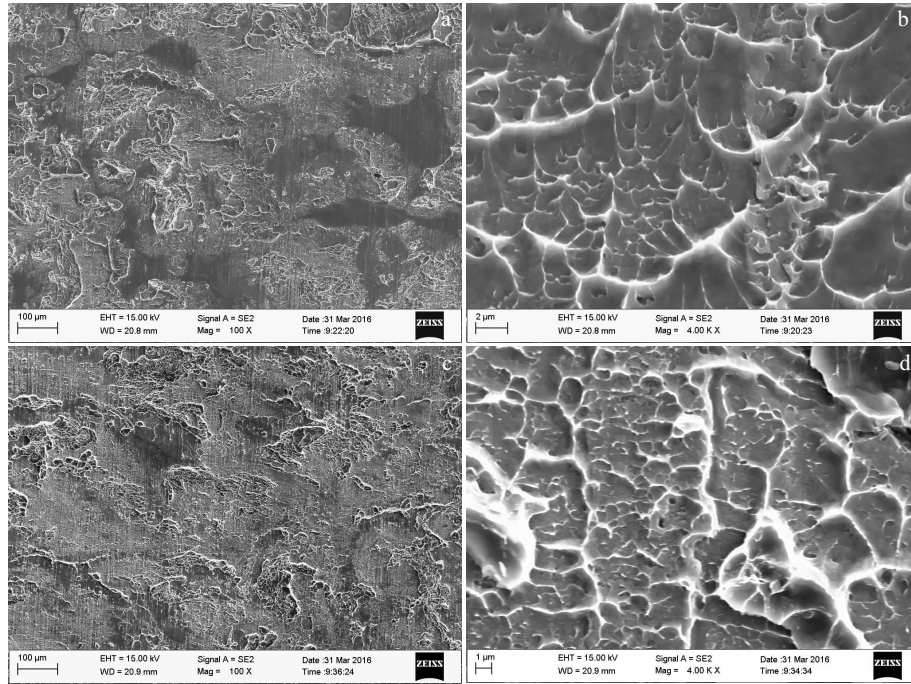


图 8 不同剥离强度的剥离界面形貌

Fig.8 Morphologies of peeling interface with lower peeling strength (a, b) and with higher peeling strength (c, d)

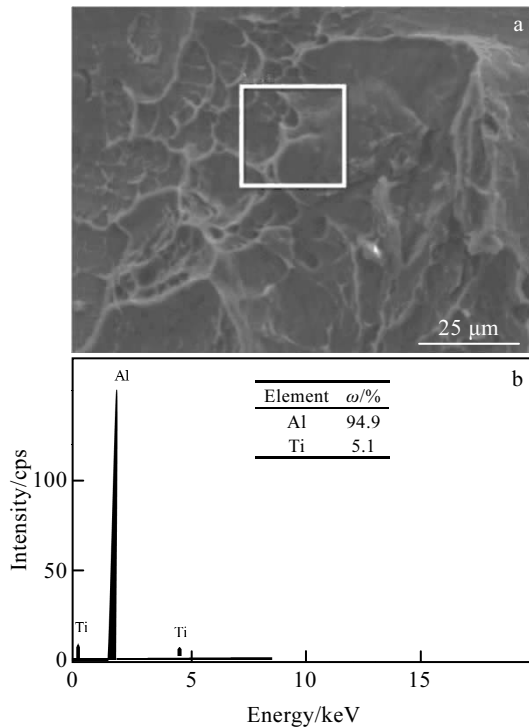


图 9 剥离界面及其 EDS 能谱分析结果

Fig.9 Peeling interface (a) and EDS result of marked area in Fig.9a (b)

工过程中，将加工头表面纹路映射到钛箔铝箔表面，这种粗糙度对两种材料的连接起到了一定的加强作用。为了研究超声固结的 Ti/Al 层状复合材料的界面元素的分布情况，沿图 11a 所示的位置对元素分布情况进行分析，多层的线扫描和单层的钛、铝元素扫描结果如图 11b, 11c 所示。在钛/铝界面处存在一定的元素扩散，厚度约为 5 μm，验证了在超声固结成形过程中材料界面发生了固态冶金结合。

利用透射电镜对超声固结 Ti/Al 界面形貌进行分析，如图 12 所示。在界面处晶粒细化明显，存在一个纳米晶组成的纳米晶簇区域。这是因为在超声固结过程中，材料表面发生强烈的塑性变形，导致晶粒细化，但是由于应力集中，引起了纳米晶区域内的衬度不均，因此晶界不够清晰。

在超声固结过程中，在纵向压力以及横向超声振动的共同作用下，箔材表面紧密接触，Ti/Al 两种箔材界面发生剧烈摩擦。由于 Ti 箔硬度较大且具有一定的粗糙度，在发生挤压摩擦时，导致 Al 箔表面的氧化膜破裂。图 13 所示为界面处断续分布的氧化物，氧化物的破碎促进了后续界面的冶金结合。此外，在 Ti/Al 界面处，Al 晶粒内部发现了残留的 Ti 元素，由于本实验采用的是 1100 铝箔，不含有钛元素，因此可以判断，在箔材表面接触过程中，由于两种金属表面具有

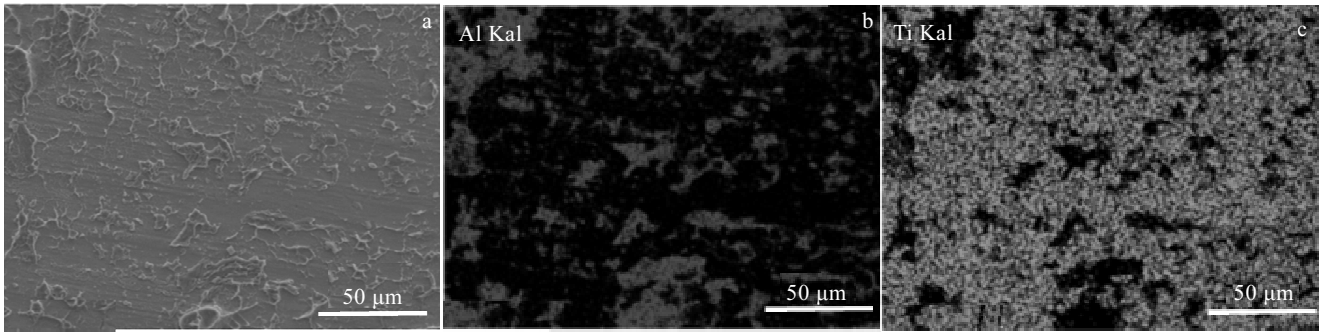


图 10 Ti/Al 层状复合材料剥离界面及其 EDS 元素面分布

Fig.10 Peeling interface of Ti/Al laminated composites (a) and EDS element mapping of Al (b) and Ti (c)

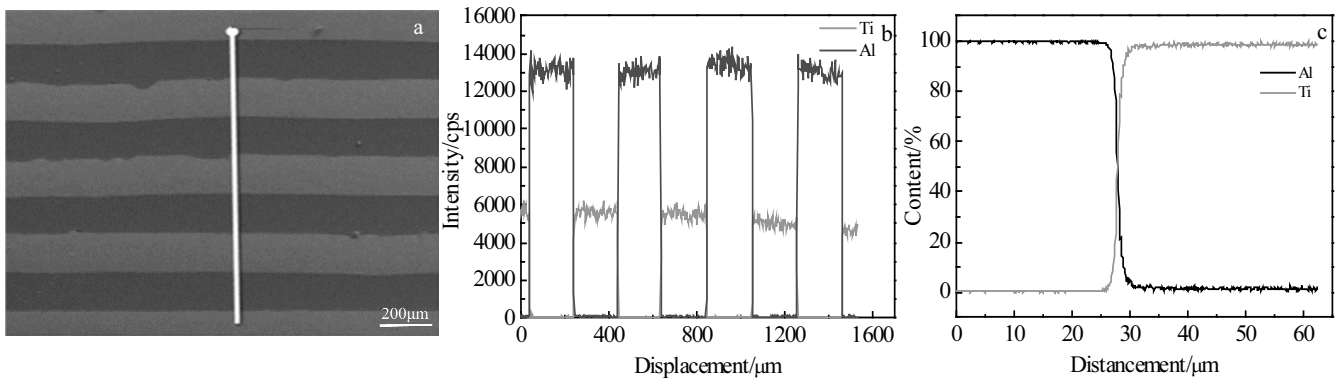


图 11 Ti/Al 界面微观形貌及 EDS 元素线扫描

Fig.11 Morphology of Ti/Al interface (a) and EDS line scanning of multilayer interface (b), and single-layer interface (c)

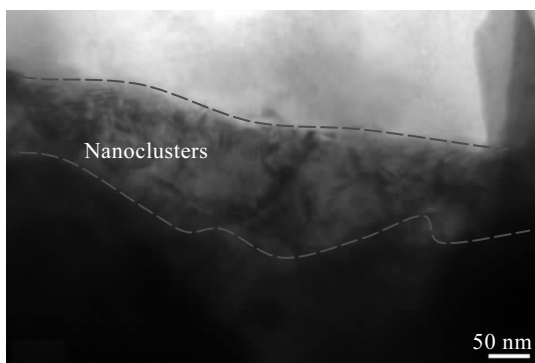


图 12 Ti/Al 界面 TEM 微观形貌

Fig.12 TEM morphology of the Ti/Al interface

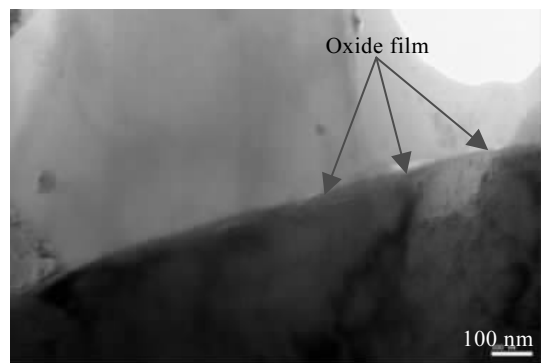


图 13 Ti/Al 界面处氧化膜 TEM 微观形貌

Fig.13 TEM morphology of oxidation layer at the Ti/Al Interface

一定的粗糙度并且硬度差异较大，表面凸起部位的钛金属嵌入到铝箔内部，在超声振动的作用下，嵌入到铝基体的钛与钛基体断裂，并在 Al 层中弥散分布，形

成了富 Ti 的第二相，如图 14 所示。

材料超声固结界面的连接机理与超声焊接的连接

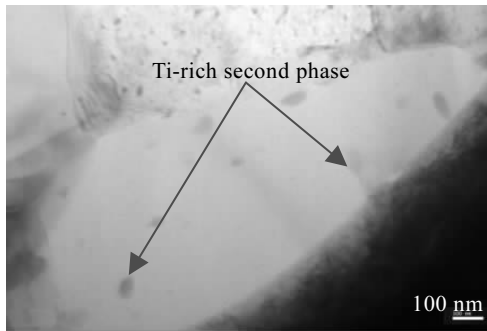


图 14 Al 晶粒内部 Ti 元素 TEM 形貌

Fig. 14 TEM morphology of Ti-rich second phase inside the Al grains

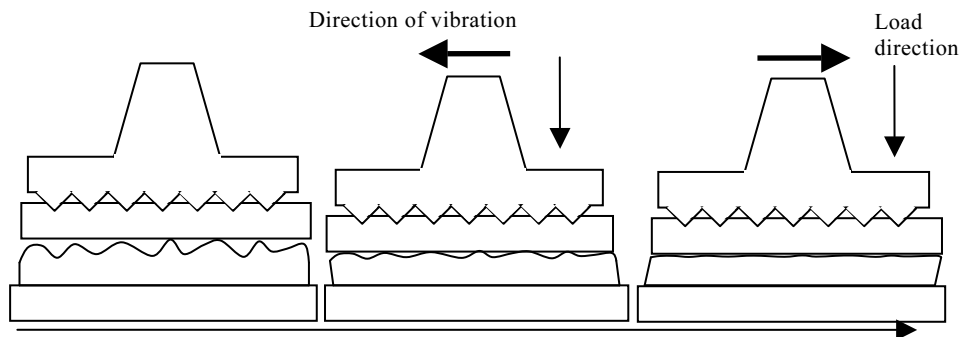


图 15 Ti/Al 超声固结连接的过程

Fig. 15 Ultrasonic consolidation joining process of Ti/Al

3 结 论

1) 超声固结 Ti/Al 箔材金属层状复合材料试样的界面平整均匀, 界面结合质量较好。界面结合强度随着静压力的增大先增大后减小, 随着振幅的增大单调递增; 在振幅 $35\ \mu\text{m}$, 静压力 $1.5\ \text{kN}$ 条件下, 获得最佳的超声固结界面, 其剥离强度为 $11.325\ \text{N/mm}$ 。

2) 钛箔材的剥离界面中存在白色和灰色两个区域。钛箔材剥离过程中与其相连的一部分铝箔材被剥离开, 附着于钛箔表面形成白色区域, 白色区域由拉长韧窝和等轴韧窝组织组成, 试样整体表现为韧性断裂, 灰色区域为钛基体。

3) Ti/Al 箔材界面处产生了冶金结合, 界面处晶粒细化明显, 存在一个纳米晶组成的纳米晶簇区域。在超声振动的作用下, 铝箔表面氧化膜破碎, 且钛元素以弥散的形式嵌入到铝晶粒内部。

参考文献 References

[1] Zhu Z, Wynne B P, Ghassemieh E *et al.* *Rare Metal Materials*

and Engineering[J], 2009, 38(S3): 147

机理是一致的。虽然各国学者对超声焊接的连接机理作了一定的研究, 但并没有得出统一的结论。结合上述的组织观察, Ti/Al 超声固结连接的过程可以用图 15 来表示。在垂直载荷与超声振动的共同作用下, 超声固结的金属表层在摩擦力的作用下将产生剧烈的塑性变形及大量的热量, 这一方面去除了 Ti 和 Al 表面的氧化膜、杂质等, 形成了洁净的表面, 另一方面, 使 Ti 和 Al 洁净表面相互无限靠近, 形成金属键, 从而实现 Ti 与 Al 的结合。此外对于材料表面上较大的凹坑, 流动的金属虽然能够将其弥合, 但由于凹坑底部的金属并不能发生塑性变形, 因此他们之间只能形成机械的咬合连接。

[2] Hou Hongliang(侯红亮), Han Yujie(韩玉杰), Zhang Yanling(张艳苓) *et al.* *Materials Review(材料导报)*[J], 2016, 30(28): 127

[3] Xie Junfeng(谢俊峰), Zhu Youli(朱有利), Huang Yuanlin(黄元林) *et al.* *Rare Metal Materials and Engineering(稀有金属材料与工程)*[J], 2014, 43(12): 3058

[4] Zhang Song, Yi Dalong, Zhang Hui *et al.* *Rapid Prototyping Journal*[J], 2015, 21(4): 461

[5] Kelly Gregory S. *Int J Adv Manuf Technol*[J], 2015, 79: 1931

[6] Guo Xunzhong, Fan Minyu, Liu Zhongli *et al.* *Rare Metal Materials and Engineering*[J], 2017, 46(5): 1192

[7] Sriraman M R, Gonser Matt, Foster Daniel *et al.* *Metallurgical and Materials Transactions B*[J], 2012, 43(1): 133

[8] Foster D R, Dapino M J, Babu S S. *Ultrasonics*[J], 2013, 53: 211

[9] Mariani E, Ghassemieh E. *Acta Materialia*[J], 2010, 58: 2492

[10] Hahnlen Ryan, Dapino Marcelo J. *Composites*[J], 2014, 59: 101

- [11] Kelly Gregory S, Just M Scott, Advani Suresh G *et al.* *of Advanced Manufacturing Technology*[J], 2014, 70: 277
Journal of Materials Processing Technology[J], 2014, 214: 1665
- [12] Bielodan J O, Stucker B E, Martinez E. *International Journal*
- [13] Kittichai Sojiphan. *Dissertation for Doctorate*[D]. Columbus: The Ohio State University, 2015

Analysis of Peeling Strength and Bonding Mechanism of Ti/Al Foil Interface Using Ultrasonic Consolidation Process

Jiang Bo^{1,2}, Ren Xueping¹, Hou Hongliang^{2,3,4}, Han Yujie^{2,3}, Wang Yaoqi^{2,3,4}, Zhang Yanling^{2,3,4}

(1. University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China)

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

(3. Aeronautical Key Laboratory for Plastic Forming Technology, Beijing 100024, China)

(4. Beijing Key Laboratory of Digital Forming Technology and Equipment, Beijing 100024, China)

Abstract: Experimental investigations on the ultrasonic consolidation of dissimilar materials were performed using 1100 aluminium and TA1 titanium foils as base materials. The metal laminated composite specimens were prepared using the ultrasonic consolidated Ti/Al foil to investigate effects of amplitude and static force on the interface bonding strength of Ti/Al foil by the peeling test. In addition, the morphology observation and energy spectrum analysis of the peeled interfaces were performed using SEM and EDS, respectively. Microstructure of Ti/Al foil interface was observed using TEM. The results show that a good bonding interface of Ti/Al foil can be obtained using the ultrasonic consolidation technique. The interface bonding strength increases first and then decreases with increasing the static force, while it increases monotonically with increasing the amplitude. The optimum ultrasonic consolidated interface with a peeling strength of 11.325 N/mm can be obtained using an amplitude 35 μm and static force 1.5 kN. A uniform distribution of Al element can be found in the peeled interface of Ti foil accompanied with the obvious nest microstructure. Element transition zone exists at the Ti/Al interface. Recrystallization is obvious at the interface resulting in fine grains. The oxidation layer on the Al foil is broken, and titanium element penetrates into Al grains uniformly.

Key words: ultrasonic consolidation; peeling strength; bonding mechanism

Corresponding author: Ren Xueping, Professor, School of Materials Science and Engineering, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, P. R. China, Tel: 0086-10-82376475, E-mail: rxp33@ustb.edu.cn