

旋转摩擦挤压制备石墨烯增强铝基复合材料的微观结构与力学性能

曹建, 缪宇, 夏春, 黄春平, 柯黎明

(南昌航空大学 轻合金加工科学与技术国防重点学科实验室, 江西 南昌 330063)

摘要: 将石墨填入纯铝 1060 板材中, 通过旋转摩擦挤压(RFE)的方法实现石墨的原位剥离而制备石墨烯增强铝基复合材料, 研究了石墨与基体组织的演变、复合材料的界面结构与力学性能。结果表明, 石墨在 RFE 大塑性变形作用下分散于基体的同时, 被破碎并原位剥离出大量 5~12 层的石墨烯, 添加石墨使基体晶粒得到明显细化、大角度晶界增加; 石墨破碎产生大量的边缘缺陷有利于原子的扩散, 结果在石墨烯和基体间易形成扩散界面, 比机械结合界面更有利于载荷的传递; 可能主要归因于载荷传递和 Hall-Petch 强化, 添加石墨使材料的力学强度明显提高, 特别当添加石墨质量分数 0.82%时, 复合材料的屈服强度和抗拉强度达到 76.4 和 163.2 MPa, 较同等条件 RFE 的基体分别提高了 91%和 71.4%, 取得了较好的增强效果, 此时复合材料的延伸率虽比基体有所下降, 但也达到 25.3%, 有较好的强塑性配合。

关键词: 石墨烯增强铝基复合材料; 旋转摩擦挤压; 石墨; 原位剥离; 力学性能

中图分类号: TB333

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2022)11-4289-08

石墨烯是由 sp^2 碳原子以蜂巢结构构成的二维纳米新材料, 有非常高的杨氏模量和力学强度、优异的传热导电和热稳定性, 将石墨烯复合到金属铝中有望大幅提高材料力学性能的同时使其热、电等功能性有所突破^[1-3], 在航空航天、光学仪器和电力等领域有广泛的应用前景。制备石墨烯增强铝基复合材料的主要难题是如何较好保持石墨烯蜂巢结构并使之在铝基中充分分散以及如何增强石墨烯与铝基的界面结合。近年来, 针对这些问题国内外研究者发展了包含液态和固态过程的许多制备方法^[4]。其中, 大塑性变形(severe plastic deformation, SPD)作为一种固态加工制备技术, 在分散石墨烯的同时对基体金属起到晶粒细化作用而有利于复合材料力学性能的提高, 因而得到越来越多的关注。Huang等^[5]将质量分数 5%的石墨烯纳米片(graphene nanoplates, GNPs)与铝粉初步混合后压饼, 再利用高压扭转方法制备复合材料。研究表明, 高压扭转能有效实现石墨烯的分散, 在 25 °C下经 20 圈高压扭转后基体晶粒尺寸减小到约 70 nm, 复合材料在大幅提升力学性能的同时其电导率也有所增加。Tiwari等^[6]把石墨烯溶剂涂覆在纯铝板上, 待溶剂烘干后进行累积叠轧, 石墨烯添加质量分数为 0.1%时, 经

10 道次累积叠轧的复合材料屈服强度和抗拉强度分别较基体提高了约 26%和 14%。

现有的研究还表明, 以低成本石墨为原料的 SPD 制备过程中, 由于剪切力的作用, 石墨可能被剥离为高附加值的石墨烯而有利于复合材料的性能。Dixit 等^[7]将石墨与铝粉混合后填实在铝板的沟槽中, 通过 8 道次搅拌摩擦加工(friction stir processing, FSP), 石墨被剥离为厚度约 6 nm 的石墨烯, 复合材料的强韧性皆得到大幅度提高。Wu 等^[8]首先混合石墨(1%)与 6063 铝合金粉末、获得烧结胚料后进行累积叠挤, 随着挤压道次的提高石墨被逐渐剥离为约 10~15 层的石墨烯, 累积叠挤 3 道次时复合材料的屈服强度、抗拉强度和电导率比基体分别提高了约 17.4%、15.5%和 11.1%。Liu 等^[9]把石墨填至 2024 铝合金板预加工的沟槽内进行 4 道次 FSP。研究发现, 复合材料中存在未完全剥离的石墨(>50 层)与石墨烯(<10 层), 添加 5%石墨后复合材料的显微硬度和电导率比基材分别提高了 15%和 13%。

旋转摩擦挤压(rotational friction extrusion, RFE)是在 FSP 基础上发展起来的一种复合材料制备方法, 其原理是: 待复合材料在压力作用下与高速旋转的摩擦头接触并产生摩擦热, 使基体金属发生大塑性变形、

收稿日期: 2022-02-23

基金项目: 国家自然科学基金(52065047); 江西省自然科学基金(20202BABL204003); 南昌航空大学研究生创新专项基金(YC2020-028)

作者简介: 曹建, 男, 1996 年生, 硕士生, 南昌航空大学, 江西 南昌 330063, E-mail: jianc923@163.com

增强相与之混合, 最终由出料口挤出得到复合材料。

RFE 继承了 FSP 的种种优势且克服了 FSP 局部复合的问题, 仅通过 1 道次加工即可成形良好, 有利于生产效率的提高^[10]。本研究以石墨为原料, 通过 RFE 促进石墨向石墨烯的剥离制备石墨烯增强铝基复合材料, 考察 RFE 条件下石墨结构的演变、添加石墨对复合材料微观结构与力学性能的影响。

1 实 验

实验采用的基材为退火态工业纯铝 1060 板材, 尺寸 110 mm×14 mm×5 mm; 石墨原料为南京吉仓纳米科技有限公司提供的鳞片石墨(graphite flakes, GFs), 其平均片径约 44 μm , 厚度 1~3 μm , 纯度 $\geq 99.99\%$ 。石墨原料的 SEM 形貌如图 1 所示。

图 2 为 RFE 制备复合材料的示意图及样品实物。将石墨填入 1060 铝板上加工的盲孔并压实, 填好石墨的铝板与未开孔的铝板按图 2 所示层叠后得到待复合材料; 对待复合材料在自制的 RFE 设备上上进行实验。摩擦头旋转速度 345 r/min, 挤压速率 0.28 mm/min, 出料口直径 $\Phi 6$ mm, 预热温度 150 $^{\circ}\text{C}$ 。石墨在复合材料中的添加量通过控制孔径或孔间距来调整, 利用 LECO CS844 型碳硫分析仪检测复合材料的碳含量以表征石墨的添加量。

沿挤压方向截取试样, 打磨抛光后用场发射扫描电镜(SEM, FEI QUANTA-200 型)观察石墨的分散, 利用显微激光拉曼光谱仪(LabRAM HR 型)表征石墨的结构演变, 场发射透射电镜(TEM, Talos F200X 型)观察石墨的剥离情况及其与基体的界面结构, 电子背散射衍射分析仪(EBSD, HKL Max 型)表征基体的组织演变; 沿挤压方向加工小直径 $\Phi 3$ mm 的哑铃型拉伸试样, 利用 WDW-50Y 型电子万能试验机在室温条件下进行拉伸实验, 拉伸速率 0.12 mm/s。

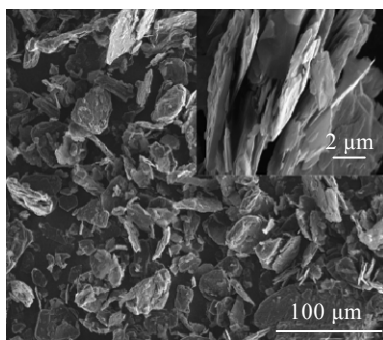


图 1 石墨原料的 SEM 形貌

Fig.1 SEM morphology of raw GFs

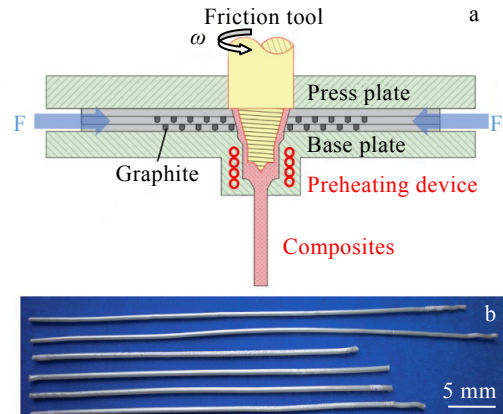


图 2 RFE 制备复合材料示意图与样品实物

Fig.2 Schematic representation of RFE (a) and image of composites (b)

2 结果与分析

2.1 石墨结构的演变

图 3 所示为不同石墨添加量复合材料的 SEM 形貌。从图 3 中可以发现, 经过 RFE 后成形良好, 能获得无明显缺陷的致密材料, RFE 过程的大塑性变形促使石墨在基体较好地分散, 即使石墨添加 1.15% 时也未出现明显的团聚; 从图 3b、3c 还可看到, 相比石墨原料约 44 μm 的片径, 经 RFE 的复合材料中石墨的片径大为减小, 表明 RFE 过程对石墨有很大破碎作用。

图 4 所示是石墨原料及石墨添加 0.82% 复合材料的拉曼光谱。碳材料的拉曼谱图由若干特征峰组成, 包括 D 峰(约 1350 cm^{-1})、G 峰(约 1580 cm^{-1})、D' 峰(约 1620 cm^{-1})和 2D 峰(约 2700 cm^{-1})等。D 峰与 G 峰衍射强度比(I_D/I_G)通常用于评价碳材料的缺陷密度。石墨原料的 I_D/I_G 为 0.56, 复合材料提高到 3.12, 说明 RFE 使石墨产生大量缺陷。含有缺陷的碳材料在 1620 cm^{-1} 附近的 D' 峰常被用来表征缺陷类型。由于电荷转移和机械应变效应, G 峰常发生蓝移而与 D' 峰重叠。为此, 对 1600 cm^{-1} 附近拉曼谱图进行分峰拟合, 如图 4b、4c 所示。根据 Eckmann 等^[11]的研究, sp^3 缺陷的 $I_D/I_{D'}$ 约为 13、空位缺陷在 7 附近, 而边缘缺陷 $I_D/I_{D'}$ 最小, 在 3.5 以下, 石墨原料的 $I_D/I_{D'}$ 为 6.25 (图 4b), 主要为空位缺陷, 而复合材料的 $I_D/I_{D'}$ 为 1.49 (图 4c), 更多为边缘缺陷, 这进一步表明 RFE 对石墨结构的破碎, 结果产生大量的石墨或石墨烯边缘而形成高密度边缘缺陷。2D 峰与 G 峰强度比(I_{2D}/I_G)被用于估计石墨片层厚度, 比值越高表明片层越薄、层数越少^[12]。复合材料的 I_{2D}/I_G 为 1.66,

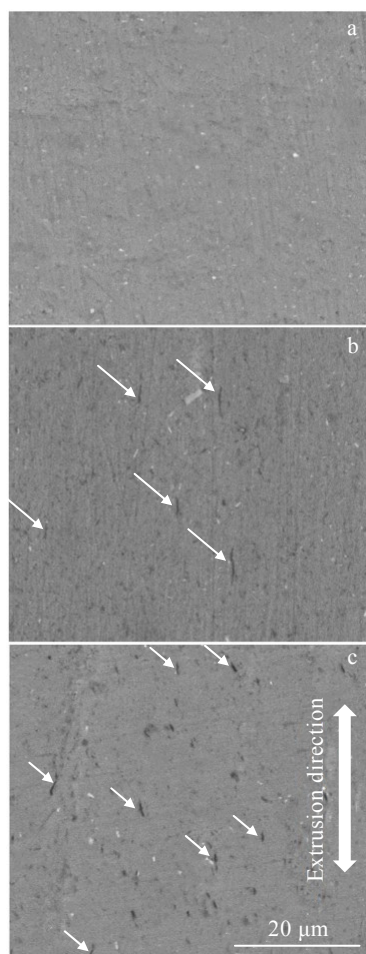


图 3 不同石墨添加量复合材料的 SEM 形貌

Fig.3 SEM morphologies of composites with GFs addition of 0% (a), 0.53% (b) and 1.15% (c)

相比石墨原料 I_{2D}/I_G 0.92 有明显的提高, 表明在 RFE 过程中石墨结构发生了很大程度地剥离。

图 5 显示了复合材料中石墨的典型剥离情况。其中, 图 5a、5b 为复合材料的 TEM 像, 图 5c~5f 为其 HRTEM 像。从图 5 中可看到, 相比石墨原料, 复合材料中石墨发生明显的剥离。在复合材料中, 存在大量 5~12 层可以归为石墨烯的碳材料(图 5c、5d), 此时石墨基本被剥离演变为石墨烯分散在基体中; 复合材料中还观察到部分剥离的石墨纳米片(图 5b), 根据其 HRTEM 像可以发现, 石墨纳米片周边分布着一些 3~8 层的石墨烯, 这些石墨烯实质上并未脱离石墨纳米片且主要与其呈约 90° 方向往基体延伸(图 5d), 这一现象在利用 FSP 剥离石墨制备石墨烯增强铝基复合材料也被观察到^[9]。由此可推测, RFE 和 FSP 过程对石墨产生相当于“撬棍”的作用, 沿层间把石墨一段一段撬开, 结果形成破碎的石墨烯, 脱离或暂时还未脱离石墨。

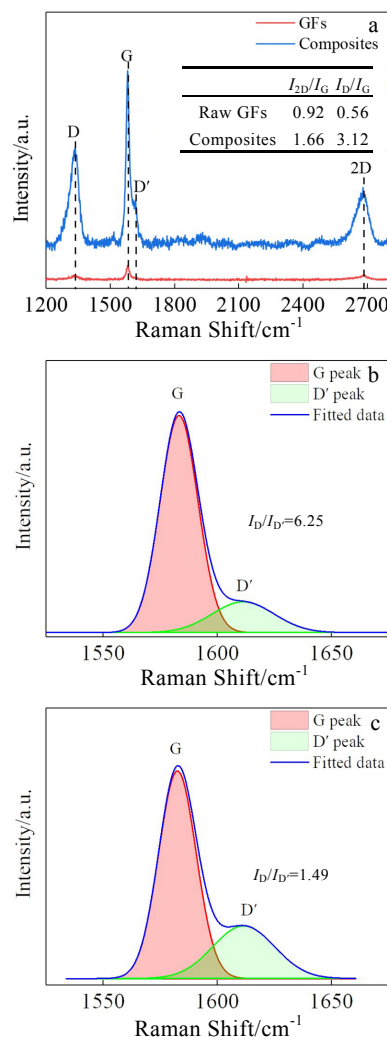


图 4 石墨原料与复合材料的拉曼光谱

Fig.4 Raman spectra (a), peak fitting results of G peak and D' peak for raw GFs (b) and composites (c)

2.2 基体组织的演变

图 6 和图 7 分别是石墨添加 0% (基体) 和 0.82% 复合材料的 EBSD 结果。类似于 FSP 过程, RFE 的热力作用驱使基体大塑性变形, 发生动态再结晶而形成细小的等轴再结晶形态, 其平均晶粒尺寸 $11.16 \mu\text{m}$; 添加 0.82% 石墨后平均晶粒尺寸仅为 $1.35 \mu\text{m}$, 晶粒得到进一步明显细化; 从图 6 和图 7 中还可看到, 添加石墨后大角度晶界(high angle grain boundaries, HAGBs)明显增多, 小角度晶界(low angle grain boundaries, LAGBs)相对减少。分析认为, 破碎与剥离的石墨对基体变形过程的位错运动会起到有效的阻碍作用, 使基体的动态再结晶作用加强, 因此晶粒得到更大细化^[7]; 同时, 再结晶产生的大角度晶界也难于转变为小角度晶界, 大角度晶界比例增加。

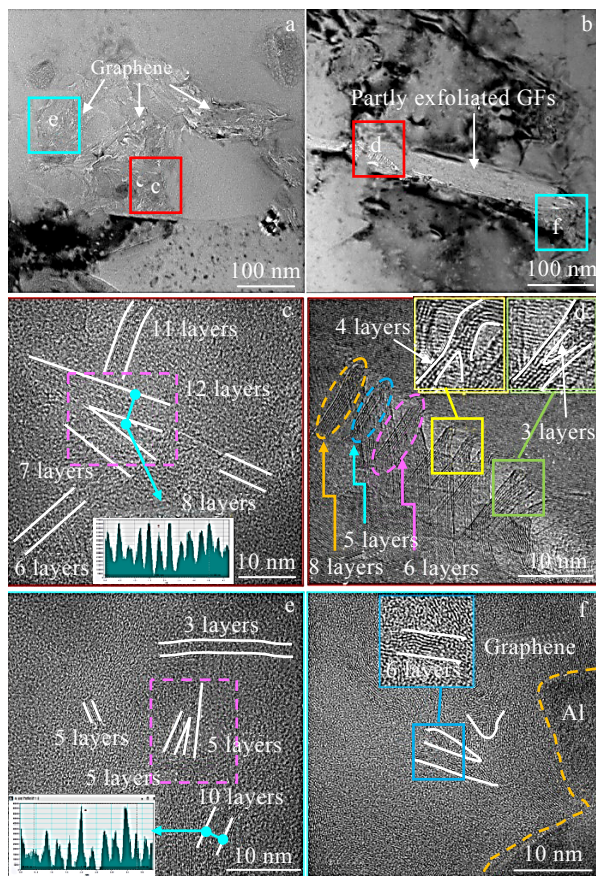


图 5 复合材料中石墨剥离的 TEM 和 HRTEM 分析

Fig.5 Exfoliated GFs with different layers in composites showed by TEM and HRTEM: (a, b) TEM images, (c) and (d) enlarged views of the red box in Fig.5a and Fig.5b, (e) and (f) enlarged views of the blue box in Fig.5a and Fig.5b

2.3 界面结构

图 8 所示为复合材料的典型界面特征。图 8a 为 TEM 明场像,经过 RFE 作用的石墨烯片径小于 200 nm,分散在基体中并与基体紧密嵌合。为分析复合材料的

界面形式,采用 HRTEM 对其界面进行观察。如图 8b 所示,在石墨烯与基体间存在明显的界面过渡,为典型的扩散界面^[13,14];在过渡区边缘靠基体侧还能观察到长度为数纳米的 Al_4C_3 相,表明发生了轻微的界面反应。分析认为,RFE 过程由于石墨的破碎留下大量边缘缺陷,边缘处 C 原子有很大活性容易向基体方向扩散并与基体一定程度发生界面反应形成少量 Al_4C_3 反应物。这种界面形式在碳材料和基体间建立了一个过渡的“桥梁”,比机械结合界面更有利于界面载荷的传递^[13,15]。

2.4 力学性能与增强机理

图 9 所示为不同石墨添加量时复合材料的典型拉伸曲线。从图 9 中可以看到,添加石墨后复合材料的力学强度有大幅度提升而塑性有所降低。经过 RFE 的基体屈服强度和抗拉强度分别为 40 和 95.2 MPa,延伸率为 46%;当加入 0.53% 石墨,复合材料的屈服强度和抗拉强度分别提高到 72.2 和 142.1 MPa,此时的延伸率为 26.9%;进一步增加石墨到 0.82% 时,复合材料的屈服强度和抗拉强度分别达到 76.4 和 163.2 MPa,相比基体分别提高了 91% 和 71.4%,此时复合材料的延伸率略有降低,但保持在 25.3%,表明复合材料仍具有较好的强塑性配合;再继续增加石墨到 1.15% 时,复合材料的屈服强度有所提高,达到 84.4 MPa,但抗拉强度降低至 153.7 MPa 且延伸率仅为 13.6%。

图 10 所示为复合材料的断口形貌。由图 10 可见,随石墨添加量的提高,复合材料由韧性断裂向脆性断裂转变。加入 0.53% 石墨的复合材料断裂时有明显的颈缩现象,断裂面出现大量的韧窝,表现为韧性断裂特征(图 10a);加入 0.82% 石墨时,复合材料断裂面韧窝的大小、数量及深度明显减小(图 10b);加入 1.15% 石墨时,复合材料则明显表现为脆性断裂特征,局部出现解理面且韧窝数量极少(图 10c)。这与图 9

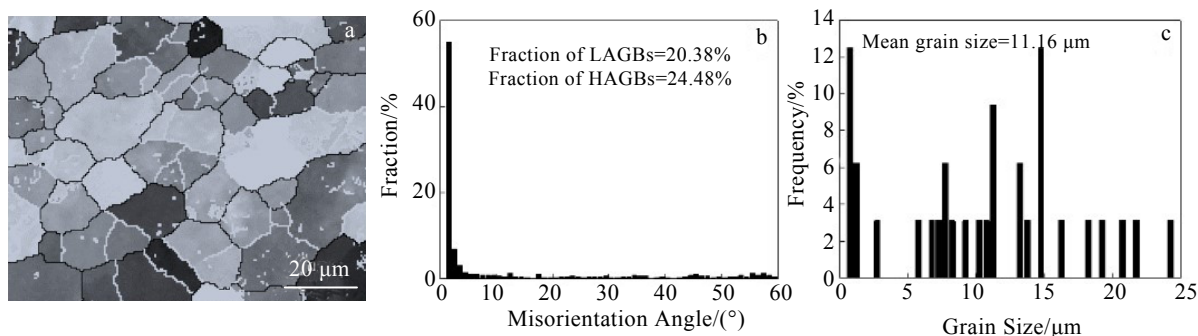


图 6 RFE 基体的 EBSD 结果

Fig.6 EBSD results of RFEed Al matrix: (a) EBSD map, (b) misorientation angle, and (c) grain size distribution

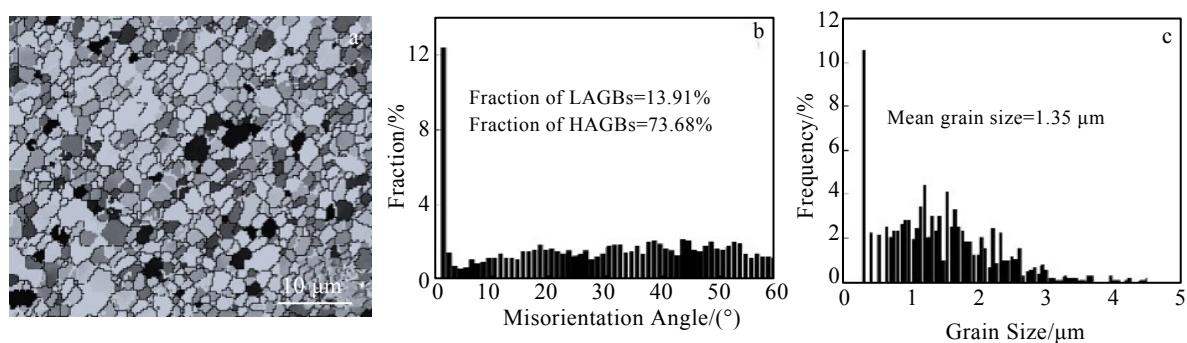


图 7 石墨添加 0.82% 的复合材料的 EBSD 结果

Fig.7 EBSD results of composites with GFs addition of 0.82%: (a) EBSD map, (b) misorientation angle, and (c) grain size distribution

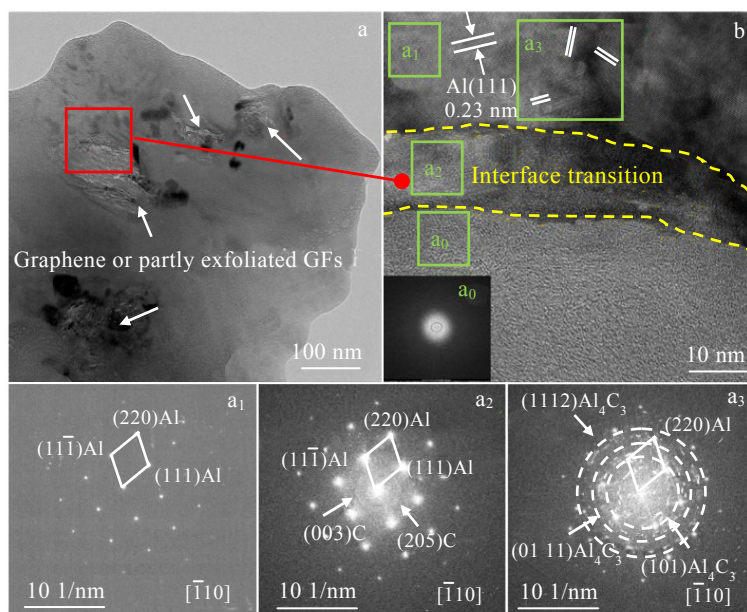


图 8 复合材料界面特征的 TEM 和 HRTEM 像及 FFT

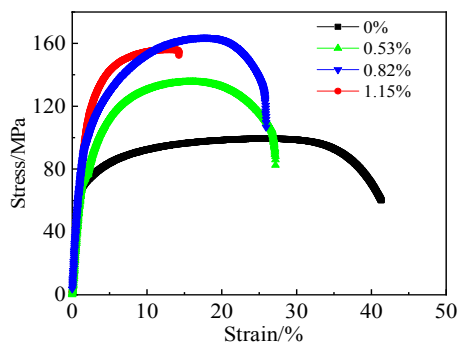
Fig.8 Interface characteristics of composites and corresponding FFT patterns recorded in a_0 , a_1 , a_2 and a_3 : (a) TEM image, (b) HRTEM image of interface

图 9 不同石墨添加量复合材料的应力-应变曲线

Fig.9 Tensile true stress-strain curves of composites with different GFs additions

的结果相符, 表明随石墨添加量的提高复合材料塑性下降、延伸率减小。

图 11 对比了不同文献[3,6,16-27]添加石墨烯以纯铝为基体制备复合材料抗拉强度提升率 R 的影响。 R 按以下公式计算:

$$R = \frac{\sigma_c - \sigma_M}{\sigma_M} \times 100\% \quad (1)$$

式中: σ_c 和 σ_M 分别为复合材料和基体的抗拉强度(MPa)。

从图 11 中可看到, 相比铸造(casting process)和粉末冶金(powder metallurgy)等方法, SPD 制备的复合材料有较高的抗拉强度提升率; 本研究石墨原位剥离获得的复合材料抗拉强度提升率达到或接近以石墨烯为添加对象通过 SPD 方法制备的复合材料。

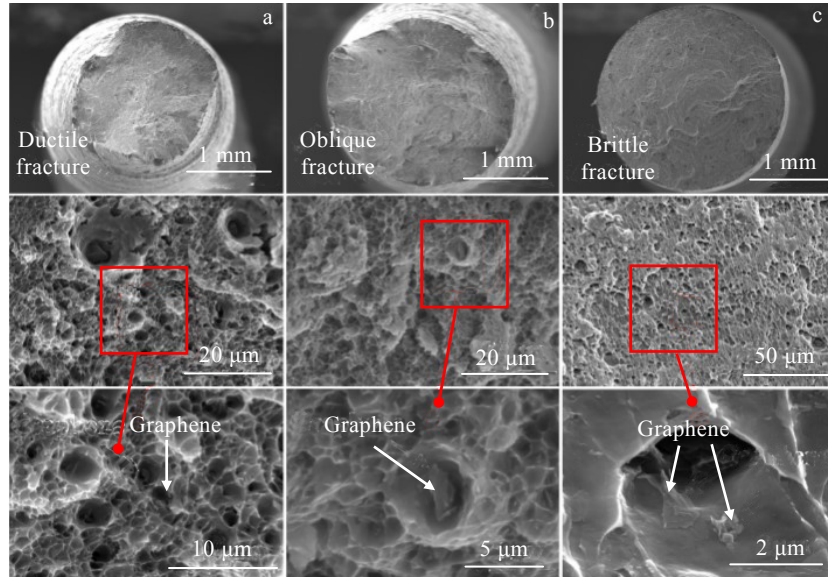


图 10 不同石墨添加量复合材料的断口形貌

Fig.10 Fracture morphologies of composites with GFs addition of 0.53% (a), 0.82% (b), 1.15% (c)

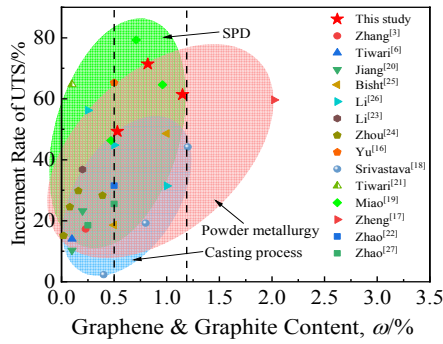


图 11 添加石墨烯或石墨对复合材料抗拉强度提升率的比较

Fig.11 Increment rate of ultimate tensile strength (UTS) in the current research and other published literatures

一般认为,金属基复合材料增强机理有 Hall-Petch、Orowan、载荷传递和位错强化。增强相对复合材料屈服强度的贡献值 $\Delta\sigma_y$ 可表达为^[28]:

$$\Delta\sigma_y = \Delta\sigma_{H-P} + \Delta\sigma_{Orowan} + \Delta\sigma_{LT} + \Delta\sigma_{CTE} \quad (2)$$

Hall-Petch 强化对复合材料屈服强度的贡献值 $\Delta\sigma_{H-P}$ 为^[29]:

$$\Delta\sigma_{H-P} = k_y \left(\frac{1}{\sqrt{d_c}} - \frac{1}{\sqrt{d_m}} \right) \quad (3)$$

式中: d_c 和 d_m 分别为复合材料和基体的平均晶粒尺寸; k_y 为 Hall-Petch 常数,对纯铝取值 $0.04 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ [30]。

Orowan 强化对复合材料屈服强度的贡献值

$\Delta\sigma_{Orowan}$ 可用 Orowan-Ashby 公式^[6]计算:

$$\Delta\sigma_{Orowan} = \frac{0.4MGb}{\pi(1-\nu)L} \ln\left(\frac{\sqrt{\frac{2}{3}}d_p}{b}\right) \quad (4)$$

$$L = \sqrt{\frac{2}{3}} \left(\sqrt{\frac{\pi}{4V_f}} - 1 \right) d_p \quad (5)$$

式中: M 和 ν 分别为面心立方晶体的泰勒因子和铝的泊松比,分别取 3.06 和 0.33^[6]; G 和 b 分别为基体在室温条件下的剪切模量和 Burgers 矢量,分别取 26 GPa 和 0.286 nm [30]; d_p 为增强相等效球形粒子直径(nm); L 为增强相间距(nm); V_f 为增强相体积分数(vol%)。

但是,上述 Orowan 关系是在假设增强相分布于晶粒内部得到的,实际起 Orowan 强化的增强相体积分数 V_{Orowan} 只占一部分^[31]:

$$V_{Orowan} = V_f \left(1 - \frac{2d_0}{d_c} \right)^3, d_c > d_0 \quad (6)$$

$$V_{Orowan} = 0, d_c \leq 2d_0 \quad (7)$$

载荷传递强化对复合材料屈服强度的贡献值 $\Delta\sigma_{LT}$ 可以通过下式^[32]计算:

$$\Delta\sigma_{LT} = \sigma_r V_f \left(1 - \frac{l_c}{2l} \right) + \sigma_m V_m, l > l_c \quad (8)$$

$$\Delta\sigma_{LT} = \sigma_r V_f \left(\frac{l_c}{2l} \right) + \sigma_m V_m, l_c > l \quad (9)$$

$$l_c = \sigma_r \frac{Al}{S\tau_m} \quad (10)$$

式中: σ_m 和 σ_r 分别为基体和增强相的屈服强度(MPa), σ_r 取 30 GPa^[2], l 为石墨烯的平均片径(nm), l_c 为石墨烯的临界尺寸(nm), A 为石墨烯的横截面积(nm²), S 为受切应力的作用面积(nm²), τ_m 为基体的剪切屈服强度($\sim 0.5\sigma_m$)。

至于位错强化对复合材料屈服强度的贡献值 $\Delta\sigma_{CTE}$, 由于 RFE 过程对石墨的破碎作用, 其片径为亚微米级, 增强相与基体热膨胀系数差异而导致的热错配易通过元素扩散或原子弛豫而释放^[33], 产生的位错也易在热变形过程中被消耗, 可忽略不计。

以石墨添加 0.82% 复合材料为例, 综合上述强化机理计算的对复合材料屈服强度 σ_y 的贡献如图 12 所示。计算时, 增强相的密度、片径和厚度分别取 2.28 g/cm³、200 nm 和 10 nm, 等效球形粒子的直径 d_p 计算为 91.4 nm。

由于理论计算是建立在众多理想条件的基础上, 实验得到复合材料的屈服强度(76.4 MPa)与理论计算值(114.9 MPa)有一些差距。但是, 根据图 12 还是可以看到, 各强化机理对复合材料屈服强度的贡献最大为载荷传递强化 $\Delta\sigma_{LT}$, 其次为 Hall-Petch 强化 $\Delta\sigma_{H-P}$, 而 Orowan 强化的贡献 $\Delta\sigma_{Orowan}$ 很小, 几乎可以忽略。

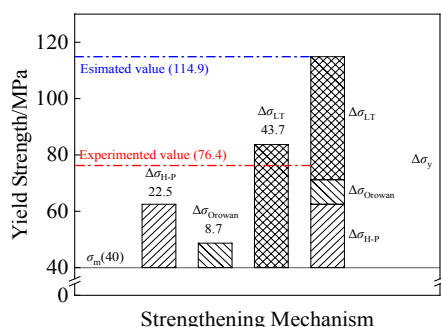


图 12 强化机理对石墨添加 0.82% 复合材料屈服强度的影响

Fig.12 Influence of strengthening mechanisms on yield strength of composites with GFs addition of 0.82%

3 结 论

1) 利用 RFE 的大塑性变形成功实现了石墨在铝基体中分散的同时发生原位剥离, 复合材料存在大量 5~12 层的石墨烯, 可以称之为石墨烯增强铝基复合材料。

2) 相比经过 RFE 的基体, 石墨的添加使基体晶粒进一步明显细化、大角度晶界增加; 同时, RFE 对石墨的破碎使之产生大量边缘缺陷, 提高了边缘处 C 原子活性而有利于原子的扩散, 易形成扩散界面, 这两者都有利于复合材料力学强度的提高。

3) 石墨添加 0.82% 的复合材料屈服强度与抗拉强

度达到 76.4 和 163.2 MPa, 较同等条件 RFE 的基体分别提高了 91% 和 71.4%, 且保持了 25.3% 的延伸率。

参考文献 References

- [1] Chen F, Gupta Nikhil, Behera Rakesh K et al. *JOM*[J], 2018, 70(6): 837
- [2] Zhang Z W, Liu Z Y, Xiao B L et al. *Carbon*[J], 2018, 135: 215
- [3] Zhang S, Chen G Q, Qu T M et al. *Materials Letters*[J], 2020, 265: 127 440
- [4] Kandpal B C, Kumar J, Singh H. *International Journal of Research in Mechanical Engineering & Technology*[J], 2014, 4(2): 27
- [5] Huang Y, Bazarnik P, Wan D et al. *Acta Materialia*[J], 2019, 164: 499
- [6] Tiwari J K, Mandal A, Rudra A et al. *Materials Chemistry and Physics*[J], 2020, 248: 122 939
- [7] Dixit S, Mahata A, Mahapatra D R et al. *Composites Part B: Engineering*[J], 2018, 136: 63
- [8] Wu G H, Yu Z H, Jiang L T et al. *Carbon*[J], 2019, 152: 932
- [9] Liu Y J, Chen G Q, Zhang H et al. *Materials Letters*[J], 2021, 276: 130 280
- [10] Lin Maogu(林毛古), Xu Weiping(徐卫平), Ke Liming(柯黎明) et al. *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*[J], 2015, 25(1): 98
- [11] Eckmann A, Felten A, Mishchenko A et al. *Nano Letters*[J], 2012, 12(8): 3925
- [12] Chen F Y, Ying J M, Wang Y F et al. *Carbon*[J], 2016, 96: 836
- [13] Pérez-Bustamante R, Bolaños-Morales D, Bonilla-Martínez J et al. *Journal of Alloys and Compounds*[J], 2014, 615: S578
- [14] Fu Qiang(傅强), Xia Chun(夏 春), Huang Chunping(黄春平) et al. *Transactions of Nonferrous Metals Society of China* [J], 2020, 30(1): 26
- [15] Chen B, Shen J, Ye X et al. *Carbon*[J], 2017, 114: 198
- [16] Yu H, Zhang S Q, Xia J H et al. *Materials Science and Engineering A*[J], 2021, 802: 140 669
- [17] Zheng Z, Yang X X, Li J C et al. *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*[J], 2021, 31(4): 878
- [18] Srivastava A K, Sharma B, Saju B R et al. *World Journal of Engineering*[J], 2020, 9: 212
- [19] Miao Yu(缪 宇), Xia Chun(夏 春), Huang Chunping(黄春平) et al. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2020, 49(12): 4329
- [20] Jiang Y Y, Xu R, Tan Z Q et al. *Carbon*[J], 2019, 146: 17
- [21] Tiwari J K, Mandal A, Rudra A et al. *Journal of Alloys and*

- Compounds*[J], 2019, 801: 49
- [22] Zhao Shuangzan(赵双赞), Yan Shaojiu(燕绍九), Chen Xiang(陈翔) *et al. Rare Metal Materials and Engineering* (稀有金属材料与工程)[J], 2019, 48(2): 632
- [23] Li M, Gao H Y, Liang J M *et al. Materials Characterization*[J], 2018, 140: 172
- [24] Zhou W W, Fan Y C, Feng X P *et al. Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*[J], 2018, 112: 168
- [25] Bisht A, Srivastava M, Kumar R M *et al. Materials Science and Engineering A*[J], 2017, 695: 20
- [26] Li G, Xiong B W. *Journal of Alloys and Compounds*[J], 2017, 697: 31
- [27] Zhao L Y, Lu H M, Gao Z J. *Advanced Engineering Materials*[J], 2015, 17(7): 976
- [28] Sanaty-Zadeh A. *Materials Science and Engineering A*[J], 2012, 531: 112
- [29] Ghazanlou S I, Eghbali B, Petrov R. *Materials Science and Engineering A*[J], 2021, 807: 14 877
- [30] Hansen N. *Scripta Materialia*[J], 2004, 51(8): 801
- [31] Liu Zhenyu(刘振宇). *Thesis for Doctorate*(博士论文)[D]. Dalian: Dalian University of Technology, 2014
- [32] Shin S E, Choi H J, Shin J H *et al. Carbon*[J], 2015, 82: 143
- [33] Kim C T, Lee J K, Plichta M R. *Metallurgical Transactions A* [J], 1990, 21(2): 673

Microstructure and Mechanical Properties of Graphene Reinforced Aluminum Matrix Composites Prepared by Rotary Friction Extrusion

Cao Jian, Miao Yu, Xia Chun, Huang Chunping, Ke Liming

(National Defence Key Discipline Laboratory of Light Alloy Processing Science and Technology, Nanchang Hangkong University, Nanchang 330063, China)

Abstract: In this paper, a successful attempt was demonstrated to prepare graphene reinforced aluminum matrix composites by in situ exfoliation of graphite flakes (GFs) using rotational friction extrusion (RFE) method. It is found that the GFs are broken on a large scale and uniformly dispersed into the aluminum matrix during PRE. EBSD analysis indicates that the grain is significantly refined, the fraction of high angle grain boundaries is increased. As revealed by HRTEM that a number of 5~12 layer graphene can be peeled off from the GFs owing to the severe plastic deformation of RFE, and there exists obvious transition at the graphene-aluminum interface due to the diffusion of carbon atom at the broken graphene edge, which provides an efficient load transfer for the composites. The yield strength and ultimate tensile strength of the prepared composites with GFs addition of 0.82wt% are 76.4 and 163.2 MPa, which are 91% and 71.4% higher than those of the RFEed base metal (1060 Al), respectively. Meanwhile, the elongation of the composites is 25.3%, and a good strength-ductility balance is obtained. Combined with theoretical calculations, it is found that the main strengthening contribution is most likely attributed to the load transfer and Hall-Petch mechanism.

Key words: graphene/aluminum composites; rotational friction extrusion; graphite; in situ exfoliation; mechanical properties

Corresponding author: Xia Chun, Ph. D., Associate Professor, Nanchang Hangkong University, Nanchang 330063, P. R. China, Tel: 0086-791-83863023, E-mail: xiachun2002@163.com