

DOI:10.13979/j.1007-7235.2022.09.004

叠轧道次对 1060/7N01 铝合金复合板组织性能的影响

程 笑¹, 李顺强², 孙国胜², 刘吉梓^{2,3}

(1. 南京理工大学 中法工程师学院, 江苏 南京 210094; 2. 南京理工大学 材料科学与工程学院 纳米异构材料中心, 江苏 南京 210094; 3. 南京理工大学 分析测试中心, 江苏 南京 210094)

摘要:通过累积叠轧(475 °C)成功制备出 1060/7N01 铝合金复合板,利用扫描电子显微镜、透射电子显微镜结合显微硬度和拉伸实验,探究了叠轧道次对复合板界面特征、显微组织和力学性能的影响。结果表明:界面存在不连续氧化物,随叠轧道次的增加,平直的复合板界面逐渐向波浪状转变,且叠轧道次的增加进一步促进了界面的结合。1060 纯铝层晶粒为等轴晶,晶粒大小在叠轧过程中无明显变化。7N01 铝合金层晶粒被拉长,在叠轧 2 道次时片层厚度细化至 0.7 μm,此后保持不变。随着叠轧道次增加,1060 纯铝层的硬度几乎不发生改变,但 7N01 铝合金层的硬度则先增大后减小。随着叠轧道次的增加,复合板强度先增大后减小,当叠轧至第 2 道次时,屈服强度和抗拉强度均达到最大值,分别为 221 MPa 和 256 MPa。

关键词:1060/7N01 铝合金复合板;叠轧道次;界面;硬度;断口形貌

中图分类号:TG339 **文献标识码:**A **文章编号:**1007-7235(2022)09-0026-07

Effect of accumulative roll bonding cycles on microstructure and mechanical properties of 1060/ 7N01 aluminum alloy sheets

CHENG Xiao¹, LI Shun-qiang², SUN Guo-sheng², LIU Ji-zi^{2,3}

(1. Sino-French Engineer School, Nanjing University of Science and Technology, Nanjing 210094, China; 2. Nano and Heterogeneous Materials Center, School of Materials Science and Engineering, Nanjing University of Science and Technology, Nanjing 210094, China; 3. Center of Analytical Facilities, Nanjing University of Science and Technology, Nanjing 210094, China)

Abstract: 1060/7N01 Al alloy laminated composites were successfully prepared by accumulative roll bonding (ARB) at 475 °C. The effects of ARB cycles on the interface characteristics, microstructure and mechanical properties of the composites were investigated by scanning electron microscope (SEM) and transmission electron microscope (TEM) accompanied with microhardness and tensile testing. The results show that there are discontinuous oxides at the interfaces. The flat 1060/7N01 interface gradually changes to the wavy shape with the increase of ARB cycles. In addition, the interfacial bonding is further promoted by increase of ARB cycle. The grain of 1060 pure Al layer is equiaxed, and the grain size doesn't change significantly in the ARB process. The grain of 7N01 layer is elongated, and the lamellar thickness is refined to 0.7 μm after 2 cycles, which remains unchanged thereafter. The hardness of 1060 pure Al layers is almost unchanged as the increase of ARB cycles, while that of 7N01 Al alloy layers increases first and then decreases. The effect of ARB

收稿日期:2022-08-10

基金项目:国家自然科学基金(52171119);江苏省自然科学基金(BK20201308)。

第一作者简介:程笑(1999-),男,江苏苏州人,硕士研究生。

cycles on the strength of the composites is consistent with that of the hardness of 7N01 Al alloy layer. The yield and tensile strength after 2 ARB cycles reaches the maximum, which are 221 MPa and 256 MPa respectively.

Key words: 1060/7N01 Al alloy laminated composites; accumulative roll bonding cycle; interface; hardness; fracture morphology

铝合金作为一种重要的结构材料,因其比强度和热导率较高被广泛应用于航空航天、铁路交通、电子和汽车等行业^[1-2]。然而,单一的铝合金越来越难以满足实际需求。例如,纯铝虽然耐腐蚀性能优异,但较低的强度限制了其在结构材料领域的应用。7×××系铝合金具有超高的强度,但是由于含有大量的溶质原子,易发生点蚀、晶界腐蚀及应力腐蚀,显著影响其服役寿命^[3-4]。上述问题可使用纯铝/铝合金层状复合材料解决:铝合金层保证了复合材料的强度,表层的纯铝则能提高材料的耐腐蚀性能。

累积叠轧(accumulative roll bonding, ARB)采用的设备便宜,工艺简单,生产效率高,被认为是最有前景的制备金属层状复合材料的技术^[5]。大多数的叠轧研究都是在室温下进行的,因为这有利于细化晶粒,形成超细晶组织,提升材料的强度^[6]。然而,室温叠轧由于仅仅通过材料表面的摩擦剪切进行物理结合,界面易形成裂纹或孔洞等缺陷,使界面结合不牢固、力学性能降低^[7]。

铝合金的层错能高,室温叠轧形成的超细晶热

稳定性差。因此,本实验通过高温累积叠轧技术成功制备出界面结合良好的 1060/7N01 铝合金层状复合板,研究了其界面特征、组织和力学性能随叠轧道次的变化规律,并对其拉伸断口形貌进行了对比分析。

1 实验材料与方法

实验材料 7N01 铝合金及 1060 纯铝的化学成分如表 1 所示。利用线切割得到尺寸为 3 mm×40 mm×60 mm 的 7N01 铝合金和 1.5 mm×40 mm×60 mm 的 1060 纯铝板试样,将试样于 475 ℃保温 2 h,然后使用钢丝刷打磨表面,去除表面的杂质及氧化层后浸入丙酮溶液中用超声波清洗干净。按 1060 纯铝、7N01 铝合金、1060 纯铝顺序堆叠放置,总厚度为 6 mm,并用铆钉固定四个角。将堆叠的复合板于 475 ℃保温 10 min,快速进行单道次轧制,压下率约为 50%,轧制在无润滑条件下进行,待试样冷却至室温,再用线切割去掉头、尾后平均分成两段,表面处理后将它们堆叠,重复上述操作,如图 1 所示。

表 1 1060 纯铝及 7N01 铝合金的化学成分(质量分数/%)
Table 1 Chemical composition of 1060 pure Al and 7N01 Al alloy(wt/%)

合金	Zn	Mg	Cu	Mn	Fe	Si	Cr	Ti	Zr	Al
7N01	4.86	1.22	0.131	0.345	0.08	0.038	0.171	0.047	0.133	余量
1060	0.018	0.004	0.002	0.003	0.257	0.078	0.002	0.021		余量

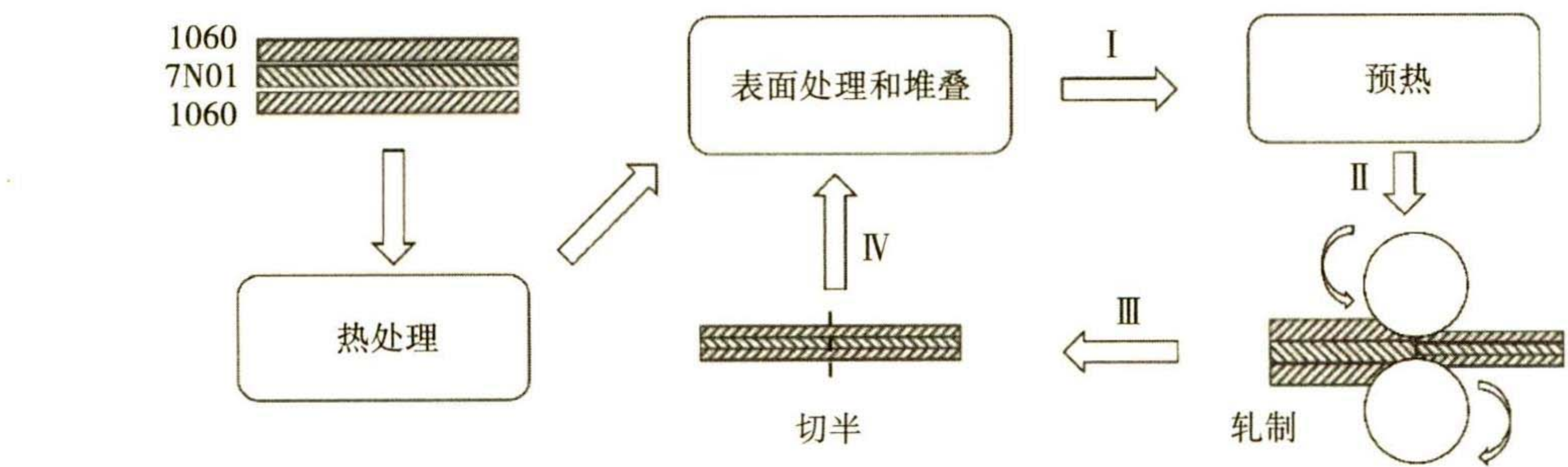


图 1 实验工艺流程图
Fig. 1 Schematic illustration of experimental procedures

利用扫描电子显微镜 (SEM, FEI QUANTA 250F) 观察复合界面和断口组织形貌, 利用透射电子显微镜 (TEM, FIE Titan G2 80-300) 观察显微组织, 并结合 X 射线能谱仪 (EDS) 对相关组织进行分析。利用 HMV-G 21DT 显微维氏硬度计测定不同金属层的硬度, 载荷为 0.5 N, 保持时间为 10 s, 每个硬度值取 10 个测试点的平均值。沿轧制方向取拉伸试样, 标距长为 5 mm, 采用 Instron-5982 拉伸试验机在室温下测试复合板的力学性能, 拉伸速度为 0.3 mm/min。

2 结果与分析

2.1 界面特征

图 2 是背散射模式下拍摄的界面 SEM 图, 较暗一层是 1060 纯铝层, 较亮一层是 7N01 铝合金层。从图 2a~d 中可以看出, 随着叠轧次数的增加, 7N01 铝合金层和 1060 纯铝层的单层厚度不断减小。统计叠轧板材各层的总厚度, 结果如表 2 所示。

表 2 叠轧复合板 1060 和 7N01 层的厚度 (mm)

Table 2 Thickness of 1060 layers and 7N01 layers of composites with various ARB cycles (mm)

叠轧道次	1060 层总厚度	7N01 层总厚度	板材总厚度
0	3	3	6
1	1.29	1.45	2.74
2	1.3	1.46	2.76
3	1.27	1.5	2.77
4	1.26	1.54	2.8

7N01 铝合金层原始总厚度与 1060 纯铝层的总厚度相等, 但叠轧后 7N01 铝合金层的总厚度总是略大于 1060 纯铝层的总厚度, 表明纯铝层的压下率高于铝合金层的压下率。这是由于纯铝比铝合金更

软, 且轧制时加工硬化程度较铝合金低, 因此变形程度更大。

在高倍下对界面形貌和结合情况进行分析, 图 2e 和图 2g 中可以明显地发现界面处存在不连续的夹杂物 (如白色箭头所示)。图 2f 为图 2e 白色框内的 EDS 面扫描分析图。结果表明, 这些含夹杂的区域有明显的 O 和 Mg 元素的富集, 没有 Zn 元素的富集, 说明界面处的这些夹杂主要为 Al、Mg 的氧化物。不连续氧化物的形成与轧制复合的结合机制有关。轧制过程中, 金属层表面的氧化层在正应力和切应力的作用下破碎, 露出基体金属, 基体金属在轧制压力的作用下被挤入这些破碎的氧化层间隙之中而形成机械结合, 从而形成含不连续氧化夹杂物的界面。随叠轧的进行, 累积变形不断增加, 并在高温的作用下, 逐渐转变为冶金结合。

此外, 对比图 2e 和图 2h 可以看出, 界面形貌在叠轧过程中出现明显的变化: 1 道次叠轧后, 界面呈平直状态; 4 道次叠轧后, 界面某些部位出现了明显的颈缩, 界面呈波纹状。这是因为在叠轧初期, 各层累积变形量小, 变形协调性好, 变形较为均匀。随着叠轧道次的增加, 由于纯铝的层错能高, 再结晶温度低, 在变形过程中可以不断进行动态回复和再结晶^[8-9], 故纯铝层可以累积大量的应变。铝合金层含有大量的溶质原子, 特别是微量元素 Mn、Cr、Zr 等可以极大地降低层错能, 提高再结晶温度^[10], 稳定位错, 导致铝合金层累积应变的能力 (继续变形的能力) 随着叠轧次数增加而不断减弱。因此在后续道次中, 由于纯铝层和铝合金层的变形不相容性增大, 铝合金层达到可累积应变的极限即开始出现颈缩^[11-12]。此时, 纯铝层被挤入铝合金层颈缩位置, 从而导致各层厚度均匀性明显下降, 结合界面呈波浪形。

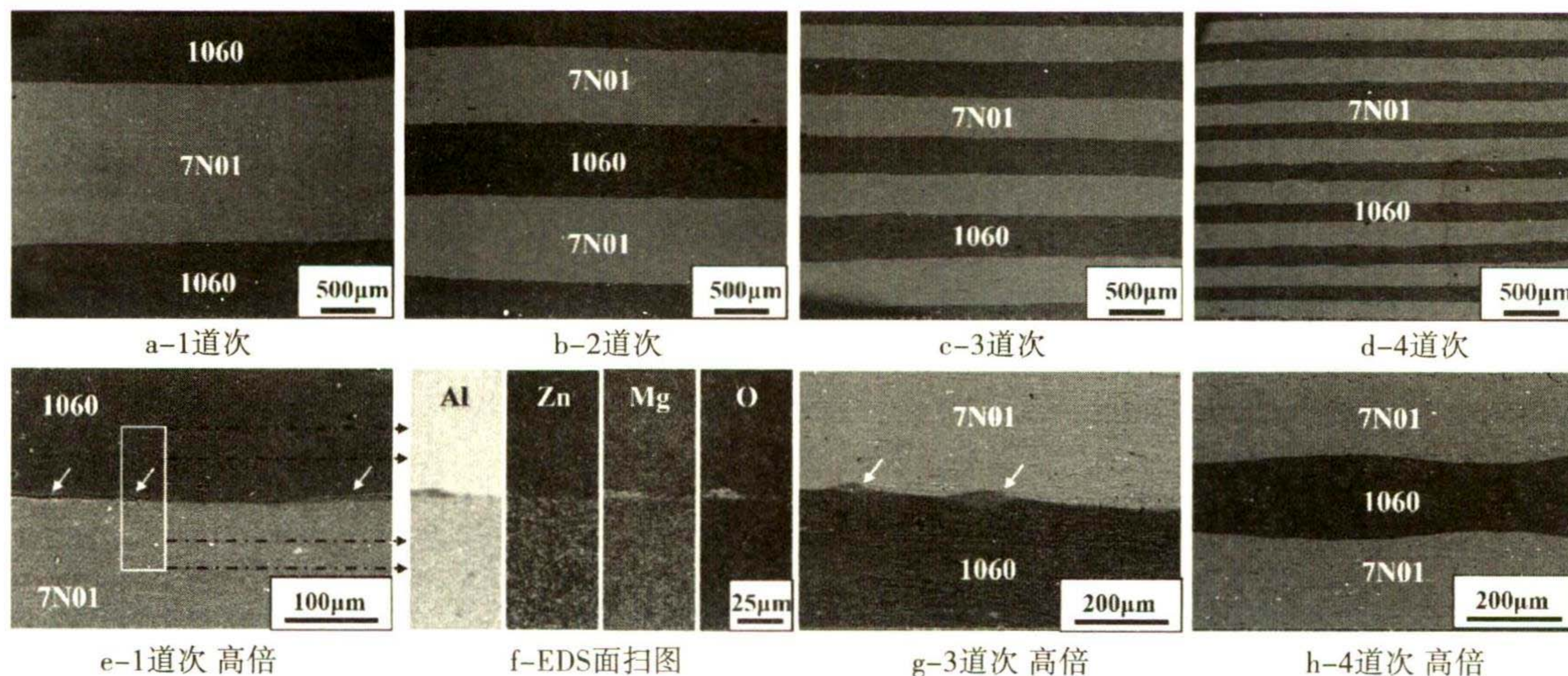


图 2 不同叠轧道次复合板材界面的 SEM 图

Fig. 2 SEM images of the interfaces of composites with various ARB cycles

2.2 显微组织

不同叠轧道次下,复合板中1060纯铝层和7N01铝合金层显微组织的TEM形貌如图3所示。由图3a~c可知,7N01铝合金层的晶粒在叠轧过程中被拉长,晶粒内部衬度不均匀,表明晶粒内部存在晶格畸变或位错塞积。1道次叠轧后,拉长晶粒平均片层厚度约为 $1.5\text{ }\mu\text{m}$;2道次叠轧后,晶粒被进一步细化,平均片层厚度约为 $0.7\text{ }\mu\text{m}$;4道次叠轧后,晶粒

片层厚度与2道次叠轧相差不大。这表明,7N01铝合金层的晶粒细化主要发生在前两个道次,后续叠轧晶粒尺寸变化不大。从图3d~f可见,1060纯铝层晶粒内部较为干净、晶粒呈等轴状。这是因为纯铝再结晶温度低,叠轧过程中发生了动态再结晶。随着叠轧道次的增加,1060纯铝层的晶粒尺寸差别不大,约为 $1.4\text{ }\mu\text{m}$ 。

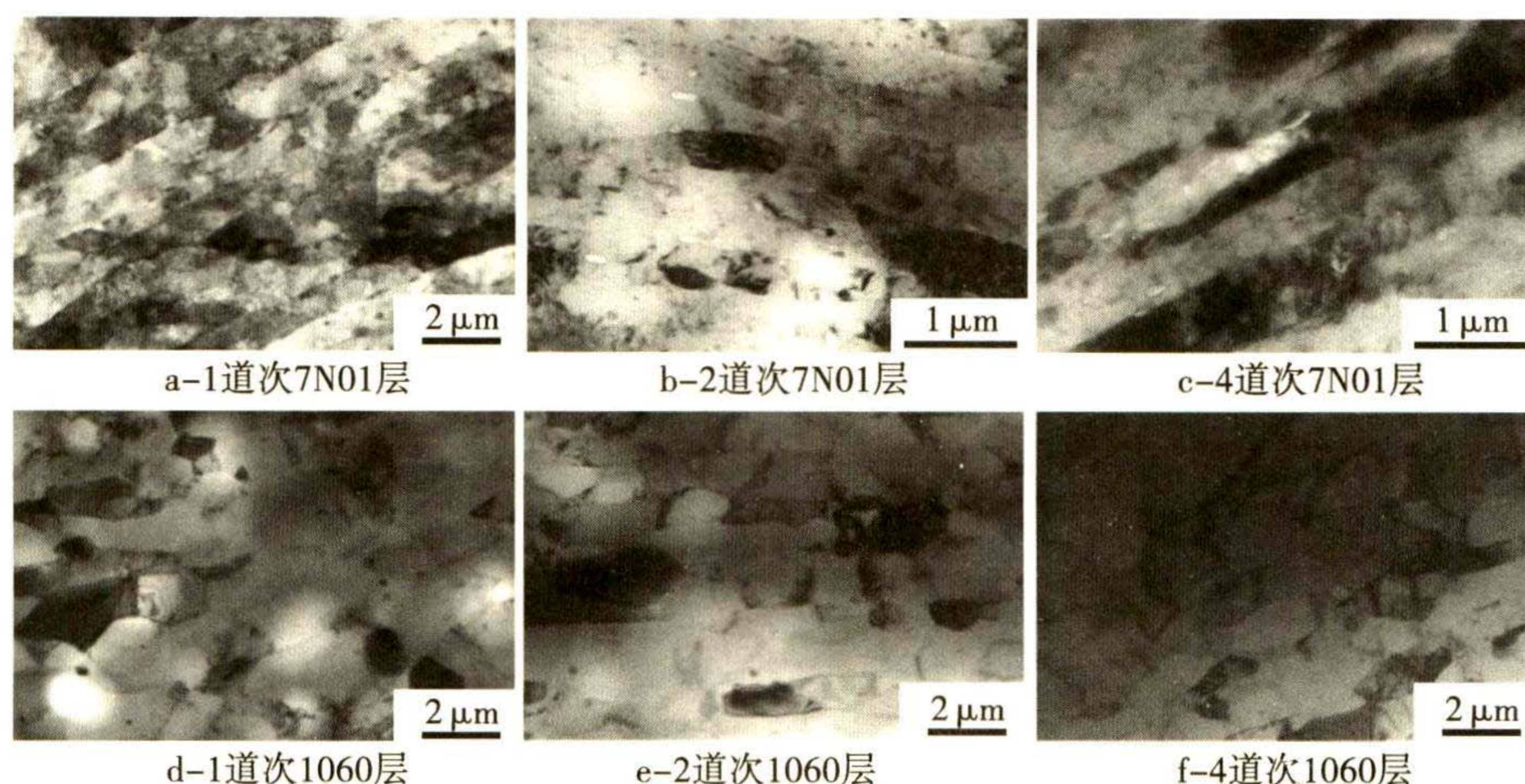


图3 不同道次叠轧复合板材的TEM图

Fig. 3 TEM images of composites with various ARB cycles

图4为复合板经1道次叠轧后7N01铝合金层的HAADF-STEM图。从图4中可以看出,叠轧后7N01铝合金层中存在大量的析出物。EDS分析结果(表3)表明,这些第二相富含Zn和Mg,且二者原子比接近2:1。这说明叠轧过程中有 MgZn_2 析出,这些析出物可能是在轧后空冷过程中产生的。此外,高温叠轧过程中产生的空位或位错等晶体缺陷可以促进析出相的析出^[13]。

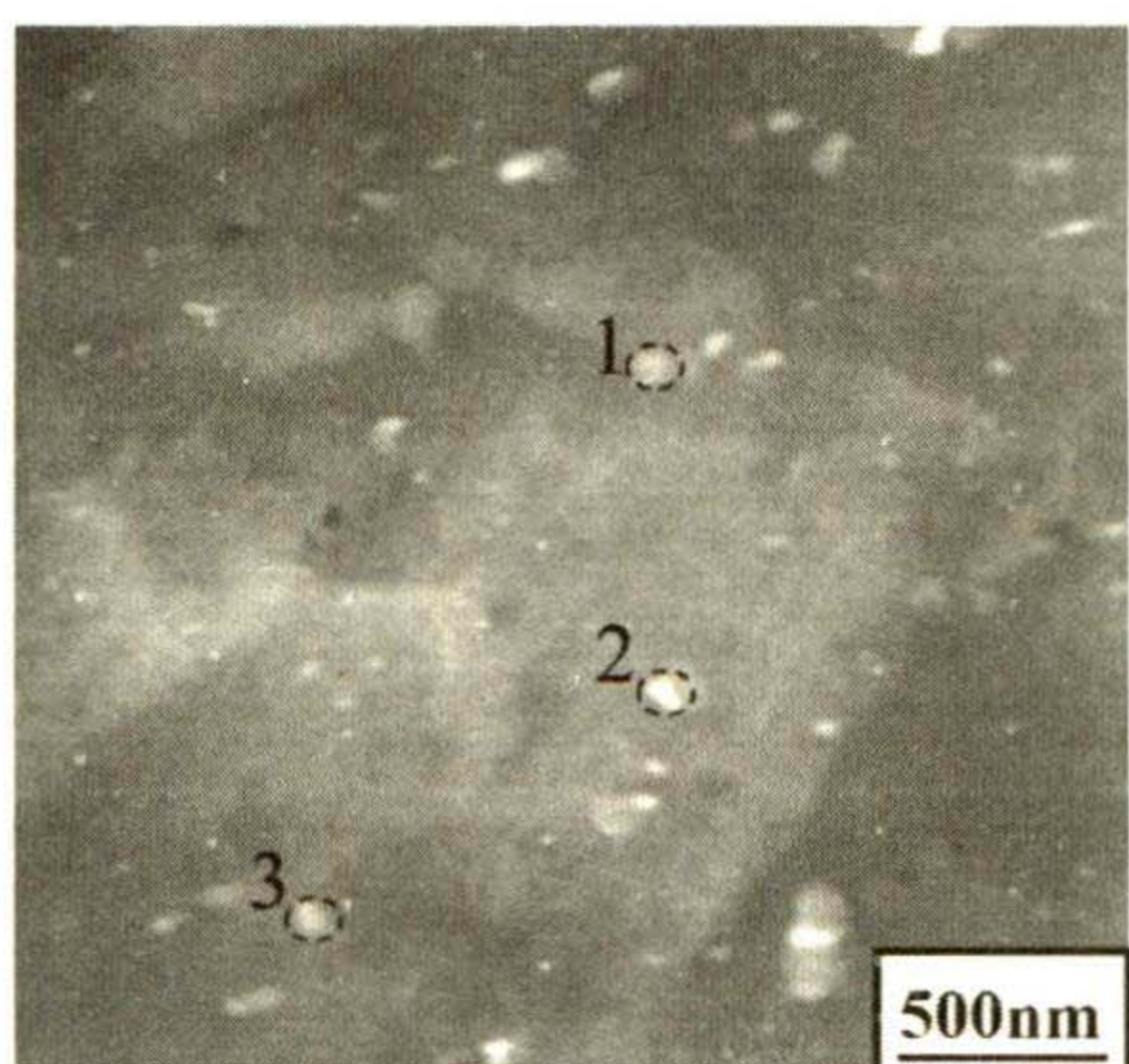


图4 1道次叠轧后7N01铝合金层 $\langle 112 \rangle_{\text{Al}}$ 方向的HAADF-STEM图

Fig. 4 HAADF-STEM image of composite with 1 cycle observed along $\langle 112 \rangle_{\text{Al}}$ zone axis

表3 图4中部分析出物的成分(原子分数/%)

Table 3 The corresponding EDS analysis results of the particles 1, 2 and 3 in Fig. 4 (at/%)

位置	Al	Zn	Mg
1	97.44	1.74	0.82
2	96.65	2.25	1.1
3	97.3	1.85	0.85

2.3 力学性能

1060纯铝层及7N01铝合金层显微硬度随叠轧道次的变化如图5所示。对于1060纯铝层,随着叠轧道次增加,其显微硬度变化不大,趋于恒定,硬度值大概在 $35\text{ HV} \sim 40\text{ HV}$ 。从显微组织上看,这主要是因为纯铝在叠轧过程中,发生动态回复再结晶,位错密度低,晶粒尺寸相近,故而硬度值没有明显的区别。7N01铝合金层的硬度在2道次叠轧后达到最大,为 118 HV ,随后呈现下降趋势。TEM结果表明,7N01铝合金层的晶粒细化主要发生在前两个道次,故而2道次叠轧复合板硬度达到最高。后续叠轧硬度下降的原因可能是因为叠轧过程中产生的 MgZn_2 相是稳定的 η 相。随着叠轧道次的增加, η 相

在 7N01 铝合金层中不断析出。由于 η 相与基体界面非共格,其析出强化效应弱^[14-15]。同时 η 相的析出消耗了大量的溶质原子,基体固溶强化效应大大降低,因此硬度下降。

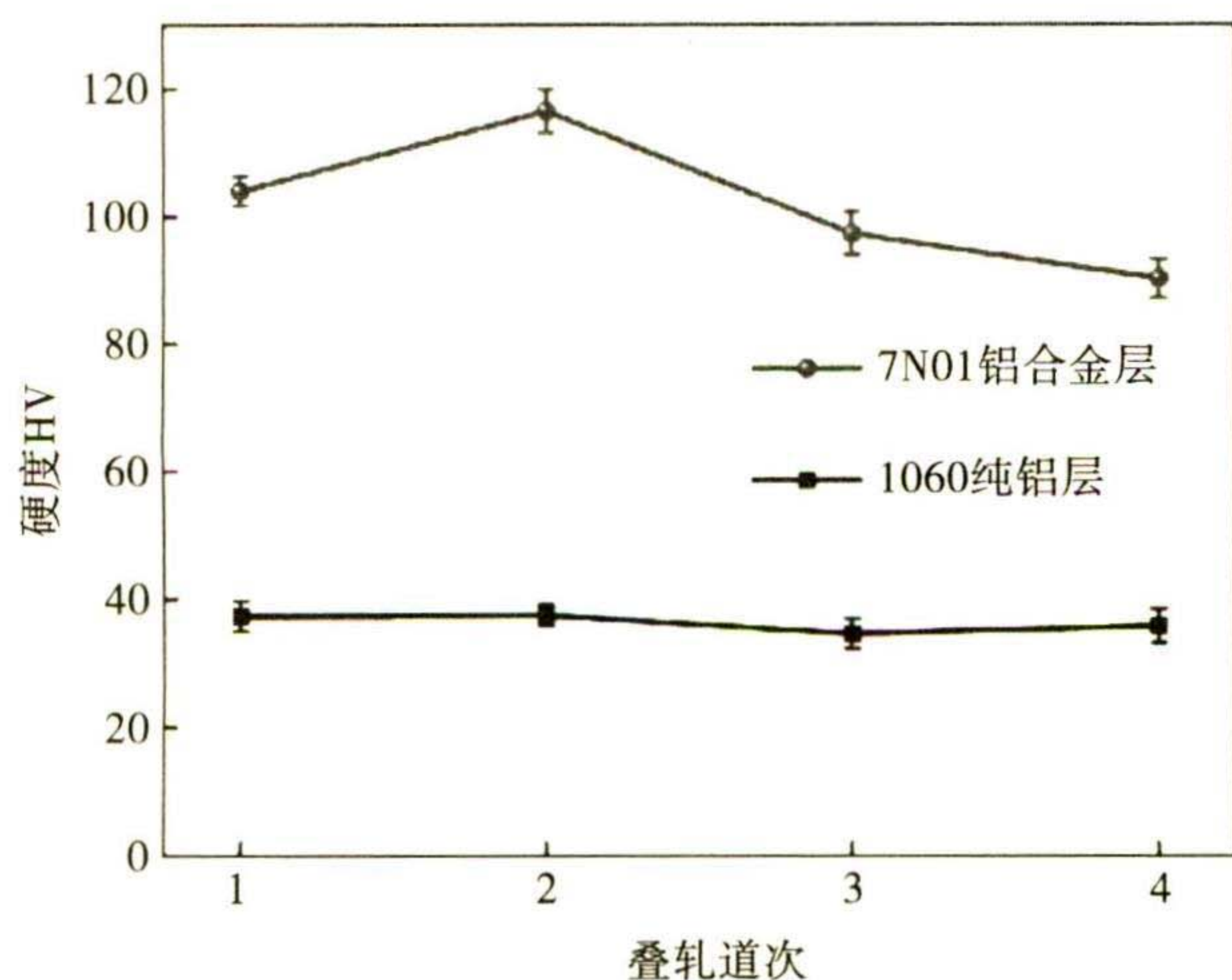


图5 复合板显微硬度随叠轧道次的变化趋势

Fig. 5 Variation of microhardness of composites with the number of ARB cycles

复合板的工程应力-应变曲线如图 6 所示。由图 6 可知,随着叠轧道次增加,复合板的强度先上升后呈下降趋势,与 7N01 铝合金层硬度随叠轧道次的变化趋势一致。第 1 道次叠轧板材的屈服强度和抗拉强度分别为 210 MPa 和 239 MPa。根据混合法则^[16],第 1 道次叠轧板材理论屈服强度可根据在相同条件下热轧的各组元层的屈服强度计算:

$$\sigma_s = \sum V_i \sigma_{i,s} \quad (1)$$

式中:

V_i —第 i 组元层的体积分数;

$\sigma_{i,s}$ —第 i 组元层的屈服强度。

1060 纯铝层和 7N01 铝合金层的体积分数均为 50%,其屈服强度根据图 6 可得分别为 90 MPa 和 325 MPa。结合理论计算,第 1 道次叠轧板材的屈服强度为 207.5 MPa,与实验得到的 210 MPa 非常吻合。第 2 道次叠轧板材的屈服强度与抗拉强度最大,分别为 221 MPa 和 256 MPa,较第 1 道次提升了约 5% 与 7%。4 道次叠轧板材具有最低的屈服强度与抗拉强度,分别为 153 MPa 和 210 MPa。伸长率的变化与强度正好相反:经过 2 道次叠轧后,伸长率只有 14%;而经过 4 道次叠轧后,伸长率为 25%,相较于第 2 道次增加了近 80%。

影响层状复合材料力学性能的因素是多方面的。首先,金属层之间的结合是影响力学性能的关键因素^[17]。界面若未结合或出现微裂纹,将极大削弱层状复合材料的强度和塑性。此外,一般认为界面存在的氧化夹杂区域对界面的结合不利,并且会成为裂纹扩展的裂纹源,对复合材料的力学性能有很大的影响^[18]。然而从拉伸结果来看,1 道次叠轧板屈服强度与理论计算十分接近,说明本研究中氧化物对强度的影响不明显。这可能是因为氧化物在界面是沿轧向不连续分布,含量较少,且相较于室温累积叠轧,热轧促使溶质原子在界面附近不断发生下坡扩散,从而使界面发生冶金结合,提高了界面的结合强度,有利于提高材料性能。其次,各层的流变性能差异也对力学性能有很大影响。从硬度上看,2 道次叠轧后,复合板软、硬层硬度差值最大,反应了其在变形过程中的应变协调能力弱;4 道次叠轧后,软、硬层的硬度差最小,应变协调能力大大增加,故其伸长率最高。

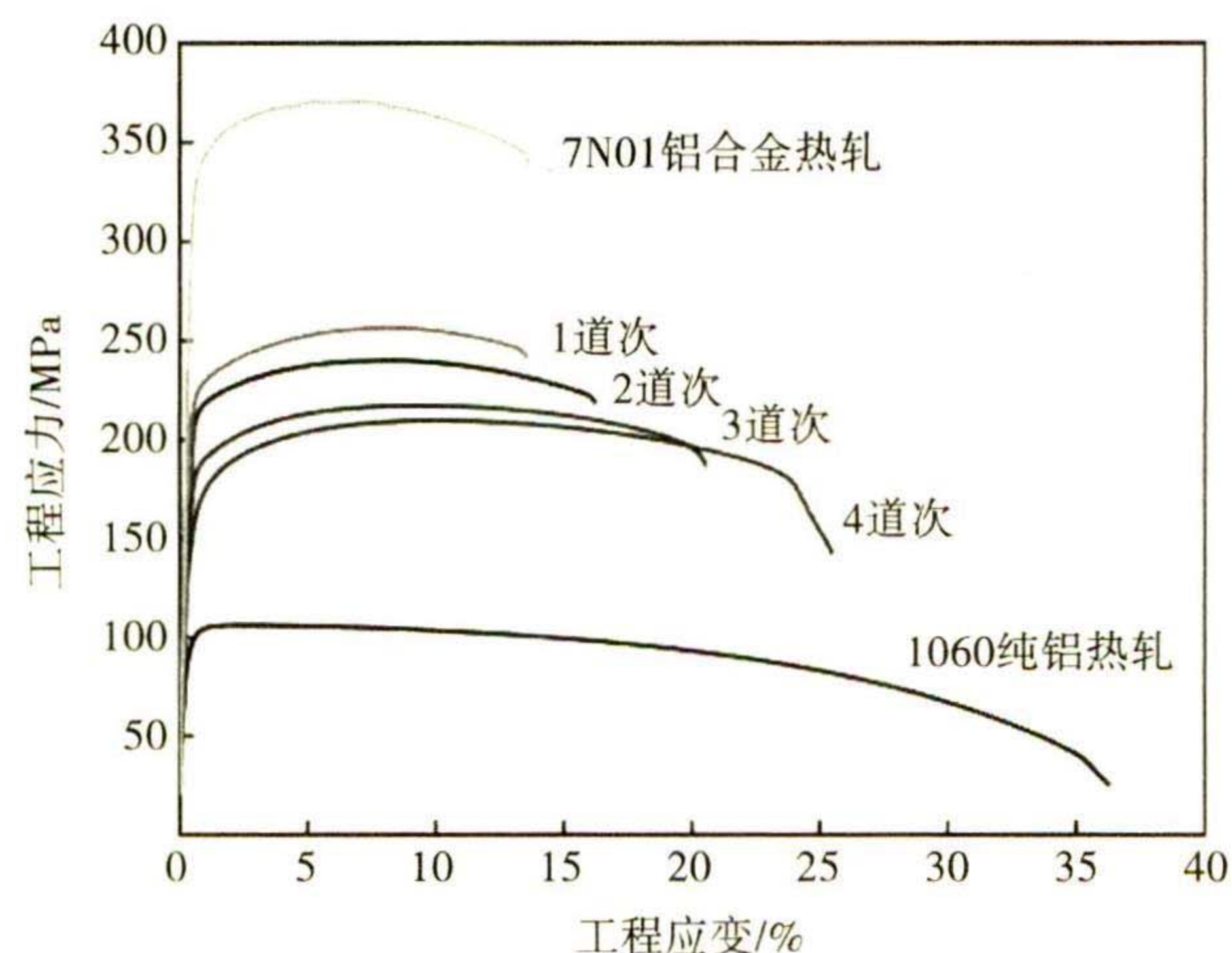


图6 复合板的工程应力-应变曲线图

Fig. 6 Engineering stress-strain curves of specimens with various ARB cycles

2.4 断口形貌

图 7 为经过 2 道次和 4 道次叠轧复合板材拉伸断口形貌。由图 7a、7b 可以看出,2 道次叠轧后的复合板的拉伸断口会在界面处分层形成缝隙,而 4 道次叠轧后的复合板界面未出现明显的分层现象。这说明 4 道次叠轧后的复合板界面的结合能力优于 2 道次叠轧复合板。此外,在 1060 纯铝层可以明显观察到大量的韧窝,且 4 道次叠轧后的韧窝数量比 2 道次叠轧后的更多,尺寸更大更深。7N01 铝合金层的断口形貌均较为平整。图 7c 和 7d 分别为更高倍数下 2 道次和 4 道次叠轧后 7N01 铝合金层的断口形貌图。7N01 铝合金层存在许多均匀小而浅的韧窝,4 道次叠轧后韧窝的数量比 2 道次的有所减少,

尺寸更小更浅。有研究表明^[19]: Al/Al-Zn-Mg-Cu 合金叠轧复合板在拉伸过程中, 纯铝层对塑性有更大的贡献。相较于 2 道次叠轧, 4 道次叠轧后 1060 纯

铝层的韧窝变大变深, 表明其具有更好的塑性, 故 4 道次叠轧复合板具有最大的伸长率。

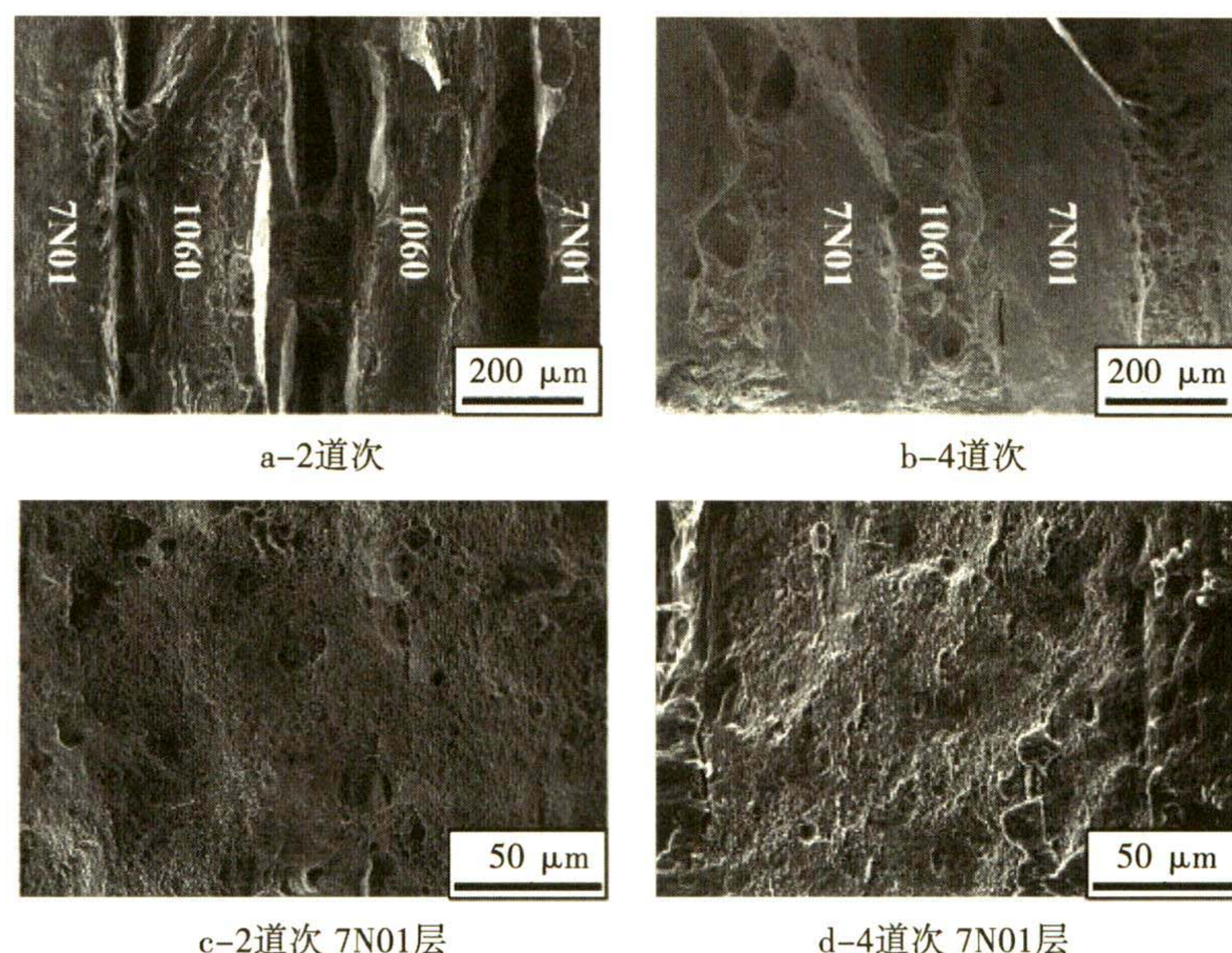


图 7 2 道次和 4 道次叠轧复合板拉伸断口形貌

Fig. 7 Tensile fracture morphologies of laminated composites with 2 and 4 ARB cycles

3 结 论

1) 1060/7N01 铝合金复合板界面处存在不连续分布的 Al、Mg 氧化物。随着叠轧道次的增加, 复合板界面由平直变为局部弯曲。

2) 1060/7N01 铝合金复合板在叠轧过程中, 7N01 铝合金层晶粒细化主要发生在前两个道次, 并且伴随着 $MgZn_2$ 相的析出。1060 纯铝层组织发生动态再结晶, 晶粒尺寸变化不大。

3) 随着叠轧道次的增加, 1060 纯铝层的硬度几

乎保持不变, 7N01 铝合金层的硬度在第 2 道次达到最大, 为 118 HV。复合板的抗拉强度由 1 道次的 239 MPa 提高至 2 道次时的 256 MPa, 随后逐渐降低。

4) 随着叠轧道次增加, 1060 纯铝层的拉伸断口韧窝变大变深, 而 7N01 铝合金层韧窝变小变浅, 表明纯铝层对塑性的贡献更大; 随着叠轧道次的增加, 断口界面处的分层缝隙逐渐消失, 促进了界面的进一步结合。

参考文献:

- [1] WILLIAMS J C, STARKE E A. Progress in structural materials for aerospace systems [J]. Acta Materialia, 2003, 51(19): 5775–5799.
- [2] STARKE E A, STALEY J T. Application of modern aluminum alloys to aircraft [J]. Progress in Aerospace Sciences, 1996, 32(2): 131–172.
- [3] YANG X B, CHEN J H, ZHANG G H, et al. A transmission electron microscopy study of microscopic causes for localized-corrosion morphology variations in the AA7055 Al alloy [J]. Journal of Materials Science & Technology, 2018, 34(10): 1719–1729.
- [4] YU M Y, ZHANG Y S, LI X X, et al. Effect of recrystallization on plasticity, fracture toughness and stress corrosion cracking of a high-alloying Al-Zn-Mg-Cu alloy [J]. Materials Letters, 2020, 275: 128074.
- [5] GHALEHBANDI S M, MALAKI M, GUPTA M. Accumulative roll bonding—a review [J]. Applied Sciences, 2019, 9(17): 3627.

- [6] ALVANDIA H, FARMANESHA K. Microstructural and mechanical properties of nano/ultra-fine structured 7075 aluminum alloy by accumulative roll-bonding process[J]. Procedia Materials Science, 2015, 11: 17 – 23.
- [7] SU L H, LU C, LI H J, et al. Investigation of ultrafine grained AA1050 fabricated by accumulative roll bonding[J]. Materials Science & Engineering A, 2014, 614: 148 – 155.
- [8] 刘友良, 张新明, 李慧中, 等. 工业纯铝的动态再结晶行为[J]. 湖南有色金属, 2006(3): 38 – 41.
- [9] 刘淑云, 安 希(山庸), 崔怀玲. 纯铝动态再结晶的研究[J]. 轻合金加工技术, 1987(4): 36 – 41, 10.
- [10] 丛福官. Zr、Cr 元素对 7N01 铝合金板材组织及性能的影响[J]. 轻合金加工技术, 2017, 45(11): 6.
- [11] ROY S, NATARAJ B R, SUWAS S, et al. Accumulative roll bonding of aluminum alloys 2219/5086 laminates: Microstructural evolution and tensile properties[J]. Materials & Design, 2012, 36(4): 529 – 539.
- [12] XU R R, LIANG N N, ZHUANG L M, et al. Microstructure and mechanical behaviors of Al/Cu laminated composites fabricated by accumulative roll bonding and intermediate annealing [J]. Materials Science & Engineering A, 2022, 832: 142510.
- [13] WEI J, JIANG S, CHEN Z, et al. Increasing strength and ductility of a Mg-9Al alloy by dynamic precipitation assisted grain refinement during multi-directional forging [J]. Materials Science & Engineering A, 2020, 780(4): 139192.
- [14] 方 磊, 赵新奇, 陈江华, 等. Al-Zn-Mg 基合金多级时效不同热处理阶段的析出行为研究[J]. 电子显微学报, 2012, 31(3): 9.
- [15] ZHAO Y H, LIU J Z, TOPPOING T D, et al. Precipitation and aging phenomena in an ultrafine grained Al-Zn alloy by severe plastic deformation [J]. Journal of Alloys and Compounds, 2021, 851: 156931.
- [16] MA X L, HUANG C X, XU W Z, et al. Strain hardening and ductility in a coarse-grain/nanostructure laminate material [J]. Scripta Materialia, 2015, 103: 57 – 60.
- [17] 孙凤蔚, 李赛毅. 叠加层数对工业纯铝板材累积叠轧焊合的影响[J]. 轻合金加工技术, 2010, 38(2): 33 – 36.
- [18] MI J, HARDING R A, WICKINS M, et al. Entrained oxide films in TiAl castings [J]. Intermetallics, 2003, 11(4): 377 – 385.
- [19] EBRAHIMI S, DEHGHANI K, AGHAZADEH J, et al. Investigation on microstructure and mechanical properties of Al/Al-Zn-Mg-Cu laminated composite fabricated by accumulative roll bonding (ARB) process [J]. Materials science & Engineering A, 2018, 718: 311 – 320.

凤铝公司 200 MN 超大型挤压机投产

广东凤铝铝业集团有限公司 200 MN 超大型铝挤压机于 2022 年 4 月 19 日在三水基地投入生产。该挤压机是太原重型机械集团有限公司制造的,是中国也是世界最大的三台超大型铝挤压机之一,另两台 225 MN 的在营口忠旺铝业有限公司,也是太原重型机械集团有限公司设计制造的,其中一台已于 2017 年投产。200 MN 挤压机可以挤压最大截面为 1 000 mm × 400 mm 的型材和最大外径为 700 mm 的管材。

(王祝堂)