

原位钛基复合材料激光焊接过程中 TiB 晶须增强体的微观结构演变

毛建伟, 黄光法, 王立强, 韩远飞, 吕维洁

(上海交通大学 金属基复合材料国家重点实验室, 上海 200240)

摘要: 采用 Nd:YAG 激光成功地对 TiB 晶须和 La₂O₃ 颗粒混杂增强的原位钛基复合材料进行了焊接。利用金相观察、X 射线衍射(XRD)、扫描电镜(SEM)和透射电镜(TEM)等测试方法,研究了激光焊接过程中 TiB 的演变行为,探讨了激光焊接接头中的物相组成、TiB 的分布及形貌特征,及 TiB (或 La₂O₃)和基体之间的界面关系。结果表明, TiB 依然存在于焊接接头中,未发现有害物相的形成;在接头熔化区和靠近焊接热源的热影响区中, TiB 尺寸显著细化,重新分布于β柱状晶晶界形成新颖的网络状结构;而在远离熔合线的热影响区中,由于受焊接热输入影响小,仅有少量 TiB 晶须通过 B 原子的强化扩散而改变了尺寸大小;而靠近母材的 TiB 未有变化,保持着和母材中 TiB 相似的形貌特征。进一步的 TEM 研究证明,增强体和基体之间的界面干净,仍保持良好的界面结合关系,未发现任何不良界面反应的发生,这也表明在激光焊接过程中,增强体和钛基体之间的界面结构是比较稳定的。

关键词: 钛基复合材料; 原位增强; 激光焊; 显微组织; TiB 晶须

中图分类号: TG442; TG115.6; TG146.2*3

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2017)S1-112-06

近年来,不连续增强钛基复合材料(TMCs)因其具有高比强度、持久和冶金稳定性、低密度和高弹性模量,以及优良抗高温、耐蚀性等综合性能,使其成为多领域理想的候选材料^[1-3]。尤其是采用与钛基体具有良好化学稳定性的 TiB 晶须增强的钛基复合材料,具有高比强度、优良抗疲劳和耐磨性能等特点^[4]。而且,微量稀土元素的添加,添加微量稀土元素可细化晶粒,提高钛合金热稳定性^[5,6]。因此,原位(TiB+RE_xO_y)/Ti 钛基复合材料复合材料受到了人们的广泛关注^[4, 6, 7]。

但是, TMCs 的焊接却面临巨大的挑战,其在工程结构方面的广泛应用仍受到增强体特性造成的焊接性不高的限制。TMCs 是由成分、结构和性能相差很大的基体金属和陶瓷增强相复合而成。虽然 TMCs 焊接性在很大程度上依赖于钛基体的连接,但因增强体和基体之间物理、化学性的巨大差异^[8],使其焊接冶金过程变得复杂,焊接工艺参数难以掌握,并会发生界面反应,产生焊接缺陷。在焊接此材料时,除要解决基体结合外,还涉及基体与增强体的结合,甚至是增强体之间的结合。虽然大量焊接方法可用于钛合金焊接,但为尽量降低增强体和基体间的界面反应,固

态焊法是优先选择的工艺方法^[9]。Hirose^[10]和 Antonio^[11]分别研究了钛基复合材料的扩散焊和搅拌摩擦焊的焊接性。

然而, Chernyshov^[8]证明,采用熔化焊方法也可以获得优质的焊接接头。熔化焊工艺是一种灵活、适应性强的方法,可得到具有良好机械性能的焊接接头,这为金属基复合材料焊接件的广泛应用提供了可能^[12]。为获得理想的焊接组织和接头强度,已开展了较多的钛合金激光焊(LBW)和电子束焊(EBW)研究^[13, 14]。焊接 TMCs 时,焊缝区应尽可能减少高温下增强体和基体之间的界面反应而导致的机械性能的下降。基于此,激光焊是最适于 TMCs 焊接的方法,这是因为激光焊具有焊接热变形和热影响区小、热输入量低、焊接速度高等优点^[15-17]。另一方面,增强体 TiB 是熔炼时原位生成的,具有良好的热机械稳定性,而且其和钛基体间没有界面反应^[7]。上述这些特点使得 LBW 容易用于 TMCs 的焊接。但是,迄今为止,几乎未发现有关于激光焊接钛基复合材料焊接性的报道。本实验研究了激光焊接原位钛基复合材料的适应性,探讨了激光焊接接头中 TiB 的形成与演变行为。

收稿日期: 2016-12-15

基金项目: 国家自然科学基金资助(51371114; 51501112); 国家重点基础研究发展计划(“973”计划)(2012CB619600)

作者简介: 毛建伟,男,1977年生,博士,上海交通大学金属基复合材料国家重点实验室,上海 200240,电话: 021-34202641, E-mail: luweijie@sjtu.edu.cn

1 实验方法

1.1 材料

实验用钛基复合材料母材的基体是 α 型钛合金, 厚度为 2.0 mm, 轧制退火态。增强体 TiB 和 La_2O_3 是根据下面反应在熔炼中原位生成的:



原位钛基复合材料由海绵钛、各种中间合金及反应剂 LaB_6 在真空自耗炉中熔炼制备, 具体的熔炼工艺过程见课题组早期的研究成果^[4, 6, 7], 而钛基复合材料的热加工过程见作者较早的研究^[18]。钛基复合材料基体的化学成分见表 1 所示, 增强体 TiB 和 La_2O_3 的加入量分别为 1.26% 和 0.582% (体积分数), 钛基复合材料的 β 转变温度为 1040 °C。

钛基复合材料母材的原始组织, 如图 1 所示, 由多数近似等轴的 α 相 (白色) 和分布于晶界的少量 β 相组成。同时, 在基体中还发现有晶须状物相的存在。根据笔者团队早期研究^[4, 6, 7, 18]结果可知, 这些物相为原位自生成的 TiB 晶须 (TiB_w) 增强体。然而, 金相组织中未观察到增强体 La_2O_3 , 这是因为 La_2O_3 属于纳米级颗粒^[7]。

1.2 激光焊工艺

为使实验结果具有可比性, 将钛基复合材料板材采用线切割加工成焊接试件 (130 mm × 55 mm × 2.0 mm)。焊前, 焊接件先经热碱爆 (80% NaOH + 20% NaNO_3)、酸洗 (20vol% H_2SO_4 , 25vol% HNO_3 + 2vol% HF) 进行母材表面处理, 最后施焊前用丙酮擦拭焊接面。

表 1 钛合金基体化学成分

Table 1 Chemical composition of titanium matrix alloy ($\omega/\%$)

Al	Sn	Zr	Nb	Mo	Si
6.0	3.6	4.1	1.0	0.2	0.34

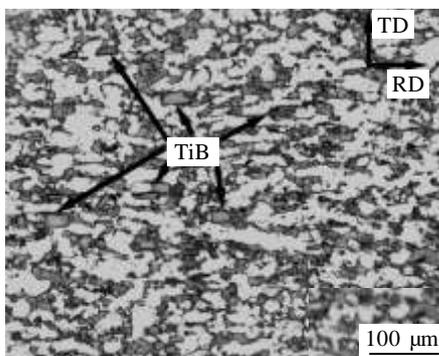


图 1 钛基复合材料母材金相组织

Fig.1 Optical microstructure of base metal

未采用焊丝, 利用 TRUMPF LASMA 1054 型激光焊对钛基复合材料进行对焊接, 焊接方向垂直于试件轧向。激光焊束斑直径为 0.2 mm, 焊接热源为波长为 1.06 mm 连续性 Nd:YAG 激光。在整个焊接过程, 用高纯氩气对焊接区域进行全方位保护, 激光功率为 1.5 kW, 焊接速度为 1.2 m/min, 离焦量为 +2.2 mm。

1.3 分析测试

焊后, 焊接接头金相样品采用传统金相技术制备, 并用 0.5% vol HF 水溶液腐蚀。焊缝和母材组织采用 ZEISS 光学显微镜、JSM-6460 扫描电镜和 PHILIPS CM200 透射电镜进行观察。母材和焊接接头的室温拉伸在 Zwick/Roell Z020 型万能电子试验机上测试, 拉伸速率为 1 mm/min, 试样尺寸为 20 mm × 3.2 mm × 2.0 mm。

2 结果及讨论

2.1 焊缝组织

钛基复合材料激光焊接接头的横截面如图 2 所示。由图 2 可知, 焊接接头为全熔透焊缝, 呈现为典型沙漏形状, 焊缝比较狭窄 (图 2a)。激光焊缝由焊缝区 (WZ)、热影响区 (HAZ) 和母材区 (BM) 组成。相比于母材, 焊缝区组织为典型的柱状晶形貌, 组织细化且致密, 未发现气孔、微裂纹等焊接缺陷的存在。进一步的观察表明, 由于焊接热循环的影响, 激光焊接头的 HAZ 显示出不同的组织特征。靠近 WZ 的热影响区

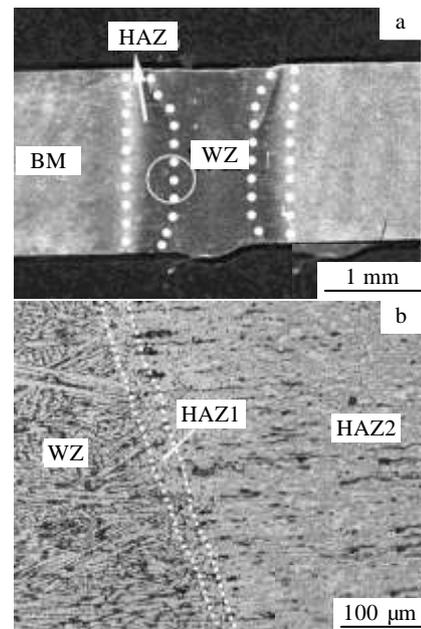


图 2 激光焊接接头焊缝组织

Fig.2 Microstructure of laser welded joint: (a) cross-section and (b) white circle region in Fig.2a

(HAZ 1)，其组织为粗大的等轴晶粒，这归因于钛合金较低的热导率及在 β 转变温度以上温度下的长时间停留^[9]。相比而言，远离 WZ 的热影响区 (HAZ 2)，由于受焊接热循环作用很小，因此该区组织几乎未发生变化，和基体比较相似。

研究还表明，焊缝区 (WZ) 的柱状晶是由靠近熔合线热影响区 (HAZ 1) 的晶粒外延自发向着焊缝中心生长 (图 2b)。这是因为，在熔池凝固过程中，HAZ 1 区部分熔化的晶粒为柱状晶的形成与生长提供非均匀形核的核心^[19]。凝固时，平行于焊接热散热方向的具有择优取向的晶粒容易优先长大，最终，在焊缝区 (WZ) 形成了柱状晶组织。因此，焊接热循环和 HAZ 1 区晶粒尺寸影响着焊缝区 (WZ) 柱状晶的宽度和晶粒大小。

对 TMCs 母材和激光焊接头进行了 XRD 物相分析，如图 3 所示。由图 3 可知，钛基复合材料焊接接头由 α' -Ti、TiB 和 La_2O_3 3 种物相组成。对比两个衍射图谱，接头中的物相组成和母材比较相似，二者没有本质的区别，唯一的区别是接头中的 α' -Ti 相替代了母材中的 α -Ti 相，这和激光焊接快速凝固过程有关。XRD 衍射分析结果证明，增强体 TiB 和 La_2O_3 依然存在与接头中，而且在激光焊过程中并未发现有有害界面反应的发生。

进一步研究表明，激光焊接头从焊缝区 (WZ) 到母材区 (BM) 存在过渡区域组织，如图 2b 和图 4 所示。由图 4 可知，在远离熔合线的热影响区 (HAZ 2)，初生 α 相出现分解现象，其分解程度随着远离 WZ 而逐渐降低。另外，距焊接熔池近的热影响区 (HAZ 1)，其组织由 α' 马氏体、针状 α 相和初生 α 相组成 (图 4b 和图 4c)。而且，HAZ 1 越靠近焊缝区 (WZ) 中心位置， α' 马氏体的数量越多。这和焊接接头从高于 β 转变温度的温度下快速凝固冷却有关。当熔池凝固温度低于 β 转变温度时，在熔池随后的快速冷却过程中，

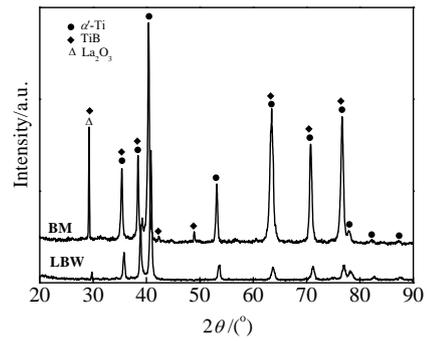


图 3 母材和焊接接头 XRD 图谱

Fig.3 XRD patterns of BM and LBW joint

溶质原子来不及通过扩散形成稳定的 α 相，而是通过无扩散共格切变机制转变为过饱和固溶体 α' 马氏体 ($\beta \rightarrow \alpha'$)。由于晶粒组织比较细小，在接头 WZ 和 HAZ 1 区的金相组织中并不能清楚观察到针状 α' 马氏体 (图 2b)。SEM 研究表明，WZ 和 HAZ 1 区组织完全由 α' 马氏体组成，大量 α' 马氏体相互缠结形成网篮状组织^[14]。马氏体相的尺寸比较细小，而且激光焊焊接时，焊接速度快，冷却速度很快，马氏体的长度也有所增加。TEM 分析也进一步证明，WZ 和 HAZ 1 区中的针状相即为通过无扩散机制形成的六方 α' 马氏体 (图 5a)，这和图 3 的研究结果一致。而且，焊缝中的增强体 La_2O_3 依然和基体保持良好的结合关系，界面比较干净，在二者之间并未发现不良界面化合物的存在 (图 5c)。

2.2 焊缝 TiB 演变机制

研究中还发现，一些黑色物相分布在 WZ 和 HAZ 1 区 β 柱状晶晶界上，其尺寸比较细小，形成网络状组织结构，如图 2b 所示。为进一步研究柱状晶晶界上物相，进行了 SEM 观察分析，也证实这种现象的存在，在柱状晶晶界上分布着许多细长针状白色物相，或团簇聚集，如图 6 所示。

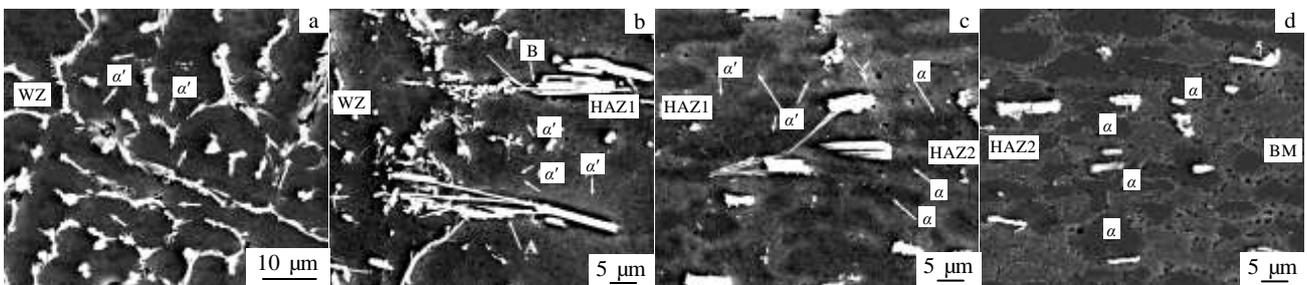


图 4 焊接接头焊缝各区域的组织特征

Fig.4 SEM images of welded joints: (a) WZ, (b) WZ-HAZ 1, (c) HAZ 1-HAZ 2, and (d) HAZ 2-BM

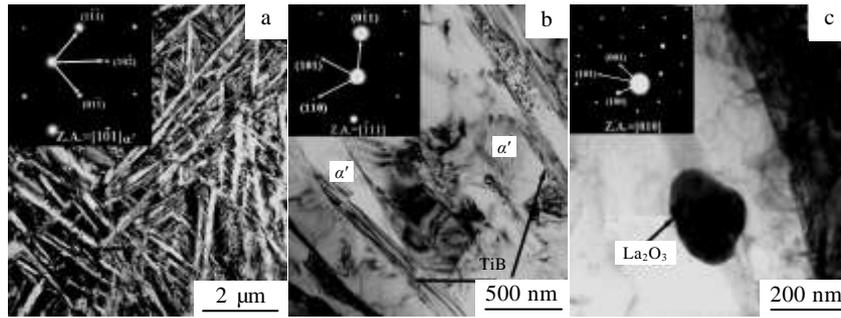


图 5 接头焊缝 TEM 组织照片

Fig.5 TEM images of WZ: (a) α' martensite, (b) TiB, and (c) La_2O_3

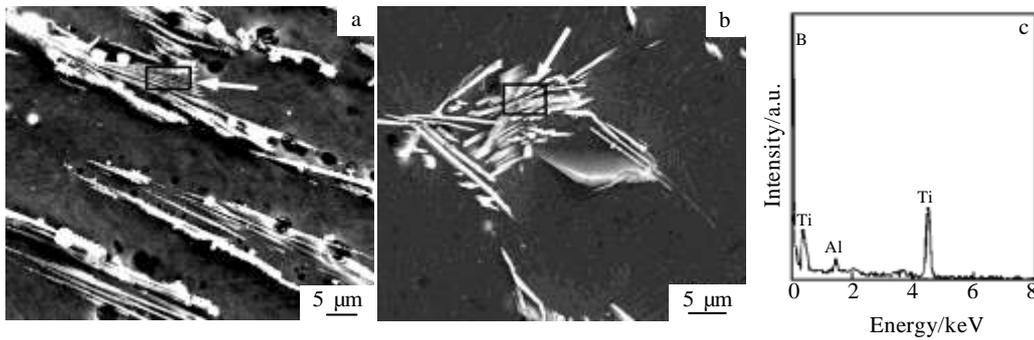


图 6 焊接接头中 WZ 和 HAZ 1 区组织形貌像及选区 EDS 分析

Fig.6 High magnification SEM images of WZ (a) and HAZ 1 (b) and EDS for rectangle areas of Fig.6a and Fig.6b (c)

根据 TMCs 焊缝凝固结晶过程，如图 7 所示，这些白色物相是尺寸显著细化的增强体 TiB 晶须。同时，对晶界上白色物相进行了 EDS 分析，其含有 B、Ti、Al 3 种元素（图 6c）。应该指出，EDS 图谱中的 Al 衍射峰是钛基复合材料基体中的合金元素 Al。结合图 5b 研究结果，由此可以判定，焊缝柱状晶晶界上的物相是增强体 TiB 晶须，这和早期的研究结果^[18, 19]一致。

研究表明，激光焊对增强体 TiB 晶须的分布和尺寸起着显著的作用影响。如上文所述，在激光焊接钛基复合材料时，增强体 TiB_w 依然保留在接头焊缝中。和基体组织相比，在 WZ 和 HAZ 1 区中， TiB_w 重新分布在 β 柱状晶晶界上，其尺寸显著得到细

化，并有一定的团簇现象。在 WZ 和 HAZ 1 中， TiB_w 的长径比在 20~20，远高于基体中的（4~5）（图 1）。SEM 观察证实，细化的 TiB_w 呈现为针状相，在晶界上形成网络状组织结构（图 4 和图 6）。值得注意的时，在 HAZ 1 中， TiB_w 似从单一大尺寸 TiB 晶须上分裂成几部分，变得比较细长（图 4b），这现象也能证明焊缝中 TiB 的演变是由于焊接循环作用而引起的。相比而言，在远离焊接热源的 HAZ 2 区中， TiB_w 几乎未发现有明显的变化，仅有少量 TiB_w 因为焊接热循环的作用而通过 B 原子的强化扩散细化了尺寸或者部分分解（图 4c）。TEM 观察进一步证明焊缝中 TiB_w 和 La_2O_3 增强体在激光焊过程依旧和基体保持着良好的界面结合关系，并未发现不良界面反应物或者微裂纹的存在（图 5b 和图 5c）。

激光焊热源具有高的能量密度，其温度远高于 TiB_w 的熔点（2200 °C）^[20]，在激光焊接过程中，焊缝中的 TiB 将完全重熔在熔池液体中。当熔池开始凝固结晶时，因为 B 原子在钛中的固溶度很小（<0.02%，质量分数）^[21]，含有 B 原子的液相钛在快速凝固时会导致过饱和固溶体的形成。本研究中，B 元素的含量（0.3%，质量分数）低于 Ti-B 二元合金的共晶点，根

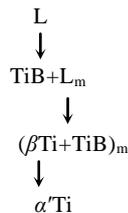


图 7 TiB/Ti 复合材料焊接接头凝固过程

Fig. 7 Solidification of welded joint for TiB/Ti composites

据 Ti-B 二元相图^[21], 因此焊缝在开始凝固时首先析出 β 相。一旦 β 相形成, 液相线前沿富集的溶质原子将导致形成连续过冷度, TiB 也在随后的过饱和固溶体快速凝固中析出。另一方面, TiB_w 和钛具有良好的晶体位相关系^[4], 因此, 已形成的 β -Ti/ β -Ti 界面可为 TiB 的析出提供良好的优先能量形核核心^[22], 这促进了大量 TiB 形核核心的形成。同时, 激光焊缝的快速冷却也能降低 TiB 的长大速率。这两方面的综合作用使得焊缝中 TiB_w 显著得到细化, 并在 β 晶界上形成网络状组织结构。

3 结 论

1) 原位钛基复合材料(TiB+La₂O₃)/Ti 组织由大量等轴 α 相和少量 β 相组成。原位增强体 TiB_w 较均匀地分布在基体中。

2) 2.0 mm 厚原位钛基复合材料板材成功用激光焊工艺焊接连接, 接头焊缝组织均匀, 未发现有焊接缺陷存在, 焊接质量良好。

3) 在接头焊缝区(WZ), 形成细小的柱状晶组织, 而在靠近焊缝中心的热影响区(HAZ 1) 形成粗大的等轴晶。上述两区的组织由细小的 α' 马氏体组成, 而远离焊缝中心的热影响区(HAZ 2) 组织则由大量初生 α 相合少量 α' 马氏体组成。

4) 原位增强体 TiB_w 和 La₂O₃ 依然保留在接头焊缝中, 未发现有不良界面反应的存在。在 WZ 和 HAZ 1 区中, TiB_w 尺寸显著得到细化, 重新分布在柱状晶晶界上形成网络状组织结构, 在 HAZ 2 区中, TiB_w 的分布更加均匀。

参考文献 References

- [1] Banerjee R, Collins P C, Fraser H L. *Advanced Engineering Materials* [J], 2002, 4(11): 847
- [2] Godfrey T M T, Goodwin P S, Ward-Close C M. *Advanced Engineering Materials* [J], 2000, 2(3): 85
- [3] Johnson W S, Miller J L, Mirdamadi M. *Materials Science Engineering A* [J], 1995, 200: 78
- [4] Lu W J, Zhang D, Zhang X N *et al. Scripta Materialia* [J], 2001, 44: 1069
- [5] Fan Z, Miodownik A P, Chandrasekaran L *et al. Journal of Materials Science* [J], 1995, 30: 1653
- [6] Yang Z F, Lu W J, Qin J N *et al. Journal of Alloys and Compounds* [J], 2006, 425(1-2): 379
- [7] Geng K, Lu W J, Zhang D. *Materials Science and Engineering A* [J], 2003, 360(1-2): 176
- [8] Chernyshov G G, Panichenko S A, Chernyshova T A. *Welding of International* [J], 2003, 17 (6): 487
- [9] Short A B. *Materials Science and Technology* [J], 2009, 25(3): 309
- [10] Hirose A, Kotoh M, Fukumoto S *et al. Materials Science and Technology* [J], 1992, 8(9): 811
- [11] Antonio A M D S, Axel M, Jorge F D S *et al. Composites Science and Technology* [J], 2004, 64: 1495
- [12] Chernyshov G G, Rybachuk A M, Chernyshova T A *et al. Weld International* [J], 2002, 16: 312
- [13] Cao X, Jahazi M. *Optics and Lasers in Engineering* [J], 2009, 47: 1231
- [14] Meshram S D, Mohandas T. *Materials & Design* [J], 2010, 31: 2245
- [15] Liu H, Nakata K, Yamamoto N *et al. Science and Technology Welding and Joining* [J], 2011, 16: 581
- [16] Akman E, Demir A, Canel T *et al. Journal of Materials Processing Technology* [J], 2009, 209: 3705
- [17] Wang G, Huang Y J, Shagiev M *et al. Materials Science and Engineering A* [J], 2012, 541: 33
- [18] Mao J W, Wang M M, Wang L Q *et al. Science and Technology Welding and Joining* [J], 2012, 17(8): 630
- [19] Mao J W, Wang L Q, Lu W J *et al. Materials Transactions* [J], 2013, 54(12): 2245
- [20] Lu W J, Zhang D, Wu R J *et al. Metallurgical and Materials Transactions A* [J], 2002, 33:3055
- [21] Sen I, Tamirisakandala S, Miracle D B. *Acta Materialia* [J], 2007, 55: 4983
- [22] Tamirisakadala S, Bhat R B, Miracle D B *et al. Scripta Materialia* [J], 2005, 53(2): 217

Microstructural Evolutions of In-situ TiB Whisker Reinforcement during Laser Welding TiB/Ti Composites

Mao Jianwei, Huang Guangfa, Wang Liqiang, Han Yuanfei, Lu Weijie

(State Key Laboratory of Metal Matrix Composites, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China)

Abstract: In-situ synthesized titanium matrix composites (TMCs) reinforced with TiB whisker plus La₂O₃ particle were fabricated by the laser beam welding (LBW) process with a Nd:YAG laser source. The evolution behavior of TiB was investigated during laser welding. Optical microscope (OM), X-ray diffractometry (XRD) analysis, scanning electron microscopy (SEM) and Transmission electron microscopy (TEM) were used to analyze the phase, distribution and morphology characteristics of TiB whisker reinforcements in the laser weld seam, and the interface between TiB whiskers (or La₂O₃ particles) and titanium matrix was also discussed. Results show that TiB remains in the weld, and no harmful substances are found. TiB is significantly refined and redistribute at β grain boundaries, a novel network structure forms in the fusion zone and the heat-affected zone near the fusion zone. Relatively, only some TiB whiskers in the heat-affected zone far away from the fusion zone change their sizes through intensified diffusion of boron, and TiB near the base metal exhibits no changes but similar morphological features with that in the base metal. Further TEM examination proves that interfaces between the reinforcements and the titanium matrix are very clean, and TiB maintains good bonding relationship with the matrix. No any interfacial reaction is observed, and it explains that interfacial microstructures between the reinforcements and the matrix are very stable during welding.

Key words: titanium matrix composites; laser beam welding; microstructure; TiB whisker

Corresponding author: Lu Weijie, Ph. D., Professor, State Key Laboratory of Metal Matrix Composites, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, P. R. China, Tel: 0086-21-34202641, E-mail: luweijie@sjtu.edu.cn