



Ti增强镁基复合材料搅拌铸造中颗粒分散行为的研究

陈旭栋^{1,2}, 徐军^{3,2*}, 尹翠翠^{2*}, 李新涛², 冯波², 周楠², 王天国¹, 郑开宏², 潘复生^{2,4}

(1. 湖北汽车工业学院材料科学与工程学院, 湖北 十堰 442500; 2. 广东省科学院新材料研究所/广东省金属强韧化技术与应用重点实验室, 广东 广州 510650; 3. 华南理工大学机械与汽车工程学院, 广东 广州 510640; 4. 重庆大学材料科学与工程学院, 重庆 400044)

摘要: 利用材料性能模拟软件JMatPro对Mg-Al系合金进行热力学和相转变的计算, 得到镁合金在半固态和液态不同温度下粘度变化的规律。使用CFD方法对镁合金熔体的固-液混合过程进行了模拟, 计算不同粒径Ti颗粒在不同熔体粘度下在搅拌槽中的分布情况, 以及Ti颗粒分散性的变化趋势, 并通过在树脂中添加不同比例稀释剂调控粘度值, 研究纳米Ti颗粒在不同粘度下的分散行为。结果表明: 随着Ti颗粒粒径减小, 熔体粘度增加, 这有利于Ti颗粒在搅拌槽中各区域分布; 在相同搅拌速度下, 随着搅拌时间增加延长和熔体粘度提高, Ti颗粒团聚行为明显降低, 微观区域明显改善。

关键词: 铸造镁基复合材料; Ti颗粒; 粘度; 固液混合

中图分类号: TB331

文献标志码: A

文章编号: 1673-9981(2023)04-0619-06

引文格式: 陈旭栋, 徐军, 尹翠翠, 等. Ti增强镁基复合材料搅拌铸造中颗粒分散行为的研究[J]. 材料研究与应用, 2023, 17(4): 619-624.

CHEN Xudong, XU Jun, YIN Cuicui, et al. Study of Particle Dispersion Behavior in Stir Casting of Ti Reinforcement Magnesium Matrix Composites[J]. Materials Research and Application, 2023, 17(4): 619-624.

镁合金作为目前世界上能广泛应用的轻量化工业化金属材料, 其具有优良的导电导热性能和较高的比强度、比刚度^[1]。然而, 由于其较低的延展性、有限的绝对强度和偏低的弹性模量, 使得镁合金的应用受到限制^[2]。镁基复合材料具有高比刚度、比强度、良好的耐磨性等优点, 成为轻质高强金属基复合材料研发的新热点^[3]。

镁基复合材料常用的增强体主要有陶瓷增强体和金属增强体^[4]。陶瓷颗粒(SiC^[5]、WC^[6]等)可显著增强镁合金的弹性模量和强度, 但随着强度的提高, 塑性和延展性降低, 限制了其发展和应用^[7]。与陶瓷颗粒增强体相比, 金属颗粒具有很好的塑性变形能力, 有效提高增强体与镁熔液的润湿性, 获得良好的界面结合强度及缺陷较少的致密组织^[8]。Ti和Mg都具有相同的密排六方结构, 可有效减少增强颗粒与镁合金基体之间的应力^[9]。Ti的弹性模量(约110 GPa)

几乎是Mg或Mg合金的2.5倍, 有利于提高复合材料的弹性模量^[10]。此外, Ti几乎不与Mg反应, 无法形成硬的或不变形的金属间化合物^[11], 因此被认为是镁基复合材料的理想增强元素之一。

目前, 金属基镁基复合材料制备方法主要有喷射沉积法、搅拌铸造法、粉末冶金法等^[12]。在众多工艺中, 搅拌铸造法制作成本低、工艺流程短, 适合规模化制备^[13]。然而, 通过搅拌铸造工艺制备的金属Ti颗粒增强镁基复合材料, 由于金属颗粒与基体的密度差异较大, 金属颗粒沉降速度过快, 加之凝固过程中的颗粒推移效应, 导致铸锭中存在明显的金属颗粒沉底和在晶界偏聚现象, 难以获得增强颗粒均匀分布的镁基复合材料铸锭。搅拌铸造过程中颗粒的运动受到金属熔体的粘度、搅拌时间、平流和湍流产生的流体动力阻力等的影响, 这些都与金属熔体的物理性质密切相关^[14]。Tao等^[15]通过数值模拟分析熔体中颗粒分

收稿日期: 2023-07-18

基金项目: 国家重点研发计划青年科学家项目(2022YFB3708400); 广东省基础与应用基础研究重大项目(2020B0301030006); 广东省科学院建设国内一流研究机构行动专项资金项目(2020GDASYL-20200101001); 国家自然科学基金项目(52006041)

作者简介: 陈旭栋, 硕士研究生, 研究方向为镁基复合材料, Email: Tiamocxd@126.com。

通信作者: 徐军, 博士, 工程师, 研究方向为镁基复合材料, E-mail: xujun5@126.com;

尹翠翠, 博士, 高工, 研究方向为多相流, 颗粒流, 多孔介质流动, E-mail: yincuicui@gdinm.com。

散过程,发现铝液中的颗粒在 $400 \text{ r}\cdot\text{min}^{-1}$ 的适度搅拌速率下实现了相对均匀的分散。毛安南^[16]使用 Fluent 软件对不同搅拌器在铝液中形成的速度场进行数值模拟并发现,双极螺旋单桨形成的速度场中有轴向漩涡和径向循环,带动更大范围的熔体运动,利于颗粒分散。目前对金属颗粒增强铝基复合材料搅拌铸造熔体模拟的研究很多,而对于镁基复合材料的报道较少。与铝熔体相比,镁熔体密度较低、化学活性较高,高温下其粘度更低。这意味着在搅拌铸造过程中镁合金中的颗粒运动和分布将不同于铝合金中的颗粒运动和分布。镁合金熔体的温度处于液相线和固相线之间时,熔体中会出现体积分数为 30% 的 α -Mg 固体相,为半固态区^[17]。半固态熔体粘度较大,有利于抑制 Ti 颗粒的沉降,以及固态相与团聚 Ti 颗粒的机械碰撞有利于 Ti 颗粒在熔体中的分散性。熔体搅拌温度较低时固相体积分数升高,导致熔体表面发生凝固而阻碍搅拌;当熔体搅拌温度较高时,会使熔体氧化并引入气孔和夹杂。因此,有必要建立镁合金熔体和强化颗粒分布的关系,模拟搅拌铸造过程中颗粒的运动和分布。

本文通过 JMaPro 软件计算 Mg-Al 系镁合金熔体粘度随温度的变化趋势,模拟镁合金熔体的粘度变化,采用流体动力学仿真软件模拟 Ti 颗粒在镁合金熔体中分散行为。同时,使用树脂模拟镁合金熔体粘度,对 Ti 颗粒在镁合金熔体中的分散性进行微观表征,获得粘度、搅拌时间、粒径大小对 Ti 颗粒在镁合金熔体中分散的影响规律,为搅拌铸造制备

Ti 颗粒镁基复合材料提供理论指导。

1 复合材料数值模拟

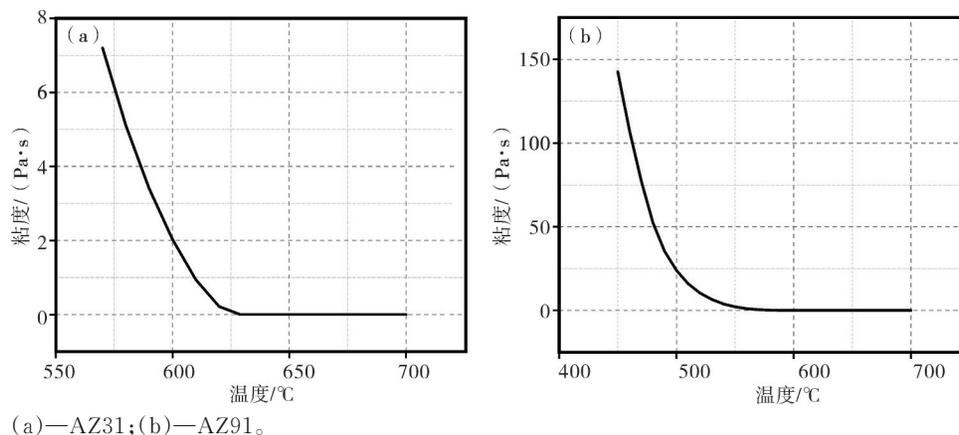
采用商业应用最广泛的 Mg-Al 系合金 AZ31 和 AZ91 为研究对象,成分列于表 1。

表 1 AZ31 和 AZ91 化学成分

Table 1 Chemical composition of AZ31 and AZ91 Mg alloys

合金	$w/\%$			
	Al	Zn	Mn	Mg
AZ31	3.08	0.98	0.33	余量
AZ91	9.03	0.95	0.35	余量

运用 JMaPro 软件计算 AZ31 和 AZ91 在不同温度下的粘度,计算结果如图 1 所示。从图 1 可见:AZ31 镁合金的液相线温度约为 630°C 、固相线温度约为 550°C ,搅拌铸造制备 Ti 颗粒镁基复合材料实验中常用的搅拌温度区间为 $590\text{—}680^\circ\text{C}$ ^[18];AZ91 镁合金的液相线温度为 595°C 、固相线温度约为 470°C ,搅拌铸造制备 Ti 颗粒镁基复合材料实验中常用的搅拌温度区间为 $570\text{—}680^\circ\text{C}$ ^[19];在搅拌温度区内,两种合金熔体的粘度值在 $1\times 10^{-3}\text{—}3\times 10^{-1} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ 之间变化。表明,高效的搅拌过程对于搅拌铸造中控制颗粒分布至关重要,细小的 Ti 颗粒加入熔体中会产生聚集现象,颗粒通过搅拌输送到液体流动中相对停滞的区域,发生颗粒的大幅度聚集,导致铸锭不同区域 Ti 颗粒分布不均匀。



(a)—AZ31;(b)—AZ91。

图 1 AZ31 和 AZ91 镁合金熔体粘度与温度的关系曲线

Figure 1 Curves of melt viscosity as a function of temperature for AZ31 and AZ91 magnesium alloys

使用流体动力学仿真软件(Computational Fluid Dynamics, CFD)对搅拌槽中的固-液混合过程进行了模拟,采用三维欧拉-欧拉多相模型和 RNG $k\text{-}\epsilon$ 湍流模型模拟颗粒流和湍流效应。此外,为了求解搅拌器的旋转运动,采用了移动参考框架(MRF)技术^[20],将

计算区域分为静止区和运动区,运动区是以一定的旋转速度运动。基于格林-高斯节点的方法计算梯度,对于四面体网格更为准确,通过使用增强的壁函数对靠近壁面的区域进行建模。整个计算区域使用了非结构化四面体网格,将固体颗粒初始放置于搅

拌槽底部的一个限定区域内,所有方程的收敛准则为计算残差值低于0.000 1,计算的时间步长设置为0.001 s,每个时间步长需要执行的最大迭代次数为20次。在上述网格分辨率下,采用32个Intel Xeon×10-3 PA·SU内核(2.3 GHz)开展数值模拟,每个算例的计算时间约为72 h^[21]。

图2为不同粘度下不同粒径的Ti颗粒(100、50和10 μm)沿搅拌槽径向上的颗粒浓度分布模拟结果。从图2可见:在较低熔体粘度下,在搅拌槽的上部和底

部存在停滞区且颗粒分布不均匀,这一现象随着熔体粘度的升高得到改善;在相同熔体粘度下,不同粒径Ti颗粒分散情况明显不同,细小粒径的Ti颗粒更有利于改善搅拌槽各区域颗粒分散;当Ti颗粒粒径为10 μm,粘度大于6.4×10⁻³ Pa·s,搅拌槽各区域颗粒均匀分布。Ti颗粒微观区域分散情况及规律需要通过实验进一步验证获得,为探讨更小粒径Ti颗粒的微观区域分散情况,将使用树脂模拟搅拌铸造过程中镁合金熔体粘度变化时纳米Ti颗粒的分散行为。

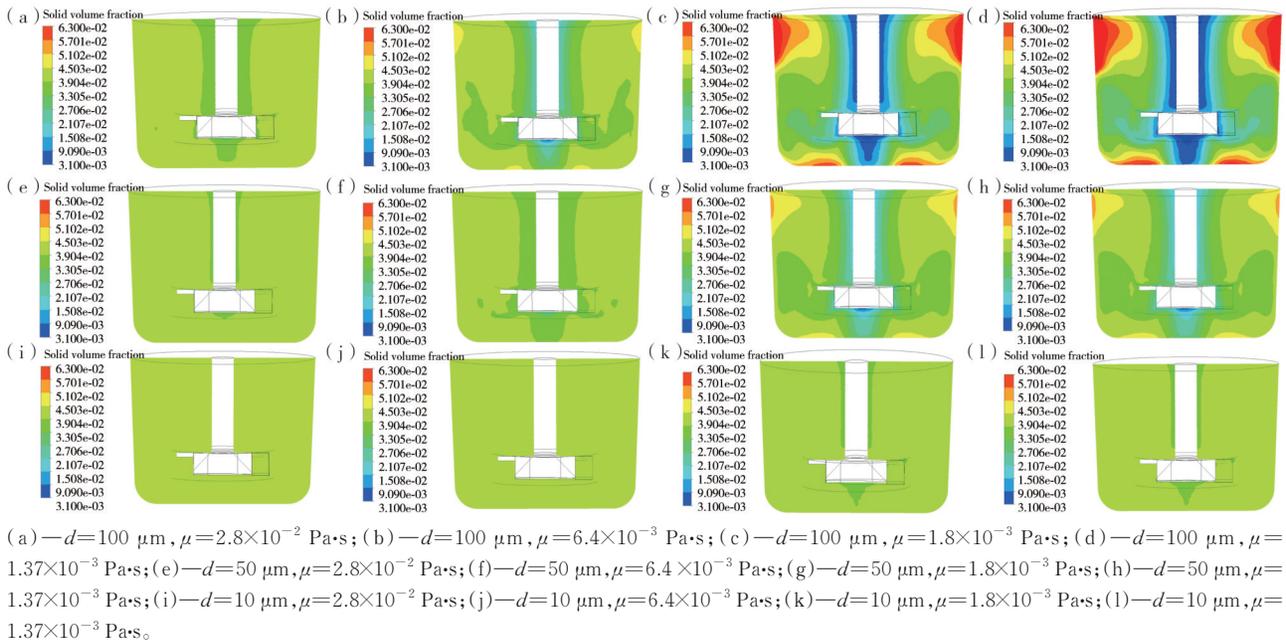


图2 不同熔体粘度下不同粒径Ti颗粒在搅拌槽垂直中心平面上固体体积分数的分布

Figure 2 Distribution of solid volume fractions of Ti particles with different particle sizes in the vertical center plane of the stirring tank at different viscosities of the melt

2 搅拌试验与分析

采用6688不饱和聚酯树脂(以下简称为树脂)为原材料,通过在树脂中添加不同比例稀释剂(苯乙烯)改变粘度,模拟Mg-Al系合金熔体在不同温度下粘度的变化,结果如图3所示。从图3可见,随着在树脂中添加稀释剂含量的增加,合金粘度出现下降。当稀释剂添加量(质量分数)增加至50%时,树脂粘度从 $3 \times 10^{-1} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ 降低至 $2 \times 10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ 。

搅拌实验以纳米Ti颗粒(平均粒径为70 nm)为研究对象,在相同的搅拌速度下,分析其在不同粘度(2×10^{-3} 、 1×10^{-1} 、 2×10^{-1} 和 $3 \times 10^{-1} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ 及搅拌时间(15、30和45 min)下纳米Ti颗粒分散性的变化规律。在搅拌实验结束后,滴入少量固化剂并将样品放置于阴凉通风的位置静置48 h,待其完全凝固后使用扫描电子显微镜(SEM, Zess Gemini SEM300)观测试样的微观结构,分析纳米Ti颗粒在试样中的分散情况。

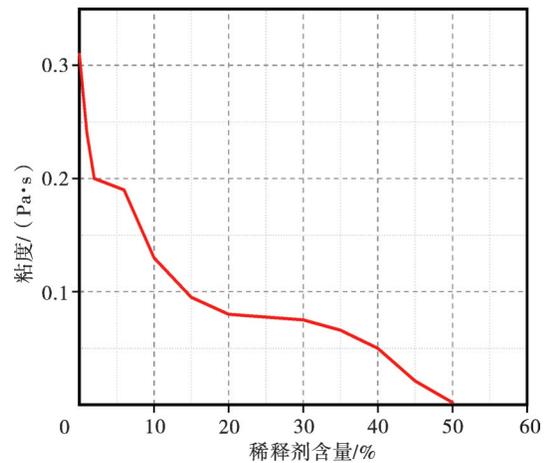


图3 树脂粘度随稀释剂含量的变化

Figure3 Variation of resin viscosity with percent diluent content

图4为不同粘度及不同搅拌时间下Ti颗粒分布情况。从图4可见:在较短的搅拌时间下(15 min),

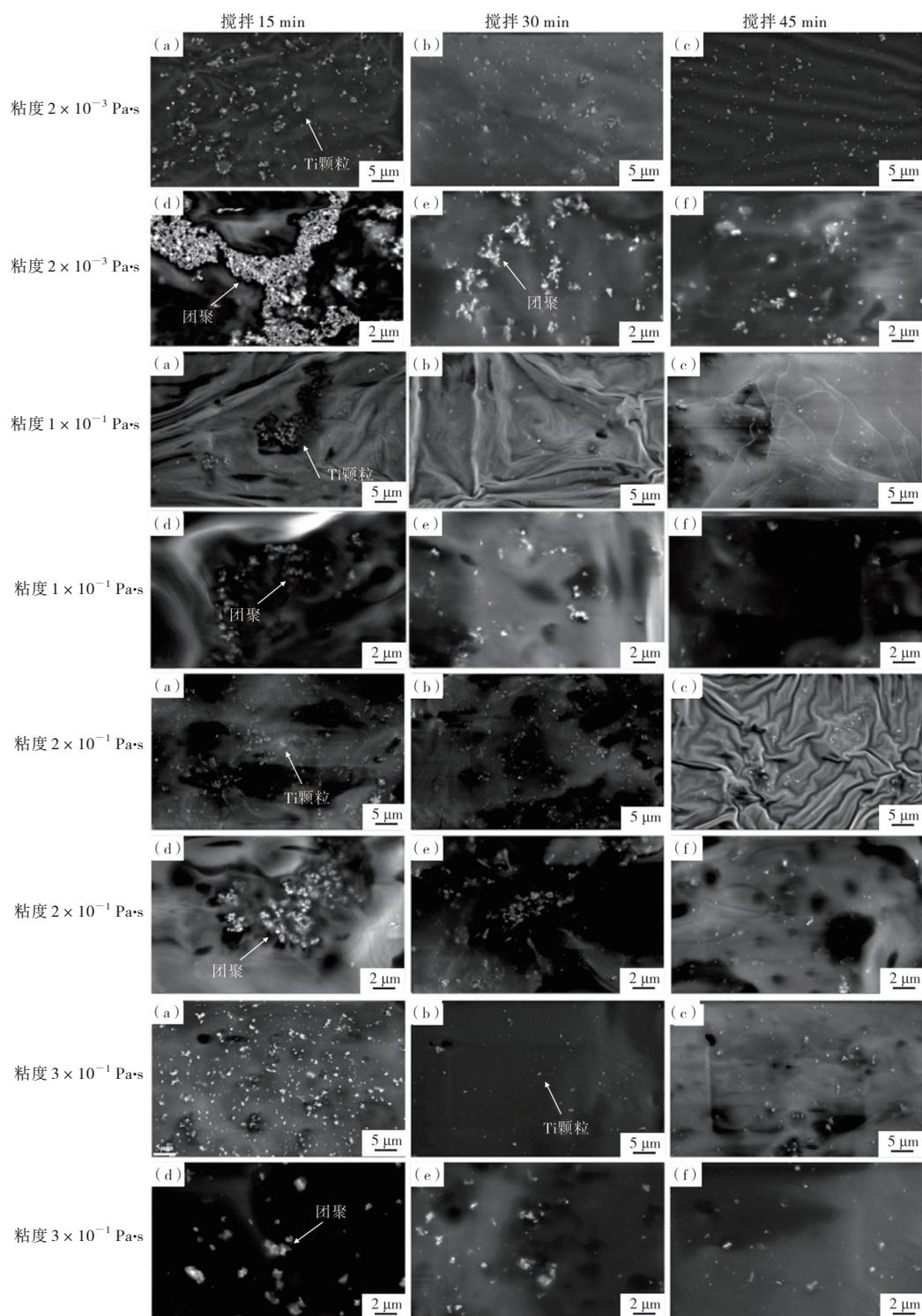


图4 不同粘度及搅拌时间下Ti颗粒SEM图

Figure 4 SEM images of Ti particles with different viscosities and stirring times

熔体粘度为 $2 \times 10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ 时, Ti颗粒存在较大聚集现象, 部分团聚颗粒相互连接呈树枝状; 随着粘度的增加, Ti颗粒分散性得到改善, 大块树枝状颗粒团聚消失, 转变为小区域型颗粒聚集; 随着搅拌时

间增加, 粘度得到提高, Ti颗粒分散性得到进一步改善; 当粘度大于 $1 \times 10^{-1} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ 、搅拌时间为45 min时, Ti颗粒均匀分散在基体中; 在相同粘度和转速下, 随着搅拌时间的增加, 有利于Ti颗粒分散。

3 结论

利用计算机计算和调控树脂粘度,模拟搅拌铸造制备 Ti 颗粒增强镁基复合材料中颗粒的分散行为,研究了机械搅拌过程中不同粒径的 Ti 颗粒在不同搅拌时间及不同粘度下的分布特征。

(1)使用 CFD 方法对搅拌槽中的固-液混合过程进行计算。当熔体粘度较大时,有利于改善 Ti 颗粒在搅拌槽各区域分布的均匀性;当熔体粘度相同时,小粒径的 Ti 颗粒在搅拌槽各区域分布更为均匀。

(2)通过改变树脂粘度模拟纳米 Ti 颗粒在搅拌铸造过程的分散情况。在相同粘度和转速下,随着搅拌时间的不断增加,大块状团聚被打散,变为小区域型颗粒聚集,分散性得到改善;随着粘度的增加, Ti 颗粒分散性进一步得到改善。

参考文献:

- [1] 何阳,袁秋红,罗岚,等. 镁基复合材料研究进展及新思路[J]. 航空材料学报, 2018, 38(4): 26-36.
- [2] 任峰岩,许磊,历长云,等. 粉末冶金法制备颗粒增强镁基复合材料的研究进展[J]. 粉末冶金技术, 2020, 38(1): 66-73.
- [3] DINAHARAN I, ZHANG S, CHEN G, et al. Titanium particulate reinforced AZ31 magnesium matrix composites with improved ductility prepared using friction stir processing [J]. Materials Science and Engineering: A, 2020, 772: 138793.
- [4] 张斌,孙云霞,梁拓,等. 镁基复合材料的强韧化研究进展[J]. 铸造技术, 2023, 44(3): 203-220.
- [5] ZHENG M Y, WU K, YAO C K. Effect of interfacial reaction on mechanical behavior of SiCw/AZ91 magnesium matrix composites [J]. Materials Science and Engineering A-Structural Materials Properties Microstructure and Processing, 2001, 318(1-2): 50-56.
- [6] BANERJEE S, PORIA S, SUTRADHAR G, et al. Corrosion behavior of AZ31-WC nano-composites [J]. Journal of Magnesium and Alloys, 2019, 7(4): 681-695.
- [7] 罗锡才,刘灏霖,康利梅,等. 搅拌摩擦加工方向对 AZ61 镁合金组织和力学性能的影响[J]. 材料研究与应用, 2021(3): 203-209.
- [8] KARAKULAK E. A review: Past, present and future of grain refining of magnesium castings [J]. Journal of Magnesium and Alloys, 2019, 7(3): 355-369.
- [9] 康跃华,黄正华,王顺成,等. 铸造 WE43 镁合金低温至高温准静态拉伸力学行为的研究[J]. 材料研究与应用, 2019(2):96-101.
- [10] SONG J, CHEN J, XIONG X, et al. Research advances of magnesium and magnesium alloys worldwide in 2021 [J]. Journal of Magnesium and Alloys, 2022, 10(4): 863-898.
- [11] YANG H, CHEN X, HUANG G, et al. Microstructures and mechanical properties of titanium-reinforced magnesium matrix composites: Review and perspective [J]. Journal of Magnesium and Alloys, 2022, 10(9): 2311-2333.
- [12] KUMAR S S, HIREMATH S S. Microstructure and mechanical behavior of nanoparticles reinforced metal matrix composites—A review [Z]. Dynamics of Machines and Mechanisms, Industrial Research, 2014: 939-944
- [13] KUMAR D, THAKUR L. Influence of hybrid reinforcements on the mechanical properties and morphology of AZ91 magnesium alloy composites synthesized by ultrasonic-assisted stir casting [J]. Materials Today Communications, 2023, 35: 105937.
- [14] EMADI P, ANDILAB B, RAVINDRAN C. Preparation and characterization of AZ91E/Al₂O₃ composites using hybrid mechanical and ultrasonic particle dispersion [J]. Materials Science and Engineering A-Structural Materials Properties Microstructure and Processing, 2021, 819:141505
- [15] TAO C, LI W, DU J, et al. Numerical simulation of stirring casting SiO₂ particle reinforced composites [J]. Special Casting & Nonferrous Alloys, 2016, 36(11): 1182-1186.
- [16] 毛安南,顿亚鹏,林锦明,等. SiC 颗粒增强铝基复合材料搅拌铸造过程数值模拟[J]. 铸造, 2020, 69(3): 228-232.
- [17] 谢耀,康跃华,李新涛,等. 搅拌铸造金属 Ti 颗粒增强 AZ91D 复合材料的组织与力学性能[J]. 铸造, 2021, 70(7): 793-799.
- [18] YE J, CHEN X, LUO H, et al. Effect of interfacial structure on grain refinement and strength of Ti particles reinforced AZ31 composites [J]. Vacuum, 2022, 203:111287.
- [19] TANG B, LI J B, YE J L, et al. Strengthening mechanism and microstructure of deformable Ti particles reinforced AZ91 composite [J]. Acta Metallurgica Sinica(English Letters), 2022, 35(12): 1935-1945.
- [20] OCHIENG A, LEWIS A E. CFD simulation of solids off-bottom suspension and cloud height [J]. Hydrometallurgy, 2006, 82(1): 1-12.
- [21] YIN C C, HE J Z, XIONG Y N, et al. Improved suspension quality and liquid level stability in stirred tanks with Rotor-Stator agitator based on CFD simulation [J]. Particuology, 2023, 82: 64-75.

Study of Particle Dispersion Behavior in Stir Casting of Ti Reinforcement Magnesium Matrix Composites

CHEN Xudong^{1,2}, XU Jun^{3,2*}, YIN Cuicui^{2*}, LI Xintao², FENG Bo², ZHOU Nan², WANG Tianguo¹,
ZHENG Kaihong², PAN Fusheng^{2,4}

(1. School of Materials Science and Engineering, Hubei Automobile Industry College, Shiyan 442500, China; 2. Guangdong Provincial Key Laboratory of Metal Toughening Technology and Application/Institute of New Materials, Guangdong Academy of Sciences, Guangzhou 510650, China; 3. School of Mechanical and Automotive Engineering, South China University of Technology, Guangzhou 510640, China; 4. School of Materials Science and Engineering, Chongqing University, Chongqing 400044, China)

Abstract: The thermodynamic and phase transition of Mg-Al alloys were calculated by the material property simulation software JMatPro to obtain the viscosity variation rule of magnesium alloys at different temperatures in the semi-solid and liquid states. The solid-liquid mixing process in magnesium alloy melt was simulated by the CFD method, and the distribution of Ti particles with different sizes in the stirring tank and the dispersion tendency of Ti particles were calculated under different melt viscosities. The dispersion behavior of Ti nanoparticles at different viscosities was investigated by adding different ratios of diluents in the resin to regulate the viscosity. The results show that the decrease in Ti particle size and the increase in melt viscosity were beneficial to the distribution of Ti particles in each region of the stirred tank. The agglomeration behavior of Ti particles was significantly reduced and the microscopic region was obviously improved with the increase of stirring time and melt viscosity at the same stirring speed.

Keywords: cast magnesium matrix composites; Ti particle; viscosity; solid-liquid mixing

(学术编辑:宋琛)