网络首发时间：2020-05-08 12:14:15
网络首发地址：http://kns.cnki.net/kcms/detail/50.1078.tb.20200506.1215.044.html

材料导报 MATERIALS REPORTS
研究论文
2020,Vol.34,No.6 www.mater-rep.com

压缩量对单晶铜冷压焊接头组织性能的影响

黄 勇[1,2,✉],冉小龙[1],严晓娟[1]

1 兰州理工大学省部共建有色金属先进加工与再利用国家重点实验室，兰州 730050
2 兰州理工大学有色金属合金及加工教育部重点实验室，兰州 730050

为了既实现单晶铜的有效连接,又尽量不损失单晶高纯铜的导电性能,采用冷压焊对单晶铜进行连接,研究了压缩量对接头组织性能的影响规律。结果表明,在单晶铜冷压焊连接过程中,当压缩量较小时,不能形成有效的连接接头。当压缩量达到一定值,便能形成有效的连接接头,沿接头轴向方向的母材区和变形区仍保持单晶结构,但取向发生了改变。随着变形量的增加,接头的连接界面处单晶组织结构破坏,接头处细小的再结晶晶粒数量先增加后减小,由大量取向各异的细小晶粒以及形变带结构组成。连接界面处的晶粒尺寸逐渐减小,接头的抗拉强度先增加后略有减小,接头的导电性良好。

关键词 单晶铜 冷压焊 再结晶 导电性能 抗拉强度
中图分类号:TG 453.4 **文献标识码**:A

Effect of Compression on Microstructure and Properties of Single Crystal Copper Cold Pressure Welding Joints

HUANG Yong[1,2,✉], RAN Xiaolong[1], YAN Xiaojuan[1]

1 State Key Laboratory of Advanced Processing and Recycling of Nonferrous Metals, Ministry of Education, Lanzhou University of Technology, Lanzhou 730050, China
2 Key Laboratory of Nonferrous Metal Alloys and Processing, Ministry of Education, Lanzhou University of Technology, Lanzhou 730050, China

Single crystal copper was connected using cold pressure welding and the influence of compression on the joint microstructure and properties were studied in order to achieve effective connection and not lose the conductivity of single crystal high purity copper as possible. The results showed that an effective joint could not be formed during the cold Pressure Welding joint connection of single crystal copper when the compression was small. Only when the amount of compression reached a critical value, an effective joint could be formed. In the axial direction of joint, the base material region and the deformation region still maintained a single crystal structure, but their grain orientations changed. With the increase of deformation, the single crystal structure at the joint interface was destroyed and the fine recrystallized grains at the joint increased and then decreased. It consisted of a large number of fine grains with different orientations and a deformation band structure. The grain size at the interface was gradually reduced, and the tensile strength of joint was increased and then slightly decreased. The cold pressure welding joints kept good electrical conductivity.

Key words single crystal copper, cold pressure welding, recrystallization, conductivity, tensile strength

0 引言

单晶铜是一种高纯度无氧铜,整根铜棒仅由一个晶粒组成,故不存在晶粒之间产生晶界的问题。晶界会对铜棒通过的信号产生反射和折射,造成信号失真和衰减,因而单晶铜具有极高的信号传输性能,同时其还具有良好的导电、导热及塑性加工性能,在通讯、航天、军工等重要领域受到越来越多的关注[1-2]。因此,在不损失单晶铜优良性能的前提下,实现对单晶铜的有效连接就显得尤为重要。

对于单晶材料,压力焊常被用于其连接。Zhang 等[3]采用瞬态液相扩散焊接 IC10 镍基单晶和 CH3039 高温合金,可以产生有效的连接接头,但焊缝处存在元素偏析和脆性中间相,对接头的性能产生影响。Ma 等[4-5]采用线性摩擦焊焊接单晶镍基高温合金,发现接头具有明显的焊接区和热影响区,并且需要复杂的热处理工艺。由于铜的再结晶温度较低,纯铜(99.999% Cu)的再结晶起始温度只有 120 ℃,需尽量降低焊接过程的热作用,采用上述方法很难实现单晶铜的有效连接。

冷压焊是在室温下完成材料连接,焊接过程不借助热作用,只借助压力使待焊金属产生塑性变形,破坏结合界面的氧化膜和硬化层并使氧化膜及其他杂质排挤出界面,克服界面的不平度,使纯净金属紧密接触,最终实现固态焊接。以往的冷压焊主要针对普通多晶金属材料,对于单晶材料的研究尚未涉及。Unal 和 Altan[6]分析了纯铝冷压焊过程中的焊接强度影响因素,指出工件表面粗糙度对连接强度有重要影响。Mahabunphachai 等[7]在综合分析温度、焊接压力、表面条件等因素影响基础上进行了冷压焊工艺优化,指出通过提高温度或刮擦试样表面可以降低所需的焊接压力。Eizadjou 等[8]发现纯铝冷滚焊的连接强度随温度的降低或材料厚度的减小而增加。Hosseini 等[9]发现温度与材料厚度会影响铜合金冷滚焊的连接强度,并从宏观和微观两方面分析了其机理,另外,氧化膜的影响也应主要关注。Mehr 等[10]通过阳极氧化技术在铝表面人为制造一层 Al_2O_3 氧化膜后进行铝/铜板带冷轧,发现氧化膜的存在明显降低了铝/铜的连接强度。Schmidt 等[11]发现通过电化学处理去除氧化膜的方法,可以在母材发生更小变形量下得到相同连接强度的冷压焊接头。

请扫描二维码访问本文网络展示页面以获取补充信息(Supplementary Information)

为了既实现单晶铜的有效连接,又尽量不损失单晶高纯铜导电性能,本实验采用冷压焊进行了单晶铜连接,分析了压缩量对焊接接头的显微组织和力学、导电性能的影响。这将为推动固相焊在单晶材料连接中的应用提供依据,同时加深了人们对单晶材料固相连接中组织性能转变规律及其机理的认识。

1 实验

试验基材为纯净度为99.999%的热型连铸单晶高纯无氧铜棒材(取向为〈001〉,尺寸为 Φ8 mm)。焊前采用 Φ0.34 mm 钢丝刷对待焊材料表面进行刮刷处理。冷压焊采用 YTD27-100 四柱液压机对工件进行轴向加压,模具如图 1 所示。焊接时保持加载速率一定(v=10 mm·s^{-1}),焊后保证上下模具间留有 1 mm 终焊间隙不变。通过改变伸出长度 l 研究不同压缩量下焊接接头的微观组织、力学性能和导电性能的变化规律。

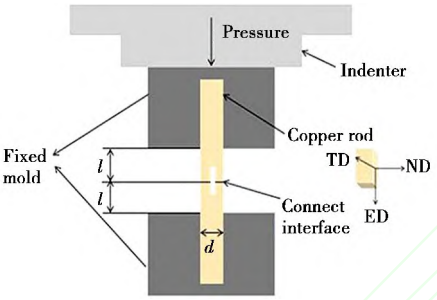

图 1 冷压焊模具示意图
Fig.1 Cold pressure welding mold schematic

焊接接头显微组织分析采用热场发射扫描电子显微镜 Quanta 450+Genesis 6.0,并配以牛津仪器公司的 HKL 软件系统进行电子背散射衍射(EBSD,Electron Back-Scattered Diffraction)分析,衍射倾角为 70°,加速电压为 20 kV,扫描步长为 3.5 μm。试样采用线切割进行截取,取样位置如图 1 所示,试样尺寸为 5 mm×5 mm×2 mm。将试样用 1000#—7000# 砂纸进行打磨+机械抛光,然后采用电解抛光去除表面应力层,电解抛光液成分(体积比)为 $H_2O:H_3PO_4:C_2H_5OH$=2:1:1,抛光电压为 4 V,抛光时间为 7~8 min。EBSD 扫描区域如图 2 所示,其中虚线为终焊间隙边界线,区域 A 位于连接界面上,区域 B 位于终焊间隙内的大变形区域内,而区域 C 位于终焊间隙外的基材区域内。焊接接头的拉伸力学性能采用 WDW-100D 微机控制电子万能材料试验机进行拉伸强度测试,加载力为 10 kN,加载速率为 0.5 mm·min^{-1}。焊接前后单晶铜的导电率采用 Sigma 2008B/C 数字涡流金属电导仪进行测量,测量误差为 0.1% IACS。

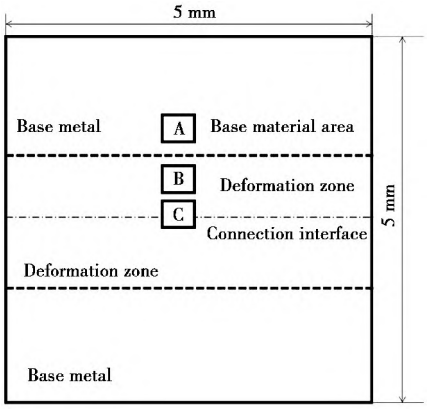

图 2 EBSD 扫描位置示意图
Fig.2 EBSD scanning position diagram

2 结果与分析

2.1 接头显微组织演变

图 3 为不同压缩量下冷压焊接接头的宏观形貌。在冷压焊过程中,附着在基体金属上的氧化物薄层以及刮刷处理过程中产生的加工硬化层在剧烈的塑性变形下率先裂开,暴露出清洁的新鲜金属表面,并随着变形量的增大被逐渐挤出界面。当所有的氧化物薄层和加工硬化层都被挤出连接界面,就最终形成牢固的冷压焊接接头[12]。由于单晶材料的各向异性,冷压焊接接头飞边呈椭圆形,并随着压缩量增加,飞边尺寸逐渐增大。

图 3 冷压焊接接头的宏观形貌(l=6 mm)
Fig.3 Macroscopic morphology of cold-welded joints (l=6 mm)

图 4a 为焊前的基材晶粒取向图,图 4b—d 为 l=6 mm 时冷压焊后轴向上从基材区到连接界面上不同位置的晶粒取向图。可以看出,在冷压焊过程中,由于轴向压缩力和模具内壁对基材剪切力的作用,晶粒取向从原始的〈001〉发生定向转动,基材区域仍然保持单晶结构,而变形区域则出现少量的细小晶粒,在连接界面上更是出现大量取向各异的细小晶粒转化为多晶结构。

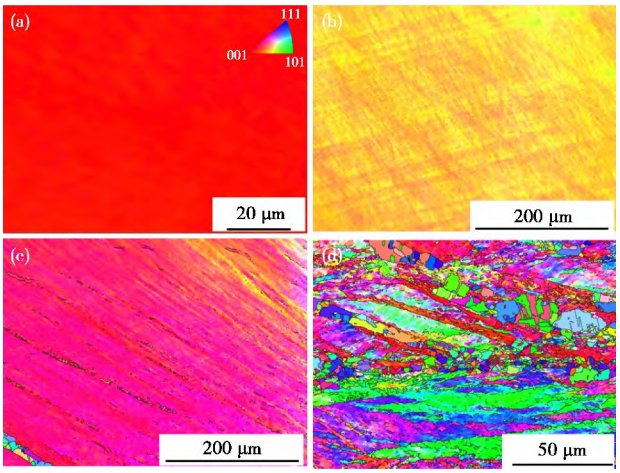

图 4 l=6 mm 时轴线上不同扫描位置的晶粒取向:(a)基材、(b)焊后基材区、(c)焊后变形区、(d)连接界面处(电子版为彩图)
Fig.4 Grain orientation of different scanning positions at the axial axis for l=6 mm: (a) base metal, (b) post-weld base material area, (c) post-weld deformation zone, (d) connection interface

图 5 为接头连接界面上再结晶晶粒分布图,其中黄色代表亚结构,红色为变形晶粒,蓝色为再结晶晶粒。随着伸出长度从 5 mm 增加到 7 mm,连接界面处的再结晶晶粒占比逐

渐增加,但当伸出长度增加到 8 mm 时,界面处的再结晶晶粒占比略有减少。

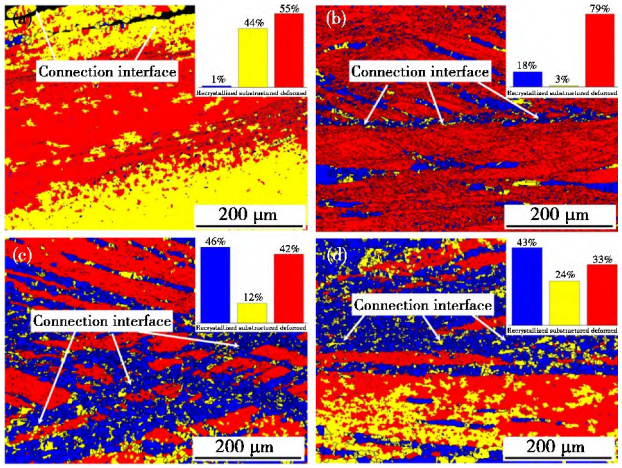

图 5　不同压缩量下接头界面上的再结晶晶粒分布图:(a) l =5 mm、(b) l =6 mm、(c) l =7 mm、(d) l =8 mm(电子版为彩图)

Fig.5　Recrystallization grain distribution diagram at joint interface under different compression: (a) l=5 mm, (b) l=6 mm, (c) l=7 mm, (d) l=8 mm

分析认为,在常温下,单晶铜再结晶的启动是由形核控制的,非连续动态再结晶起源于应变诱发的高角晶界(如变形带或孪晶)处[13]。冷压连接过程中随着变形量增大,变形区内出现大量位错,而连接界面阻碍了位错的运动。当加工硬化层破裂时,在界面处会形成新的锯齿形的大角度晶界,并存在很大的方向梯度。在变形过程中,通过亚晶粒的逐步旋转和很少量晶界的迁移,在大角度晶界处生成新的晶粒。而动态再结晶则起始于这些新原始晶粒的晶界处,并随着冷压焊过程中压缩量的增加,新的再结晶过程将沿着已发生再结晶的边界处进行,以此规律不断进行再结晶[14]。然后,这些小晶粒经过晶界的移动、晶粒的旋转再合并,形成稳定的再结晶组织。动态再结晶过程细化了变形区内的晶粒,而在连接界面处再结晶晶粒则贯穿基材金属两侧,向变形区内延伸,并由于有效应变与连接界面呈大约 45°角,因此再结晶晶粒沿连接界面 45°方向生长,并对实现接头有效连接起到贡献作用[15]。

图 6 为不同压缩量下接头连接界面处晶粒的 EBSD 取向图。当伸出长度 l=5 mm 时,晶粒内部未出现明显的形变特征,只在连接界面处出现少数取向各异的细小晶粒,整个变形区内取向仍具有高度的取向一致性。当伸出长度 l=6 mm 时,连接界面处出现了许多取向各异的细小晶粒,大部分区域由取向一致的形变带所占据。当伸出长度 l=7 mm 时,连接界面处取向各异的细小晶粒的数量进一步增多,而变形区内则只有少量的形变带组织。当伸出长度 l=8 mm 时,连接界面处仍由大量的细小晶粒占据。整体而言,冷压焊接头连接界面处的晶粒尺寸明显小于变形区内的晶粒尺寸。

分析认为,当压缩量较小时(l=5 mm 时),变形过程中单晶整体未出现明显的破碎,只在端部开始有晶粒破碎现象出现,存在极少量的再结晶晶粒组织,不能建立接头的有效连接。随着压缩量增加(l=6 mm 时),变形程度以及参与变形的金属量增加,端面硬化层出现大量破碎,锯齿形的大角度晶界促进再结晶晶粒形核,在连接界面处形核率明显增加并逐步铺满整个界面,向变形区内部扩展,建立起了接头的有效连接。随着压缩量进一步增大(l≥7 mm),大角度晶界数量进一步增多,变形区内再结晶形核率增加,变形区内晶粒更加细化。

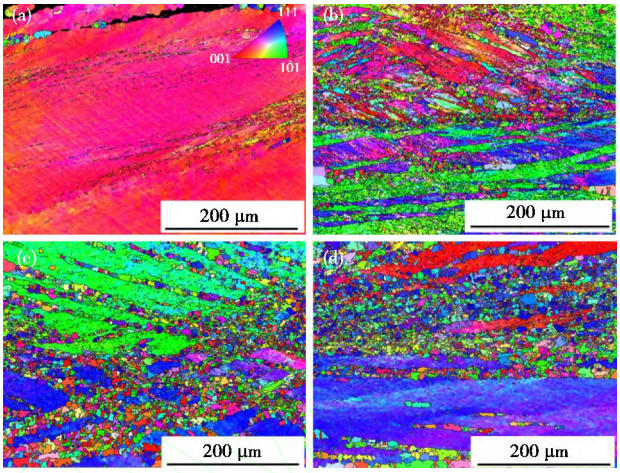

图 6　不同压缩量下接头界面上的晶粒取向:(a) l=5 mm、(b) l=6 mm、(c) l=7 mm、(d) l=8 mm(电子版为彩图)

Fig.6　Grain orientation at the joint interface under different compression: (a) l=5 mm, (b) l=6 mm, (c) l=7 mm, (d) l=8 mm

图 7 为不同压缩量下接头连接界面处的晶粒尺寸统计图,即新形成的不同尺寸大小的晶粒数占晶粒总数的比例,而不包含基材单晶。当 l=5 mm 时,接头处出现少量细小的晶粒,由于压缩量较小,晶粒未大量破碎形成细小的晶粒,晶粒数量较少,细小晶粒的平均晶粒尺寸为 2.659 μm。当 l=6 mm 时,连接界面区域晶粒开始破碎,细小晶粒的数量增多,平均晶粒尺寸为 3.869 μm;当压缩量继续增加时,晶粒逐渐细化,连接界面的平均晶粒尺寸分别为 3.807 μm(l=7 mm)和 3.681μm (l=8 mm)。由此可知,随着压缩量的增加,位错分割机制导致连接界面的晶粒尺寸得到细化。

图 8 为不同压缩量下连接界面处的晶界取向差分布图。由图 8 可以看出,随着压缩量的增加,小角度晶界逐渐向大角度晶界转变。当 l=5 mm 时,由于压力的作用,虽然界面处仍保持单晶结构,但个别地方开始出现微量细小的晶粒,因此主要以小角度晶界为主。当 l=6 mm 时,随着变形量增加,晶粒内部位错大量增殖且相互缠结,形成位错胞,导致小角度晶界大量增加,而大量的位错运动,交割形成亚晶界,亚晶界通过不断的吸收和重组位错,使其取向差逐渐增大为大角度晶界[16-18]。在此过程中,伴随着剪切应力增大,晶界开始出现形变孪晶。当 l=7 mm 时,随着变形量进一步增加,剪切应力增加促使形变孪晶明显增多,取向差为 60°的晶界分布率激增,导致再结晶细小晶粒明显增多,大角度晶界同步明显增加。当 l =8 mm 时,随着变形量继续增加,孪生和滑移两种形变机制竞争形成,导致小角度亚晶界略有增加,大角度晶界及其孪晶亚晶数量维持高位水平。

2.2　接头性能分析

表 1 为不同伸出长度时冷压焊接头的抗拉强度和电导率。当 l=5 mm 时,接头的抗拉强度和电导率远低于基材金属,分别为基材金属的 15.3%和 55.0%,这表明该工艺下未建

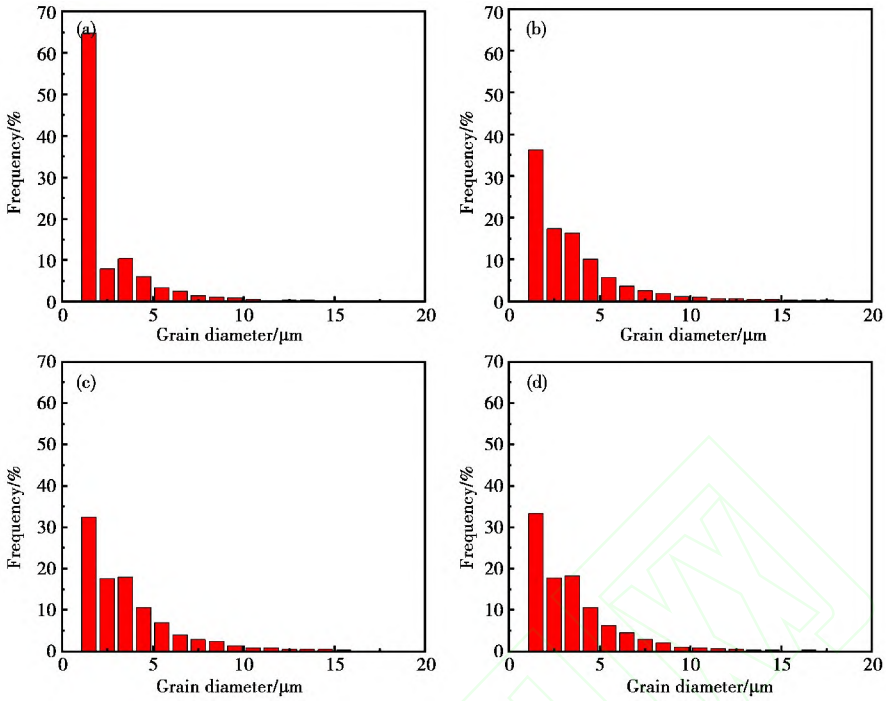

图7 不同压缩量下单晶铜冷压焊接头的晶粒尺寸:(a) l=5 mm、(b) l=6 mm、(c) l=7 mm、(d) l=8 mm

Fig.7 Grain size of single crystal copper cold-welded joint under different compression: (a) l=5 mm, (b) l=6 mm, (c) l=7 mm, (d) l=8 mm

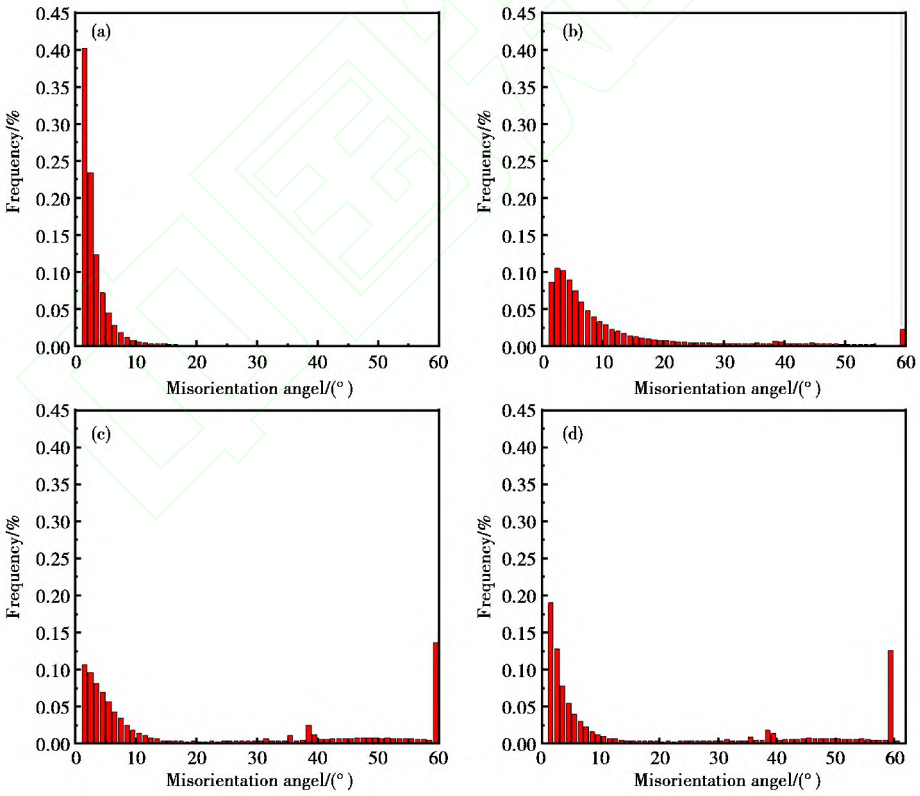

图8 不同变形量下单晶铜冷压焊接头的取向差分布图:(a)l=5 mm、(b)l=6 mm、(c)l=7 mm、(d)l=8 mm

Fig.8 Distribution of orientation difference of cold-welded joints with different deformation of single crystal copper: (a) l=5 mm, (b) l=6 mm, (c) l=7 mm, (d) l=8 mm

立起有效连接。随着变形量继续增加($6\leqslant l\leqslant 8$),接头导电性相差无几,都超过基材金属的99%。这表明,当伸出长度$l\geqslant 6$ mm时,形成了有效连接接头,电导率达到了基材的99%以上。分析认为,冷压焊过程中,随着压缩量逐渐增加,晶粒变形逐渐增加,接头变形区内位错密度、再结晶晶粒数量、晶界总量以及大角度晶界数量都逐渐增加,这些都加剧了晶界对传导电子的散射,使得接头电导率低于基材[19]。但随着压缩量增加,金属中的缺陷和连接界面处的污染物和空洞也逐渐减少,从而使得接头电导率有所增加。对于接头抗拉强度,随着压缩量逐渐增加,其值呈先增大后减小的趋势,但都

低于基材金属的抗拉强度。分析认为,当伸出长度 l 从 6 mm 增加到 7 mm 时, 随着压缩量的增大,接头界面处的再结晶晶粒增多,晶粒细小使得晶界总量增多,接头抗拉强度增大。但当伸出长度 l 从 7 mm 增加到 8 mm 时,由于再结晶率减小,接头的抗拉强度降低。

表 1　冷压焊接头的导电性及抗拉强度

Table 1　conductivity and tensile strength of cold pressure welding joint

Material type	Conductivity/(MS/m)	Tensile strength/MPa
Single crystal copper	55.03	103.7
$l=5$	30.28	15.88
$l=6$	54.61	59.89
$l=7$	54.83	69.23
$l=8$	54.70	62.88

在不同压缩量下,接头的抗拉强度明显低于母材,针对这一反常现象有以下两种解释:(1)由于接头的再结晶晶粒对接头起到软化作用,导致接头的抗拉强度降低[20];(2)由于在冷压焊过程中,变形量较大(≥92.5%),连接过程中界面处组织逐渐被细化至亚微米甚至纳米晶,当连接界面处的孪晶尺寸细化至 20 nm 左右时,材料的屈服强度与晶粒尺寸存在反 Hall-Petch 现象,导致接头的强度下降[21-22]。但究竟是哪一种机制起主导作用,还需要进一步的试验研究。

3　结论

(1)当压缩量足够大(l≥6 mm)时,单晶铜冷压焊可建立有效连接,接头飞边呈椭圆形。连接前期遵循薄膜理论,后期在连接界面上出现大量细小的再结晶晶粒,并贯穿基材两侧,对建立有效连接起到重要作用。

(2)连接界面处晶粒多数为再结晶晶粒组成,取向各异。随着压缩量增加(6 mm≤l≤7 mm),有效连接界面上的再结晶晶粒数量增加,晶粒尺寸增大,晶界由小角度晶界向大角度晶界转变。但当压缩量继续增大(7 mm≤l≤8 mm)时,再结晶晶粒略有减少,晶粒尺寸增大,小角度晶界比例增多。

(3)随着压缩量增加(5 mm≤l≤8 mm),再结晶晶粒数量先增加后略有减小,导致单晶铜冷压焊有效连接接头的抗拉强度先增加后略有减小,而导电率则基本不变,达到基材金属的 99%以上。

参考文献

1　Fukuda Y, Oh-Ishi K, Furukawa M, et al. *Journal of Materials Science*, 2007,42(5),1501.

2　Sun L X, Tao N R, Lu K. *Scripta Materialia*,2015,99,73.

3　Zhang L X, Sun Z, Xue Q, et al. *Materials and Design*,2015,90,949.

4　Ma T J, Chen X, Li W Y, et al. *Materials & Design*,2016,89,85.

5　Ma T, Yan M, Yang X, et al. *Materials & Design*,2015,85,613.

6　Unal A, Altan E. In: 2nd National Welding Symposium, Istanbul, pp. 336.

7　Mahabunphachai S, Koc M, Ni J. In: ASME 2007 International Manufacturing Science and Engineering Conference, Atlanta,2007,pp.227.

8　Eizadjou M, Danesh Manesh H, Janghorban K. *Materials and Design*, 2008,29(4),909.

9　Hosseini S A, Hosseini M, Danesh Manesh H. *Materials & Design*,2011, 32(1),76.

10　Mehr V Y, Toroghinejad M R, Rezaeian A. *Materials and Design*,2014, 53(6),174.

11　Schmidt H C, Rodman D, Grydin O, et al. *Advanced Materials Research*, 2014,966-967,453.

12　Tabata T, Masaki S, Azekura K. *Materials Science and Technology*,1989, 5(4),377.

13　Zhou Q. *Plastic deformation microstructure and control*, Science Press, China,2015(in Chinese).
周清.*塑性变形微观组织及控制*,科学出版社,2015.

14　Wang W W. Ultra-fine grain pure copper high strain rate deformation. Master's Thesis, Nanjing University of Science and Technology, China, 2013(in Chinese).
王稳稳.超细晶纯铜高应变速率变形.硕士学位论文,南京理工大学, 2013.

15　Lilleby A Ø, Grong Hemmer H. *Materials Science & Engineering: A*, 2010,527(6),1351.

16　Iwahashi Y, Horita Z, Nemoto M, et al. *Acta Materialia*,1997,45(11), 4733.

17　Hu J, Lin D L, Wang Y. *Acta Metallurgica Sinica*,2009,45(6),652(in Chinese).
胡静,林栋梁,王燕,等.*金属学报*,2009,45(6),652.

18　Wu S D, An X H, Han W Z, et al. *Acta Metallurgica Sinica*,2010,46 (3),257(in Chinese).
吴世丁,安祥海,韩卫忠,等.*金属学报*,2010,46(3),257.

19　Guo T B, Li Q, Wang C, et al. *Acta Metallurgica Sinica*,2017,53(8), 97(in Chinese).
郭廷彪,李琦,王晨,等.*金属学报*,2017,53(8),97.

20　Zhang Y T, Fu P H, Zhang M. *Hot Working Technology*,2008,37(5), 127(in Chinese).
张御天,付彭怀,张满.*热加工工艺*,2008,37(5),127.

21　Lu L, Chen X, Huang X, et al. *Science*,2009,323(5914),607.

22　Jia S W, Zhang Z, Wang W. *Materials Review A: Review Papers*,2015,29 (12),114(in Chinese).
贾少伟,张郑,王文,等.*材料导报:综述篇*,2015,29(12),114.

(责任编辑　李　敏)

Yong Huang, Ph.D. in Engineering, Professor. Faculty member, department of welding technology and engineering, school of materials science and Engineering. In scientific research, he is mainly engaged in research on joining of functional materials, active welding methods and their theories and welding physics et al. He applied for and obtained 7 national invention patents, published more than 90 papers, and searched more than 70 articles in three major indexes.

黄勇,工学博士,教授,材料科学与工程学院焊接技术与工程系教师。在科研方面,主要从事功能材料连接、活性焊接方法及其理论、焊接物理等领域的研究。申请并获得国家发明专利授权 7 项,发表论文 90 余篇,三大索引检索 70 余篇。