

Cu-Al₂O₃真空愈合界面组织演变及力学性能研究

张宇博^{1,2,3} 高鹏飞^{1,2} 刘嘉鸣^{1,2} 丁程浩^{1,2} 申玉婷^{1,2} 李廷举^{1,2,3}

(1.大连理工大学材料科学与工程学院;2.辽宁省凝固控制与数字化制备技术重点实验室;
3.大连理工大学宁波研究院)

摘 要 传统的 Cu-Al₂O₃ 制备方法存在工艺复杂、难以兼顾大尺寸和颗粒弥散等缺点。利用真空固态愈合法将 Cu-Al₂O₃ 小尺寸复合材料构筑成形,讨论愈合参数对界面组织及性能的影响。结果表明,愈合温度为 970 ℃,保温时间为 120 min,压力为 30 MPa 时,愈合效果最佳。复合材料愈合界面的抗拉强度为 470 MPa,达到原始材料的 96.7%。愈合温度的升高使材料满足了动态再结晶的动力学和热力学条件,晶粒间不均匀的 Al₂O₃ 颗粒引入较高的热变形储能,在 Al₂O₃ 颗粒附近聚积位错形核。热压愈合有效消除了原始界面缺陷,伴随着大规模的界面迁移、动态再结晶及晶粒长大的过程。

关键词 Cu-Al₂O₃;热压愈合;动态再结晶;Al₂O₃

中图分类号 TB331;TF124 **文献标志码** A

DOI:10.15980/j.tzzz.2023.01.001

开放科学(资源服务)标识码(OSID):



Interfacial Microstructure Evolution and Mechanical Properties of Cu-Al₂O₃ during Hot Compression Bonding Process

Zhang Yubo^{1,2,3}, Gao Pengfei^{1,2}, Liu Jiaming^{1,2}, Ding Chenghao^{1,2}, Shen Yuting^{1,2}, Li Tingju^{1,2,3}

[1. School of Materials Science and Engineering, Dalian University of Technology;

2.Key Laboratory of Solidification Control and Digital Preparation Technology(Liaoning Province);

3.Ningbo Institute of Dalian University of Technology]

Abstract: Conventional fabrication of Cu-Al₂O₃ is difficult to balance large size and particle dispersed distribution-with complex technological process. Herein, Cu-Al₂O₃ composite was constructed and formed by hot compression bonding (HCB), and effects of parameters on the interfacial microstructure and properties of the composites were investigated. The results indicate that optimal bonding is achieved at 970 ℃ for 120 min and 30 MPa. The bonding tensile strength of the composites is 470 MPa, reaching 96.7% of the original material. The increase of bonding temperature meets the dynamic and thermodynamic conditions of dynamic recrystallization, where the heterogeneous Al₂O₃ particles between grains introduce a higher thermal deformation energy storage, leading to the aggregated dislocation and nucleation near the interface. HCP effectively eliminates the initial interfacial defects, accompanied by large-scale interfacial migration, dynamic recrystallization, and grain growth.

Key Words: Cu-Al₂O₃, Hot Compression Bonding, Dynamic Recrystallization, Al₂O₃

纳米 Al₂O₃ 强化铜基复合材料中的高密度 Al₂O₃ 颗粒会钉扎位错和阻碍晶界运动,在保持良好导电性和导热性的同时,兼具高强度、热稳定性、抗蠕变性能以及抗氚辐射能力^[1~3]。传统的固态制备纳米 Al₂O₃ 弥散强化铜的方法,如内氧化法、机械合金化法、粉末冶金法等存在工艺复杂、技术难度大、难以制备大尺寸试样等缺点^[4,5],而液态熔铸法虽然可以获得理想尺寸的铸锭,但由于密度差异、润湿性、凝固冷却速度不均匀等问

题,难以实现 Al₂O₃ 颗粒在大尺寸铸锭中均匀弥散分布。因此,获得颗粒弥散的大尺寸复合材料一直是瓶颈问题 and 研究热点。

ZHOU L Y 等^[6]、XIE B J 等^[7] 研究了以钢为代表的构筑坯料在变形连接过程中界面组织的演变规律,提出了金属构筑成形技术,即将多块小尺寸原始材料经过表面清洁与真空封装,高温下施加变形,使界面在固态下充分愈合,以实现高品质均质化大尺寸金属材料的无

收稿日期:2022-05-31

基金项目:国家重点研发计划资助项目(2018YFA0702900);国家自然科学基金资助项目(52171135)

第一作者简介:张宇博,男,1985 年出生,副教授,辽宁大连(116024),E-mail: ybzhang@dlut.edu.cn

引用格式:张宇博,高鹏飞,刘嘉鸣,等. Cu-Al₂O₃ 真空愈合界面组织演变及力学性能研究[J]. 特种铸造及有色合金,2023,43(1):1-6.

ZHANG Y B, GAO P F, LIU J M, et al. Interfacial microstructure evolution and mechanical properties of Cu-Al₂O₃ during hot compression bonding process[J]. Special Casting & Nonferrous Alloys, 2023, 43(1):1-6.

痕构筑成形。与当前广泛应用的爆炸焊、扩散焊等金属固态连接技术相比,该过程温度较高(通常为 $0.6\sim0.8 T_m$),真空度较高($10^{-2}\sim10^{-3}$ Pa),应变速率较低($<0.1\text{ s}^{-1}$),保温时间较长,构筑成形过程与传统的固态连接技术有较大的差异^[8]。该方法目前已成功应用于构筑 14YWT ODS 钢^[6]、316LN 不锈钢^[7]和 IN718 高温合金^[8,9]等多种材料。

构筑成形技术大多集中在钢铁材料中,尚未出现关于颗粒增强的铜基复合材料的研究报告。使用构筑成形的方法制备大尺寸颗粒增强铜基复合材料,可以有效解决颗粒均匀弥散分布和铸锭尺寸难以兼顾的难题。因此,本课题研究 Al_2O_3 弥散强化铜的构筑成形过程,通过热压愈合来实现铜基复合材料的固态愈合,研究温度对界面愈合过程中微观组织和力学性能的影响以及 Al_2O_3 颗粒的作用,旨在为其应用提供参考。

1 试验材料与方法

选取 Al_2O_3 弥散强化铜($\text{Cu-1.1Al}_2\text{O}_3$)为原材料,成分见表 1。将原始材料制成 $\phi 30\text{ mm}\times 28\text{ mm}$ 的试样,表面依次使用 80、200 以及 600 目 SiC 砂纸粗磨至表面平整,清洗后干燥。

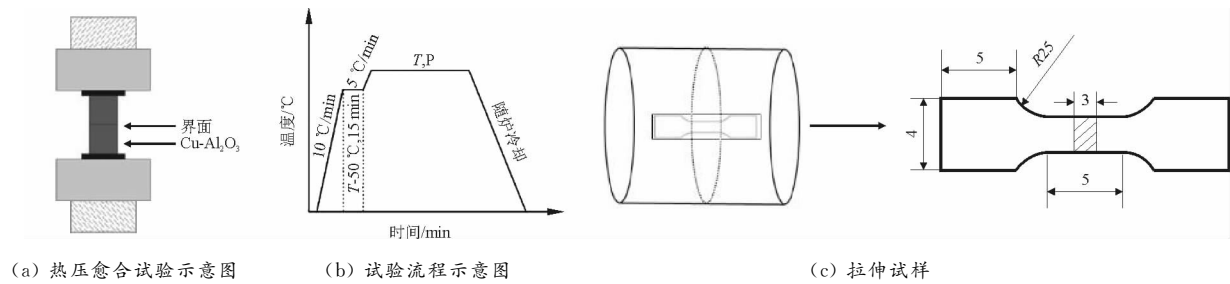


图 1 热压愈合试验、试验流程及拉伸试样

Fig.1 Schematic diagram and flow chart of HCB process and tensile specimen

表 2 热压愈合后材料的高度变形量

Tab.2 The height deformation degree of material after HCB	
温度/℃	变形量/%
930	2.7
950	6.4
970	7.3
990	25.2

2 试验结果与分析

2.1 微观组织形貌演变

图 2 为原始材料以及不同愈合温度下获得试样的界面区域金相图。可以看出,与原始材料相比,不同的试验温度下基体金相显微组织并未产生明显的变化。930 ℃时,界面整体存在较宽的黑色未闭合缝隙,愈合

效果较差,见图 2b 中箭头处。950 ℃时,界面未闭合黑色缝隙宽度减小,未愈合区域占比也明显减小。970 ℃和 990 ℃时,界面组织发生明显变化,黑色缝隙基本消失,愈合效果良好。

图 3 为不同愈合温度下的愈合区域的 SEM 形貌。可以看出,930 ℃时,部分界面呈现锯齿状,存在较长未闭合的缝隙,见图 3a 箭头处;950 ℃时,界面变得更为平直,未发现尺寸较大的缝隙,但愈合区域仍存在孔洞缺陷,见图 3b 箭头处,界面附近可以观察到细小的晶粒;970 ℃时,愈合界面平直,界面附近孔洞数量进一步减少,细小晶粒的数量明显增加,见图 3c;990 ℃时,愈合区域没有明显的缝隙和孔洞,见图 3d。

图 4 为定量测量界面缺陷的总长度的方法。使用

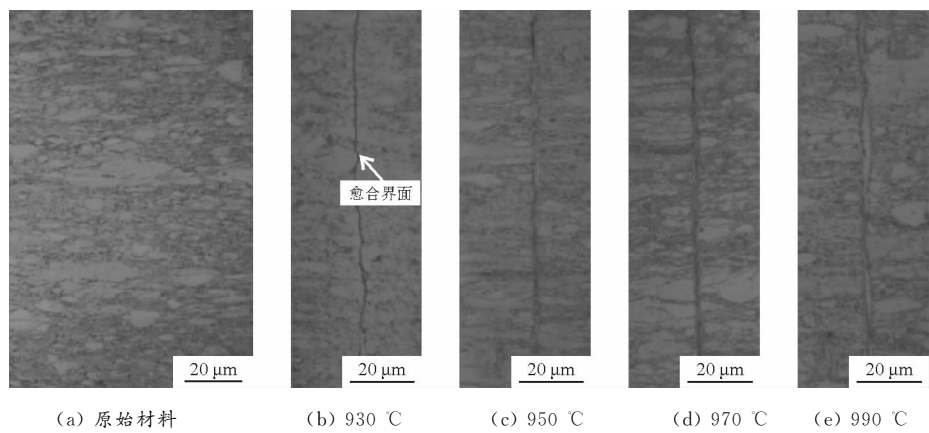


图 2 原始材料及不同温度下愈合区域的微观组织

Fig.2 Microstructure of original specimens and bonding zone at various temperatures

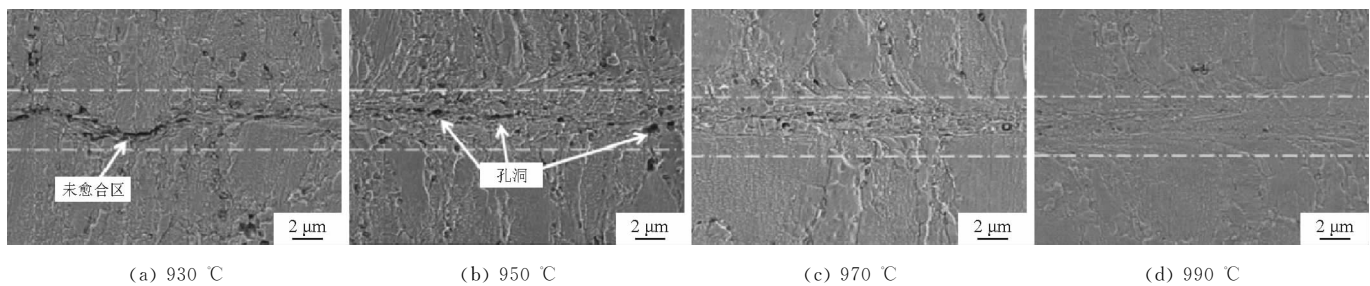


图 3 不同愈合温度下愈合区域的 SEM 微观组织

Fig.3 SEM images of bonding zone at various temperatures

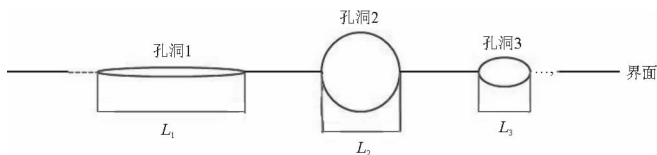


图 4 测量缺陷总长度的方法

Fig.4 Method to measure the total length of the voids

Image-Pro Plus 软件对随机选取 5 个区域的 SEM 愈合界面的缺陷长度进行统计。愈合区域占比 f_b 为：

$$f_b = (L - L_1 - L_2 - \dots - L_n) / L \quad (1)$$

式中, L_n 为第 n 个未愈合缺陷占据长度; L 为统计的愈合区域总长度, 计算结果见图 5。可以看出, 愈合温度为 930 °C 时, 界面愈合比例仅为 49.6%, 当温度升高至 970 °C 和 990 °C 时, 界面愈合比例均高于 90%。说明随

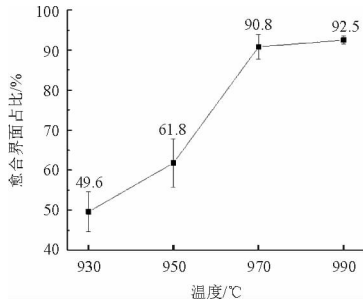


图 5 不同温度下的界面愈合比例

Fig.5 Ratio of bonding interface at different temperatures

着温度的升高, 界面处愈合比例逐渐升高, 界面的结合品质更高。

图 6 为界面附近微观组织的 EBSD 图。可以看出, Cu-Al₂O₃ 复合材料的晶粒尺寸很小, 基体平均晶粒尺寸为 0.593 μm。Al₂O₃ 颗粒大部分分布在晶界处, 少量分布在晶粒内部。930 °C 时, 从图 6b、图 6g 中可见愈合界面附近区域出现大量细小晶粒, 同时也存在较大区域的未愈合缺陷(灰色区域)。950 °C 时, 界面附近区域的细小晶粒数量增加, 未愈合缺陷占据区域明显减小。970 °C 时, 由于材料产生较大的塑性变形, 愈合界面区域几乎都是新生成的细小晶粒, 见图 6d 和图 6i。此外, 界面附近还可以发现晶粒异常长大, 其特征是相邻的晶界平直。990 °C 时, 微观组织变化不大, 也可发现异常长大的晶粒, 晶粒内部基本未见 Al₂O₃ 颗粒, 全部位于晶界处。愈合界面内还出现了局部区域 Al₂O₃ 颗粒密度越大, 晶粒尺寸越小的现象。

对不同温度下所得试样的 EBSD 结果进行晶粒尺寸统计可得, 与原始材料平均晶粒尺寸为 0.593 μm 的基体相比, 试验后愈合区域晶粒尺寸大幅降低。930 °C 时, 晶粒的平均尺寸为 0.342 μm。950 °C 时, 晶粒的平均尺寸为 0.352 μm。970 °C 和 990 °C 时, 晶粒的平均尺寸分别增大到 0.358 μm 和 0.362 μm。愈合区域的晶粒尺寸随愈合温度上升呈增大趋势。

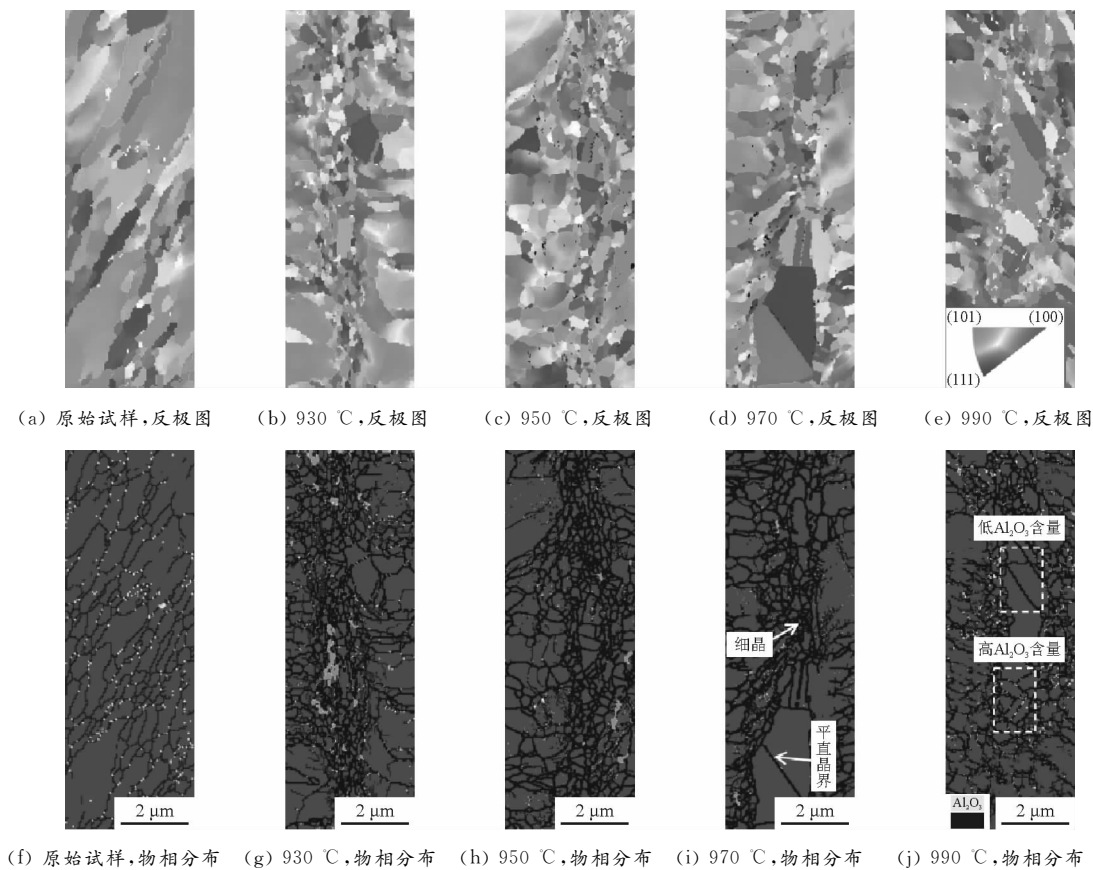


图 6 界面附近微观组织的 EBSD 图
Fig.6 EBSD maps of microstructure near the interface

2.2 力学性能

对原始材料以及不同温度试验后的试样进行拉伸试验,结果见图 7。可知复合材料的抗拉强度为 486 MPa,伸长率为 13.8%。温度从 930 °C 升高到 990 °C,界面强度分别为 413、452、470、472 MPa,伸长率分别为 1.8%、2.1%、5.8%、8.0%。可以看出,随着愈合温度升高,愈合界面处的强度逐渐增大,当温度为 970 °C 和 990 °C 时,材料的抗拉强度和原始材料接近,但塑性均明显低于原始材料。

不同温度下试验前后复合材料的断口形貌见图 8。

可以看出,原始材料断裂前产生了宏观塑性变形,存在

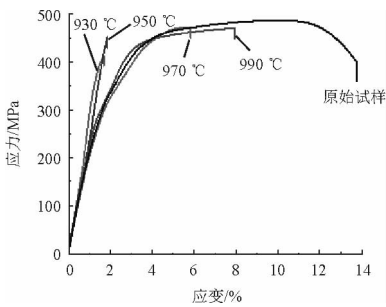


图 7 原始材料与热压愈合获得试样的拉伸曲线
Fig.7 Tensile curves of specimen before and after HCB

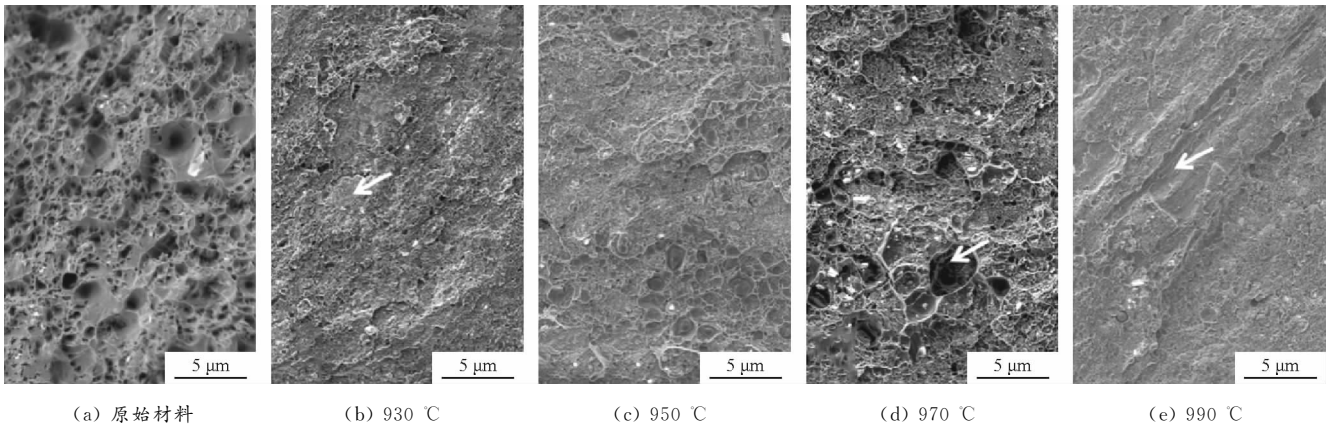


图 8 原始材料及不同温度下愈合区域的断口形貌

Fig.8 Fracture morphologies of original specimens and bonding zone at various temperatures

较深等轴韧窝的延性破坏,见图 8a,与图 7 拉伸曲线一致。930 ℃时,断口表面较为平坦,存在大量明显的河流状花样的撕裂棱,表现为微观解理断裂,也存在一些很小的韧窝,微观上呈现为微孔解理断裂。950 ℃时,断口表面仍然较为平整,撕裂棱减少,韧窝的尺寸增大。970 ℃,断口开始出现些尺寸较大的等轴韧窝,呈现为部分区域微孔聚集断裂,材料部分区域愈合效果良好。990 ℃时,断口平整程度大幅降低,韧窝的数量、尺寸以及区域占比进一步增大。

基体处以及界面附近的维氏硬度见图 9。可以看出,原始材料的平均硬度(HV)为 166.9。当愈合温度分别为 930、950、970、990 ℃时,界面附近的硬度(HV)分别为 159.2、155.2、161.1、159.9;试样愈合后基体的平均硬度(HV)分别为 154.4、153.4、159.1、160.5。可见愈合后界面附近的硬度略高于基体,与试验前相比,硬度值有所下降。

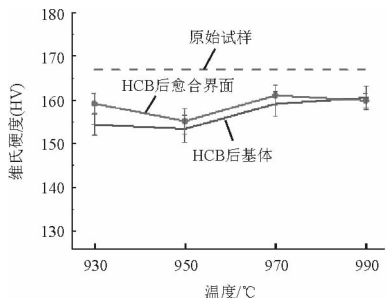


图9 原始材料与热压愈合试验后的愈合区域维氏硬度

Fig.9 Average Vickers hardness of bonding zone before and after HCB

3 讨论与分析

3.1 温度对界面愈合过程的影响

Cu-Al₂O₃复合材料的界面愈合效果随着愈合温度的升高显著增加。愈合温度从减少界面缺陷和促进界面处晶粒动态回复再结晶过程两个方面影响复合材料的愈合品质。一方面,愈合温度升高使复合材料产生较大的塑性变形,有效减少了界面缺陷。愈合温度升高使材料软化,有利于材料发生形变。愈合温度为 930 ℃时,材料的硬度相对较大,难以产生足够的塑性变形,界面存在的缝隙较大,孔洞数量较多,界面存在大量未愈合区域。随着愈合温度升高,复合材料的硬度进一步降低,界面存在的缝隙以及孔洞的数量和尺寸减小,界面逐渐闭合,更易得到愈合效果良好的界面,材料未闭合区域明显减小,愈合区域明显增多。当愈合温度从 930 ℃升高至 990 ℃,材料的变形量从 7.3% 大幅升高到 25.2%,界面愈合比例从 49.6% 升高到 92.5%。较大的塑性形变有利于界面处的空洞闭合,从而提升界面的

愈合效果。

另一方面,愈合温度升高促进了界面动态再结晶过程。愈合过程中高温状态下的塑性变形会产生界面的晶粒储能,通过发生动态再结晶使得新生晶粒形核。纯铜在热压愈合过程中,初始的动态再结晶晶粒会在晶界弓出处形核,界面的良好愈合是三叉晶界力学平衡及应变诱导晶界迁移的结果^[10]。对于 Cu-Al₂O₃复合材料,较高的愈合温度满足了动态再结晶的热力学条件,材料塑性变形堆积的晶粒储能则满足了动态再结晶的动力学条件,新晶粒通过动态再结晶形核长大,愈合了界面缺陷。大量新生的细小晶粒存在于愈合区域边界处,与变形程度更低的基体晶粒邻近,而愈合区域中心位置的晶粒尺寸则明显更大,见图 6。这些新生晶粒和原始连接界面边界高温下的塑性变形有关,愈合温度升高促进了动态再结晶过程。

3.2 Al₂O₃对动态回复再结晶的影响

Al₂O₃颗粒在热压愈合过程起着重要作用。复合材料的愈合界面附近新生的细小晶粒与原始材料晶粒相比晶粒尺寸明显减小。复合材料的原始组织中,晶粒内部以及晶界处都存在 Al₂O₃,而新生成的晶粒内部基本观察不到 Al₂O₃颗粒,其只在晶界处存在。愈合界面附近区域晶粒尺寸的不均匀性和 Al₂O₃颗粒的不均匀性使得晶粒在真空愈合试验过程中产生的塑性变形程度也不同。具有不均匀性的变形过程在愈合界面附近的相邻晶粒间引入了较高的储能梯度^[11~13]。

储能差异可以作为晶粒生长过程中的晶界迁移驱动力,即应变诱导晶界迁移,表现为晶界移动凸出过程。在热压愈合过程中,愈合界面的各晶粒之间由于变形不均匀性而产生的位错密度也不同。一般情况下,具有较高的位错密度的变形程度较大的晶粒,会降低整个晶粒内部系统的自由能,相邻的位错密度较低的晶粒中的亚晶通过晶界弓出迁移的方式凸入该晶粒中,吞食该晶粒中的亚晶,逐渐长大的弓出亚晶随着持续塑性变形过程的进行重新排列和发展形成亚边界,最终形成晶界,凸出区域与原始晶粒完全分离,即为动态再结晶形核产生的晶粒^[14,15]。而原本存在于晶粒内部的 Al₂O₃颗粒在变形过程中阻碍晶粒内部位错的运动,随着愈合过程进行,其积攒的位错数量进一步增加,成为高能量区域,最终形成晶界。这部分晶粒与原始晶粒分离,也会成为动态再结晶的晶核,即起源为晶粒内部的动态再结晶形核。

动态再结晶晶粒形核后,新生的细小等轴晶粒在高温下开始进一步长大,以降低系统总的界面能。动态再结晶的新生晶粒由于愈合界面附近的应变梯度以及储

能差异,在同一时间存在的晶粒尺寸亦有较大差距。随着愈合过程进行,晶界倾向于向着曲率中心的方向移动,并不断平直化,即“大吞并小”以及凹面平直的过程。但是由于晶粒内部的 Al_2O_3 颗粒具有不均匀性,对晶界移动的作用也具有差异性。 Al_2O_3 颗粒细密的区域,晶界迁移的阻力更大;反之,晶界迁移的阻力更小,晶粒也更容易生长。当粗大的晶粒被持续加热,阻碍晶粒生长的因素进一步消除,少数特殊晶界迅速迁移,这些晶粒一旦生长超过其周围的晶粒,由于大晶粒的晶界凹向外侧,晶界就持续向外迁移生长,直到互相接触,形成二次再结晶,最终呈现为愈合界面内部相邻、尺寸相近且晶界平直的异常长大晶粒,见图 6h~图 6j。

经过上述伴随着大规模的边界迁移的动态再结晶形核以及晶粒长大的过程,原始的界面被有效去除,两部分 Al_2O_3 增强铜基复合材料合为一个整体,界面达到良好的结合强度。

4 结 论

(1) $\text{Cu-1.1Al}_2\text{O}_3$ 在愈合温度为 $970\text{ }^\circ\text{C}$,保温时间为 120 min ,压力为 30 MPa 的条件下愈合效果最佳,此时复合材料变形量为 7.3% ,界面愈合比例为 90.8% ,抗拉强度为 470 MPa ,达到原始材料的 96.7% ,界面得到有效愈合。

(2) 愈合温度的升高以及界面处塑性变形增大,会促进愈合区域的动态再结晶晶粒形核。晶粒间不均匀的 Al_2O_3 颗粒在塑性变形过程中引入较高的储能梯度,晶粒内部的 Al_2O_3 颗粒附近积聚位错,也会促进动态再结晶形核。

(3) 复合材料界面的有效愈合是大规模的界面迁移、动态再结晶以及新生晶粒生长共同作用的结果。

参 考 文 献

- [1] CHO H S, OHKUBO H, IWATA N, et al. Improvement of compatibility of advanced ferritic steels with super critical pressurized water toward a higher thermally efficient water-cooled blanket system[J]. Fusion Engineering and Design, 2006, 81(8-14): 1 071-1 076.
- [2] UKAI S, OKUDA T, FUJIWARA M, et al. Characterization of high temperature creep properties in recrystallized 12Cr-ODS ferritic steel claddings[J]. Journal of Nuclear Science and Technology, 2002, 39(8): 872-879.
- [3] YAMASHITA S, AKASAKA N, UKAI S, et al. Microstructural development of a heavily neutron-irradiated ODS ferritic steel (MA957) at elevated temperature[J]. Journal of Nuclear Materials, 2007, 367-370: 202-207.
- [4] 方怡灶, 王玉林. 冷压烧结 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}$ 复合材料热膨胀性能的研究[J]. 兵器材料科学与工程, 1997, 20(5): 12-16, 40.
- [5] 国秀花, 宋克兴, 郝建新, 等. Al_2O_3 弥散强化铜基复合材料的研究

现状与进展[J]. 材料开发与应用, 2006, 21(4): 41-46.

- [6] ZHOU L Y, FENG S B, SUN M Y, et al. Interfacial microstructure evolution and bonding mechanisms of 14YWT alloys produced by hot compression bonding[J]. Journal of Materials Science & Technology, 2019, 35(8): 1 671-1 680.
- [7] XIE B J, SUN M Y, XU B, et al. Oxidation of stainless steel in vacuum and evolution of surface oxide scales during hot-compression bonding[J]. Corrosion Science, 2019, 147: 41-52.
- [8] ZHANG J Y, SUN M Y, XU B, et al. Interfacial microstructural evolution and metallurgical bonding mechanisms for IN718 superalloy joint produced by hot compressive bonding[J]. Metallurgical and Materials Transactions, 2018, B49(5): 2 152-2 162.
- [9] ZHANG J Y, XU B, TARIQ N, et al. Effect of strain rate on plastic deformation bonding behavior of Ni-based superalloys[J]. Journal of Materials Science & Technology, 2020(5): 54-63.
- [10] ZHANG J Y, SUN M Y, XU B, et al. Evolution of the interfacial microstructure during the plastic deformation bonding of copper[J]. Materials Science and Engineering, 2018, A746(11): 1-10.
- [11] BOULNAT X, SALLEZ N, DADÉ M, et al. Influence of oxide volume fraction on abnormal growth of nanostructured ferritic steels during non-isothermal treatments: An in situ study[J]. Acta Materialia, 2015, 97: 124-130.
- [12] JAMAATI R, TOROGHINEJAD M R, AMIRKHANLOU S, et al. Microstructural evolution of nanostructured steel-based composite fabricated by accumulative roll bonding[J]. Materials Science and Engineering, 2015, A639: 298-306.
- [13] KLUG R C, KRAUSS G, MATLOCK D K. Recrystallization in oxide-dispersion strengthened mechanically alloyed sheet steel[J]. Metal Powder Report, 1996, 52(7): 1 945-1 960.
- [14] SHIMIZU I. Theories and applicability of grain size piezometers: The role of dynamic recrystallization mechanisms[J]. Journal of Structural Geology, 2008, 30(7): 899-917.
- [15] PONGE D, GOTTSTEIN G. Necklace formation during dynamic recrystallization: Mechanisms and impact on flow behavior[J]. Acta Materialia, 1998, 46(1): 69-80.

(编辑:彭瑾)

欢迎关注
“特种铸造”
微信公众号



- | | | |
|--------|---------|--------|
| ● 微官网 | ● 行业动态 | ● 联系我们 |
| ● 微商城 | ● 铸造前沿 | ● 免费推广 |
| ● 本刊会议 | ● 经典案例 | ● 铸造职场 |
| ● 收录动态 | ● 铸造学堂 | ● 产品库 |
| ● 稿件系统 | ● 专利与发明 | ● 企业库 |