

[研究·设计]

DOI:10.3969/j.issn.1005-2895.2015.04.010

表面纳米化对纯铜扩散焊接性能的影响

裴广玉, 李东, 李凯斌, 刘东宇

(上海工程技术大学材料工程学院, 上海 201620)

摘要:为了提高纯铜扩散焊接性能,通过表面机械滚压技术(SMRT),对纯铜试样进行表面纳米化处理,并在真空下对纯铜母材和经表面机械滚压处理的纯铜试样分别进行扩散焊接试验,焊接压力 10 MPa,保温 1 h,焊接温度为 300 ℃、400 ℃、500 ℃。研究表明:经过 SMRT 纯铜表层晶粒达到纳米级别,纯铜试样焊接接头处的显微硬度高于母材试样;同一温度下,SMRT 铜焊接性能优于母材试样。

关键词:纯铜;扩散焊接;表面机械滚压;表面纳米化

中图分类号:TG113.26 文献标志码:A 文章编号:1005-2895(2015)04-0039-05

Performance of Copper Diffusion Welding after Surface Nano-Crystallization

PEI Guangyu, LI Dong, LI Kaibin, LIU Dongyu

(School of Materials Engineering, Shanghai University of Engineering Science, Shanghai 201620, China)

Abstract: To improve the diffusion welding properties of fine copper, the experiment was carried out on fine copper after surface nano-crystallization treatment with Surface Mechanical Rolling Technology (SMRT). And the tests of fine copper base metal and copper samples treated by SMR were conducted in the vacuum, with welding pressure of 10 MPa, heat preservation of 1 h and soldering temperature of 300 ℃, 400 ℃, 500 ℃ respectively. The results show that the surface layer crystal grain of fine copper after SMRT reaches the nano level, and the micro-hardness of welded joints is higher than the base metal samples. Under the same temperature, the diffusion welding properties of SMRT copper is significantly improved.

Key words: fine copper; diffusion welding; Surface Mechanical Rolling Treatment (SMRT); surface nano-crystallization

铜具有优良的导电性、导热性、耐腐蚀性、延展性及一定的强度等特性,在各个行业应用都非常广泛,因此铜及其合金的连接在工业生产中具有重要地位。目前工业中主要采用的焊接方法有电弧焊、TIG 焊、MIG 焊等,但都有着焊接接头的热裂倾向大,容易产生气孔,晶粒粗化,塑性下降,耐蚀性下降等缺点。相较于传统焊接方式,扩散焊接工艺流程简单,容易控制工艺参数,可操作性强,且焊接所需温度低,温度梯度小,组织劣化程度小^[1],接头质量好,可以焊接各种陶瓷和金属,特别是熔化焊不能焊接的材料,因此对铜采用固态扩散焊方法进行焊接,有着传统方式不可比拟的优势。

固态扩散的实质是压焊的一种,焊接件在高温压

力下 2 待焊面相互接触,并产生局部塑性变形,结合层原子间相互扩散一定时间后而形成可靠焊接接头的过程^[2],目前在工业发达的国家得到充分研究和应用,但在我国的研究还很少^[3]。

扩散焊接主要利用原子间相互扩散进行连接,因此材料的可扩散性能对于扩散焊接接头性能至关重要。相较于多晶材料,纳米晶体的晶界扩散系数要高出几个数量级,即使在低温下,其扩散现象仍非常明显^[4]。因此利用纳米材料的高扩散性,对纳米材料进行扩散焊接时可以大大降低扩散所需的温度和时间,同时避免了高温对材料性能造成的不利影响。但是纳米材料的制备十分困难,直到 1999 年 K Lu 和 L Lu^[5]提出了表面纳米化 (Surface Nano-Crystallization, SNC)

收稿日期:2014-11-25;修回日期:2015-02-23

基金项目:上海市自然科学基金(11ZR1414600);上海市教委创新项目(11YZ214)

作者简介:裴广玉(1989),男,江苏丰县人,硕士研究生,主要研究方向为扩散焊接。E-mail:pgypgl@126.com

的概念,纳米技术才有了实用前景。表面纳米化的实质是采用机械方法使材料表面发生强烈塑性变形或严重塑性变形(Severe Plastic Deformation, SPD),使得大尺寸晶粒“破碎”形成细小晶粒,直至形成纳米晶^[6]。目前已有许多机械加工方法^[7],比如表面机械研磨处理(SMAT)法^[8]、超声喷丸法(USSP)^[9]、丝刷法(WB)^[10]、超音速颗粒轰击法(SFPB)^[11]、凸轮辊压法(CR)^[12]和超声冲击喷丸法(UIP)^[13-14]等等。

将表面纳米化技术与扩散焊接相结合,利用纳米材料的高扩散性,可以显著提高材料的扩散焊接性能,因此有着很好的应用前景。本文以纯铜为基体材料进行表面纳米化以及扩散焊接研究,并分析表面纳米化对扩散焊接性能的影响。

1 实验方法及材料

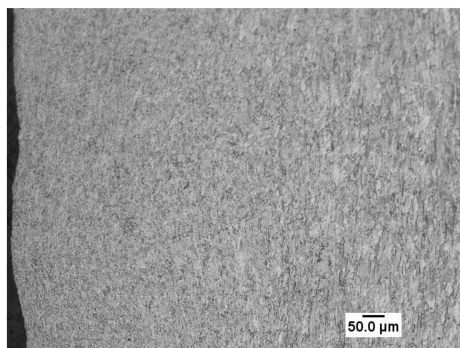
实验采用的基体材料为工业纯铜(T2)板材,铜板的尺寸为180 mm×10 mm×6 mm。实验所采用的表面纳米化方法为表面机械滚压处理(SMRT)法^[15],采用固定在旋转轴上的刀具钢材质的滚轮,以一定的转速滚压一定速度走动的试样板表面。实验所用设备是在车床基础上进行的二次开发所成,滚轮固定在车床的旋转轴上,试样板固定在车床工作台上,工作台以一定的速度来回走动,旋转轴随着工作台的前进和后退改变旋转方向。纯铜的表面机械滚压处理(SMRT)在常温下进行,旋转轴转速为110 r/min,试样板走动速度为0.42 mm/s,表面滚压处理20次。试样表面的滚压区域约为60 mm×28 mm。利用KEYENCE VH-Z100超景深显微镜对试样金相组织特征进行分析,纯铜样品采用4%硝酸高铁酒精溶液进行腐蚀;利用JEM-2100型透射电镜对处理后样品组织进行分析,铜金属薄膜样品制备是先手工预磨至80 μm厚,然后采用凹坑仪和离子减薄仪对试样进行进一步减薄直至中心穿孔。

扩散焊接试验在ZT-40-20Y真空热压烧结炉中进行,焊前将SMRT纯铜板材试样和未经处理的纯铜母材试样加工成直径为 $\varnothing 25$ mm,厚度为6 mm的圆柱形试样,试样表面用砂纸打磨直至表面光滑平整。然后在300℃、400℃、500℃下,对2种试样分别进行真空扩散焊接试验,真空度为 5.0×10^{-3} Pa,压力为10 MPa,保温时间为1 h。焊接后的试样加工成所需大小,制备成金相试样。利用KEYENCE VH-Z100超景深显微镜观察扩散结合区域的组织特征;利用HXD-1000TMSC/LCD型显微硬度计对SMRT铜表层以及扩散界面处的显微硬度进行测定,试验载荷为0.254 N,加载时间15 s。

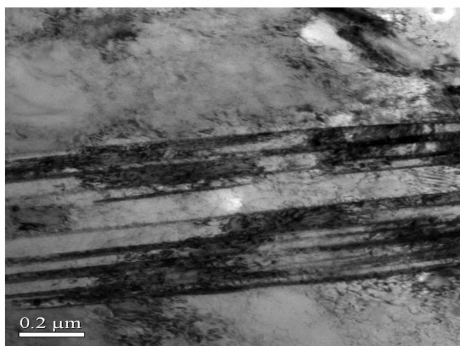
2 实验结果与分析

2.1 SMRT铜试样组织和硬度分析

经SMRT后,纯铜的表层金相组织如图1(a)所示,表面机械滚压处理显著细化了纯铜表层的晶粒尺寸,而且这种方法得到的变形区域很深^[16],深为800~1 000 μm,变形区域的晶粒尺寸由表层至心部逐渐变大呈梯度分布。图1(b)为SMRT铜表层处的TEM像,可以看出纯铜表层的晶粒尺寸已经达到纳米级别,大约100 nm以下,说明表面机械滚压技术可以实现纯铜的表面纳米化。图1(b)中还可以看到孪晶铜的存在,这是因为纯铜^[16-17]是中等层错能面心立方金属,其晶粒细化机制以位错运动主导,孪晶也会参与晶粒细化,因此在深度小于100 μm的范围内会发现孪晶组织的存在。



(a) 铜表层金相组织



(b) 铜表层 TEM 像

图1 SMRT铜表层处的显微组织和TEM像

Figure 1 Microstructure and TEM images of fine copper after SMRT at the surface

图2为SMRT铜表层至心部的显微硬度分布曲线,可以看出,其显微硬度值由表层至心部也呈梯度分布,表层硬度 H_{HV} 最高达到131.9。根据霍尔佩奇(Hall-Petch)公式可知材料的晶粒越细小,其强度越高。硬度曲线前段变化较为平缓,这个区域主要为纳米晶粒区域,Hall-Petch公式表示的是多晶体材料的强

度与其晶粒尺寸之间的关系,在这个区域并不完全适用,纳米晶粒层硬度增大的原因较为复杂^[18];曲线中段硬度值下降加快,这个区域属于亚微晶层,晶粒尺寸逐渐变大,变形程度也减小,此时试样的晶粒尺寸在显微硬度中起的作用逐渐变大;曲线末端,硬度值变化幅度变小,这个区域位于亚微米层和基体之间,属于过渡区域,晶粒尺寸逐步接近基体晶粒尺寸,变形程度也更小,此时的试样的显微硬度值则由晶粒尺寸来主导,因此试样硬度的变化可归因于晶粒细化和塑性变形造成的加工硬化的共同作用。

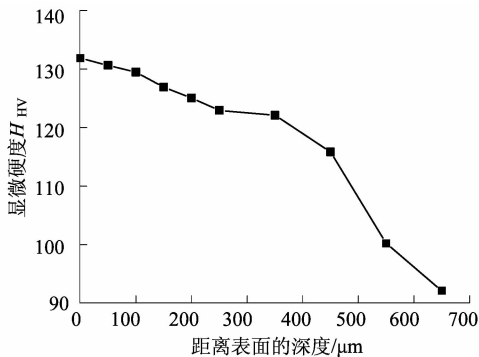


图2 表面纳米化铜表层处显微硬度梯度分布

Figure 2 Gradient distribution of micro-hardness of fine copper after SNC treatment at the surface

2.2 焊接接头显微组织特征

图3~5分别为纯铜母材和SNC处理纯铜试样在300℃、400℃和500℃下的扩散焊接试样的金相组织。由图3~5可以看出,纯铜试样在10 MPa压力下可以紧密地结合在一起,阻碍晶粒生长和原子穿越界面的扩散迁移的空洞、间隙等缺陷基本不存在。

纯铜母材和经表面机械滚压处理纯铜试样采用相同的扩散焊接工艺参数,如图3(a)所示,300℃时纯铜母材焊接试样的焊缝可以清晰看到,铜晶粒基本没跨过接头界面生长,说明此时纯铜的扩散系数不是很大;而图3(b)中的SNC纯铜焊接试样,界面处可以看到大量跨过接头界面生长的铜晶粒,铜原子已大量扩散,扩散系数明显高于纯铜母材,这是因为SMRT铜试样的表层晶粒被细化,晶界所占的体积分数很大,其为原子扩散提供了大量的快速通道^[19],且晶界处的原子活性大,并存在各种非平衡缺陷包含大量的过剩能量^[20],提高了铜原子的扩散系数,因此在加热过程中,铜原子扩散更加充分、快速,伴随着铜晶粒的回复、再结晶过程,逐步跨过界面扩散。

材料的扩散系数 D 与温度 T 有关^[21],且有

$$D = D_0 e^{-Q/RT},$$

式中: D 为扩散系数; D_0 为扩散常数; R 为气体常数; Q 为扩散激活能; T 为加热温度。

由公式可以看出,温度 T 与材料的扩散系数 D 呈指数关系,对于同种材料来说, R 和 Q 值都是定值,也就是说加热时纯铜母材和SMRT的纯铜试样的扩散系数 D 都随温度升高,且迅速增大。因此400℃时,纯铜母材和SMRT纯铜试样的扩散系数都会提高几个数量级。此时在纯铜母材试样中也可以看到某些晶粒跨过接头界面生长,但很少,接头界面仍清晰可见;而SMRT铜试样中则有更多的晶粒跨过接头界面生长,接头界面基本消失、弥合,说明铜原子迁移扩散更加充分,其扩散系数仍明显高于纯铜母材试样的。随温度升高,晶粒尺寸也逐渐变大,但SMRT铜试样的晶粒仍小于纯铜母材的。500℃时,纯铜母材试样和SNC铜试样的晶粒长大现象都更为明显,此时试样的焊接界面逐渐消失;纯铜母材试样留有好多未消失的小黑点、孔洞,如图5(a)所示,说明铜原子扩散迁移并不够充分,而图5(b)中则看不到这些黑点、孔洞的存在,其晶粒直接跨过接头界面生长,所得组织较为致密、均匀。

2.3 焊接接头显微硬度

采用HXD-1000TMSC/LCD型显微硬度计测得焊接接头处的显微硬度值如图6所示。由图可知,SMRT铜试样焊接接头处的显微硬度值要高于纯铜母材试样,大约高10 MPa左右。由于纯铜的再结晶温度大约为300℃,且形变越大,再结晶温度越低,所以随着温度升高,SMRT铜试样和纯铜母材试样接头处的显微硬度值都逐渐降低。整个加热实验中,SMRT铜试样的晶粒尺寸都小于母材试样的,如图3~5可知。根据位错理论,晶界阻碍位错运动,为了使相邻晶粒产生切变,晶界处必须有较大的应力集中,而晶粒细小使得晶界增多,要产生位错塞积则需要施加更大的外力,因此经SMRT铜试样焊接接头处的硬度值较高。

3 结论

1) 表面机械滚压处理(SMRT)可以细化材料的表层晶粒,实现材料的表面纳米化,且得到的变形区域很深,大约800~1 000 μm。

2) 同一温度下,经SMRT纯铜试样的扩散系数明显高于纯铜母材试样的,且晶粒也较小。

3) SMRT纯铜焊接试样在300℃时原子相互扩散已经非常明显,400℃时,焊接界面基本消失。相较于母材试样,SMRT纯铜扩散焊接所需的温度降低,原子扩散更加充分,所得的焊接接头处的晶粒细小、均匀。

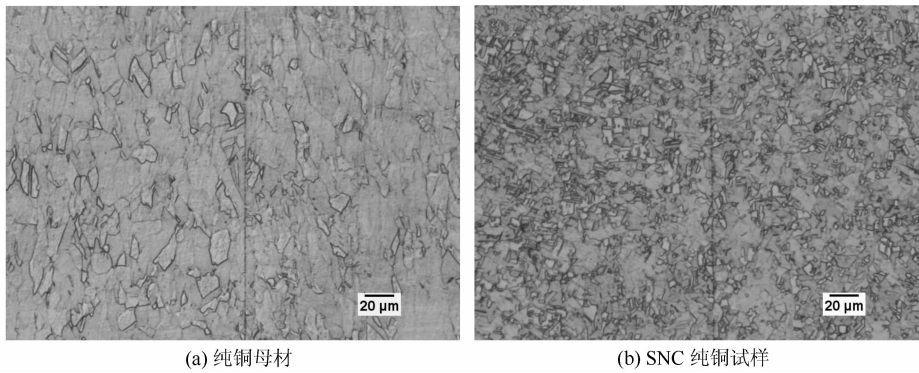


图3 纯铜母材和 SNC 处理纯铜试样在 300 °C 时焊缝处显微组织
Figure 3 Microstructure of the weld of copper base material and copper sample after SNC treatment at 300 °C respectively

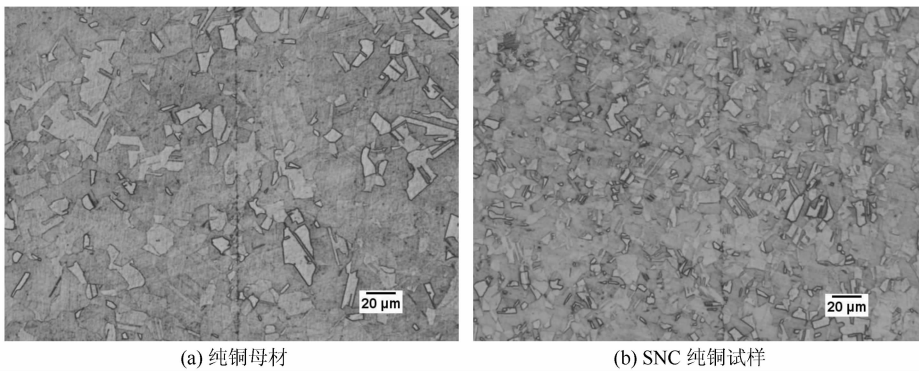


图4 纯铜母材和 SNC 处理纯铜试样在 400 °C 时焊缝处显微组织
Figure 4 Microstructure of the weld of copper base material and copper sample after SNC treatment at 400 °C respectively

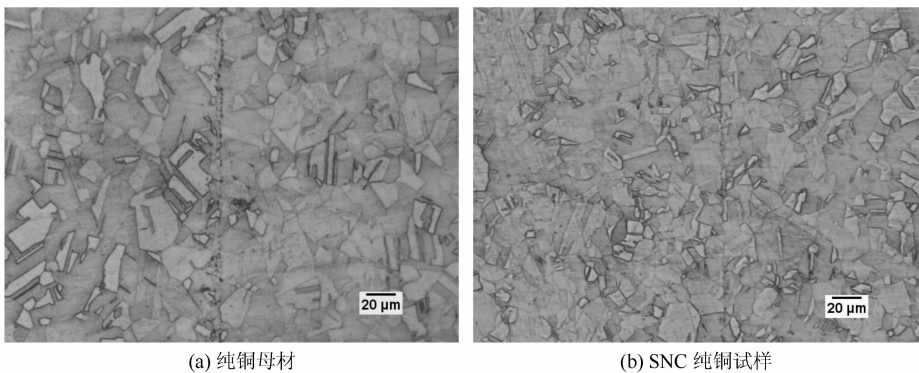


图5 纯铜母材和 SNC 处理纯铜试样在 500 °C 时焊缝处显微组织
Figure 5 Microstructure of the weld of copper base material and copper sample after SNC treatment at 500 °C respectively

参考文献:

- [1] 韩靖. 钛合金与不锈钢扩散焊接研究进展[J]. 热加工工艺, 2011, 40(1): 123 - 125.
- [2] 谭天亚, 傅正义, 张东明. 扩散焊接异种金属及陶瓷/金属的研究进展[J]. 硅酸盐通报, 2003, 22(1): 59 - 63.
- [3] 张汇文, 岳鑫, 张九海, 等. 钛合金与不锈钢的钎焊和扩散焊技术研究现状及发展趋势[J]. 焊接, 2006(1): 11 - 16.
- [4] 江鸿杰, 胡治流, 李昱鎡, 等. 纳米材料的扩散性及应用[J]. 中国科技博览, 2008(21): 41.
- [5] LU K, LU J. Surface nanocrystallization of metallic materials presentation of the concept behind a new approach [J]. Journal of Material Science & Technology, 1999, 15(3): 193 - 197.
- [6] 欧信兵, 张津. 强烈塑性变形表面纳米化的研究现状[J]. 表面技术, 2008, 37(3): 60 - 64.

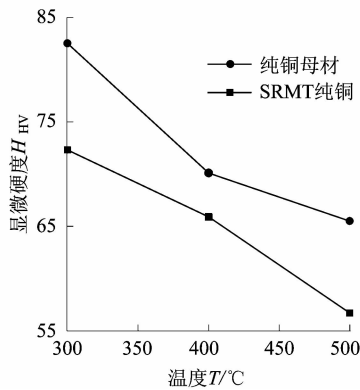


图6 纯铜母材和 SNC 试样在 300、400 和 500 $^\circ\text{C}$ 时焊缝处的显微硬度

Figure 6 Micro-hardness near the weld of copper base material and SNC samples under 300, 400 and 500 $^\circ\text{C}$

- [7] 李东,裴广玉.金属材料表面纳米化机制研究现状[J].材料导报,2013,27(22):5-8.
- [8] ROLAND T, RETRAINT D, LU K, et al. Fatigue life improvement through surface nanostructuring of stainless steel by means of surface mechanical attrition treatment[J]. Scripta Materialia, 2006, 54(11): 1949-1954.
- [9] TAO N R, SUI M L, LU J. Surface nanocrystallization of iron induced by ultrasonic shot peening[J]. Nanostructured Materials, 1999, 11(4): 433-440.
- [10] SATOA M, TSUJIB N, MINAMINO Y, et al. Formation of nanocrystalline surface layers in various metallic materials by near surface severe plastic deformation[J]. Science and Technology of Advance Materials, 2004, 5: 145-152.

- [11] 熊天英,王吉孝,金花子,等.0Cr18Ni9Ti 钢焊接接头表面纳米化及接头抗 H_2S 应力腐蚀性能的研究[J].材料保护,2005,38(1):13-16.
- [12] FAN X M, ZHOU B S, ZHU L, et al. Surface nanocrystallization of low carbon steel induced by circulation rolling plastic deformation[J]. Material Science Forum, 2005, 475/479: 133-136.
- [13] MORDYUK B N, PROKOPENKO G I. Fatigue life improvement of titanium by novel ultrasonically assisted technique[J]. Materials Science and Engineering A, 2006, 437: 396-405.
- [14] MORDYUK B N, PROKOPENKO G I. Ultrasonic impact peening for the surface properties' management[J]. Journal of Sound and Vibration, 2007, 308: 855-866.
- [15] 白涛,李东,关凯书.机械滚压对 304L 不锈钢组织和性能的影响[J].金属学报,2011,47(11):1459-1463.
- [16] 王科,刘刚,许并社,等.表面机械研磨处理纯铜的表面纳米化[C]//全国第三届纳米材料和技术应用会议论文集.南京:中国材料研究学会,2003:651-654.
- [17] LIAO X, ZHAO Y H, ZHU Y T, et al. Grain-size effect on the deformation mechanisms of nanostructured copper processed by high-pressure torsion[J]. Journal of Applied Physics, 2004, 96(1): 636-640.
- [18] 卢柯,刘学东,胡壮麟.纳米晶体材料的 Hall-Petch 关系[J].材料研究学报,1994,8(5):385-391.
- [19] GU J F, BEI D H, LU K, et al. Improved nitrogen transport in surface nanocrystallized low-carbon steels during gaseous nitridation[J]. Materials Letters, 2002, 55(5): 340-343.
- [20] WANG Z B, LU K, WILDEG G, et al. Interfacial diffusion in a nanostructured Cu produced by means of dynamic plastic deformation[J]. Acta Materialia, 2011, 59: 1818-1828.
- [21] 崔忠圻,谭耀春.金属学与热处理[M].北京:机械工业出版社,2007:225.

[信息·简讯]

· 行业简讯 ·

西门子助力过程工业发掘数字化潜力

西门子在第 31 届“德国国际化学工程、环境保护和生物技术展览会(Achema 2015)”上展示了其在过程工业领域的数字化战略。西门子股份公司过程工业与驱动集团首席执行官何维克(Peter Herweck)表示:“过程工业企业正面临巨大竞争压力,特别是不断变化的法规、市场和技术带来的挑战。数字化是能够成功应对这些挑战的首要工具。在建设‘数字化企业’的过程中,我们将通过提供囊括硬件、软件和服务且覆盖工厂整个生命周期的独特一体化组合为客户提供支持,从而助力客户持续降低投资和运营成本。”而实现这一目标的根本基础在于能够实现工厂数字化的一体化软件产品与解决方案,从而确保工厂设计、工程、安装、运营、现代化升级改造以及云服务之间实现无缝数据交换。这能让用户能够利用其工厂的虚拟“数字模型”来模拟和优化调试、运营及维护。

数字化的实现有赖于一体化工程。一体化工程能够通过减少不同领域之间所需接口数量来减少错误源,通过多流程并行工作来提高每一个工程环节的质量,并缩短产品上市时间。这样,诸如工艺工程或电工规划之类的任务能够与自动化工程同时进行,而 Comos 软件解决方案和 Simatic PCS 7 过程控制系统的无缝集成则为此提供了基础。这不仅能够实现在整个工厂生命周期的横向集成,而且能够实现从管理层(比如 ERP 系统)到现场层的纵向集成。一体化工程所带来的一大裨益在于其能够集成范围广阔的创新型过程仪表,包括高精度 Sitrans 压力变送器。这一集成过程通过使用诸如全集成自动化(TIA)、全集成能源管理(TIP)和全集成驱动系统(IDS)这些成熟技术平台得以进一步简化。

(朱建芸)