

累积叠轧制备的 Cu/Al/Cu 复合板材金属间化合物层演变及其对力学性能影响研究

王琳, 谢志宝

(中南大学 a. 高性能复杂制造国家重点实验室; b. 机电工程学院;
c. 轻合金研究院, 长沙 410083)

摘要: **目的** 研究在不同温度条件下 Cu (商业纯铜)/Al (AA1060)/Cu 复合板材累积叠轧过程中界面金属间化合物层对材料性能的强化规律。**方法** 在不同温度条件下 (350~500 °C) 累积叠轧制备 Cu/Al/Cu 层状复合板材, 深入分析其界面金属间化合物层形状、元素分布及其对力学性能的影响规律。**结果** 金属化合物层的厚度随着轧制温度的升高逐渐增加, 且随着轧制温度的不同, 形貌呈现很大的差异。当轧制温度为 350 °C 和 400 °C 时, 金属间化合物相对平整。轧制温度升高到 450 °C 时, 金属间化合物层呈现锯齿形, 使该工艺条件下加工的材料同时具有较好的强度 (273 MPa) 和塑性 (4.06%)。**结论** 制备 Cu/Al/Cu 层状复合材料过程中, 通过优化轧制温度这一重要轧制参数, 能实现强度和塑性的综合提高。

关键词: 累积叠轧; Cu/Al/Cu 复合板材; 金属间化合物层; 力学性能

DOI: 10.3969/j.issn.1674-6457.2021.06.009

中图分类号: TG376 **文献标识码:** A **文章编号:** 1674-6457(2021)06-0070-07

Evolution of Intermetallic Layer of Cu/Al/Cu Laminated Composites and Its Effect on Mechanical Properties

WANG Lin, XIE Zhi-bao

(a. State Key Laboratory of High Performance Complex Manufacturing; b. College of Mechanical and Electrical Engineering;
c. Light Alloy Research Institute, Central South University, Changsha 410083, China)

ABSTRACT: The work aims to study the strengthening effect of interfacial intermetallic compound layer on material properties during lamination of Cu (commercial pure copper)/Al (AA1060)/Cu composites at different temperature. Cu/Al/Cu laminated composites were processed by ARB (accumulative roll-bonding) at different temperature (350-500 °C) and the shape and element distribution of intermetallic compound layer at interface and its influence on mechanical properties were analyzed. The thickness of intermetallic layer sharply increased with the increase of rolling temperature, and the morphology showed great difference with the different rolling temperature. When the rolling temperature was 350 °C and 400 °C, the intermetallic layer was relatively flat. However, when the rolling temperature increased to 450 °C, a serrated shape occurred, which led to the good strength (273 MPa) and the excellent elongation (4.06%) simultaneously. In the process of preparing Cu/Al/Cu laminated composites, optimizing the rolling temperature as an important rolling parameter can comprehensively improve the strength and plasticity.

KEY WORDS: accumulative roll-bonding; Cu/Al/Cu laminated composite; intermetallic layer; mechanical properties

层状复合材料, 如 Al/Cu^[1], Al/Ni^[2], Al/Ti^[3], Al/Mg^[4]和 Cu/Ni^[5]等, 相比于纯金属材料具有较好的

力学性能、腐蚀性能和疲劳性能, 在很多领域都被视为潜在的理想结构材料, 特别是航空航天领域。为了

收稿日期: 2021-08-10

作者简介: 王琳 (1991—), 男, 博士生, 主要研究方向为材料轧制成形过程与技术。

加工高性能的层状复合材料,大量塑性加工工艺得到了广泛研究,如等通道角挤压^[6]、深冷异步轧制^[7]和累积叠轧^[8]等。在这些加工技术中,由于累积叠轧技术能有效细化材料晶粒,且加工方法相对简单,得到了广泛的发展。

由于 Cu/Al 层状复合材料导电性良好、密度低、成本低等优点,已经被广泛应用于电气设备的电磁屏蔽装置、建筑的噪声屏蔽装置等。Li X B 等^[9]发现经过累积叠轧和 300 °C 退火处理 1 h 的 Al/Cu 层状复合材料中,界面固溶强化导致材料具有较高的拉伸强度。Lee Jongbeom 等^[10]系统研究了孔形轧制的 Cu/Al 包层材料随应变增加时力学性能和微观组织的演变规律,他们发现随着应变的增加,Cu 层晶粒不断细化,导致硬度不断增大,而 Al 层晶粒先细化后长大,导致硬度随着应变的增加先增加后减少,应变为 0.48 时为转变的临界值。在 Al 层中易在 $\langle 100 \rangle$ 和 $\langle 111 \rangle$ 方向上形成不全位错,而 Cu 层中易发生交叉滑移,从而导致 Cu 层中织构较弱。Guo Yajie 等^[11]通过研究 400~550 °C 温度下扩散 10~30 min 形成的多层 Cu/Al 复合材料的金属间化合物相,发现从 Cu 层到 Al 层的中间界面层依次形成了 Al_4Cu_9 , AlCu , Al_2Cu 。Chang Dongxu 等^[12]发现累积叠轧后的退火处理能促进 Cu/Al 层状复合材料中间界面层 Al_2Cu , AlCu , Al_4Cu_9 的形成,且界面层的微观硬度随着退火温度的增加而增大。罗龙等^[13]基于嵌入原子势函数的分子动力学方法,模拟了 Cu/Al 界面的扩散行为,结合计算分析提出界面处以 Cu 原子向 Al 基体侧扩散为主。综合以上研究,热轧 Cu/Al 层状复合材料过程中轧制温度对界面层的演变有重大影响,而界面的微观结构又是层间的结合质量和材料拉伸强度的重要影响因素。关于不同温度条件下累积叠轧 Cu/Al/Cu 层状复合材料界面金属间化合物层形状和元素分布演变规律及其对力学性能影响的研究不多。

文中主要研究了轧制温度(350, 400, 450, 500 °C)对 Cu/Al/Cu 界面金属间化合物层形貌和元素分布演

变的影响,继而分析其对力学性能的影响。

1 实验方案

初始材料为 50 mm×60 mm×0.4 mm 的商业纯铜片和 50 mm×60 mm×1 mm 的 Al1060 片。该 2 种材料在 500 °C 的真空炉中进行 1 h 的均匀化处理。轧制实验在西门子伺服驱动的四辊轧机上进行,轧辊近期进行过表面抛光,轧制过程中采用干摩擦。每道次压下量为 50%,轧制速度为 2.4 m/min。为了提高层与层之间的结合质量,每道次轧制之前板材的上下表面用钢刷刷干净。轧制之前,材料按照 Cu/Al/Cu 的结构叠起来,将 4 个角用铁丝固定。第 1 道次轧制之前,将钉好的材料放置在真空炉中加热到相应的温度(350, 400, 450, 500 °C)保持 20 min。后续轧制之前,将该复合材料放在相应温度的炉子中,在相应的温度条件下加热 5 min。为减少该复合板材在加热过程中的氧化,具体的热处理步骤为:将炉子温度升高到需要的温度→将需要加热的复合板材放到炉子中→锁好炉门,开始抽真空→估算好时间开始排气,直到加热够 5 min 后将复合板取出。轧制流程如图 1 所示。

拉伸实验在日本岛津公司生产的拉伸机(DDL-100)上进行,拉伸温度为室温,速率为 0.03 s⁻¹。为确保拉伸实验值的准确性,每个工艺加工的实验都进行了 3 次,然后取平均值。通过扫描电子显微镜(SEM, Phenom Prox Desktop)对界面的形貌和元素分布进行系统地研究。扫描电镜运行电压为 15 kV,扫描步长为 0.3 μm。

2 实验结果

图 2 展示了不同温度条件下轧制的 Cu/Al/Cu 层状复合材料界面化合物层的形貌。当轧制温度超过 400 °C 时,Cu/Al 中间的界面层变得较为明显。随着轧制温度的增加,界面层的厚度急剧增加。当轧制温

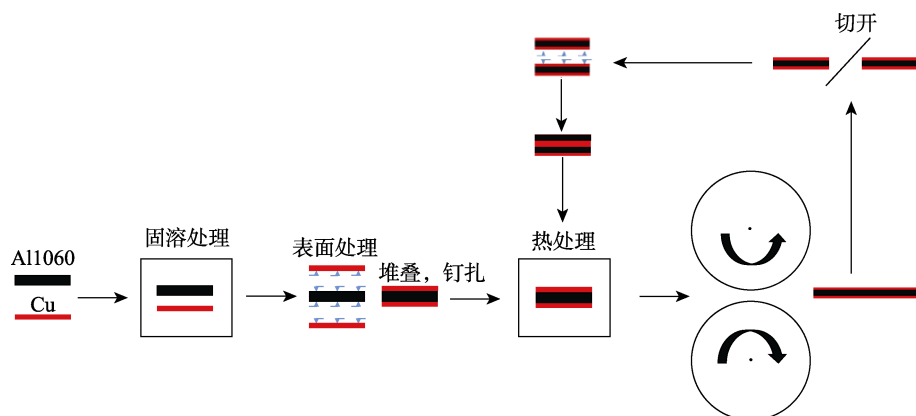


图 1 轧制工艺流程
Fig.1 Rolling process flow

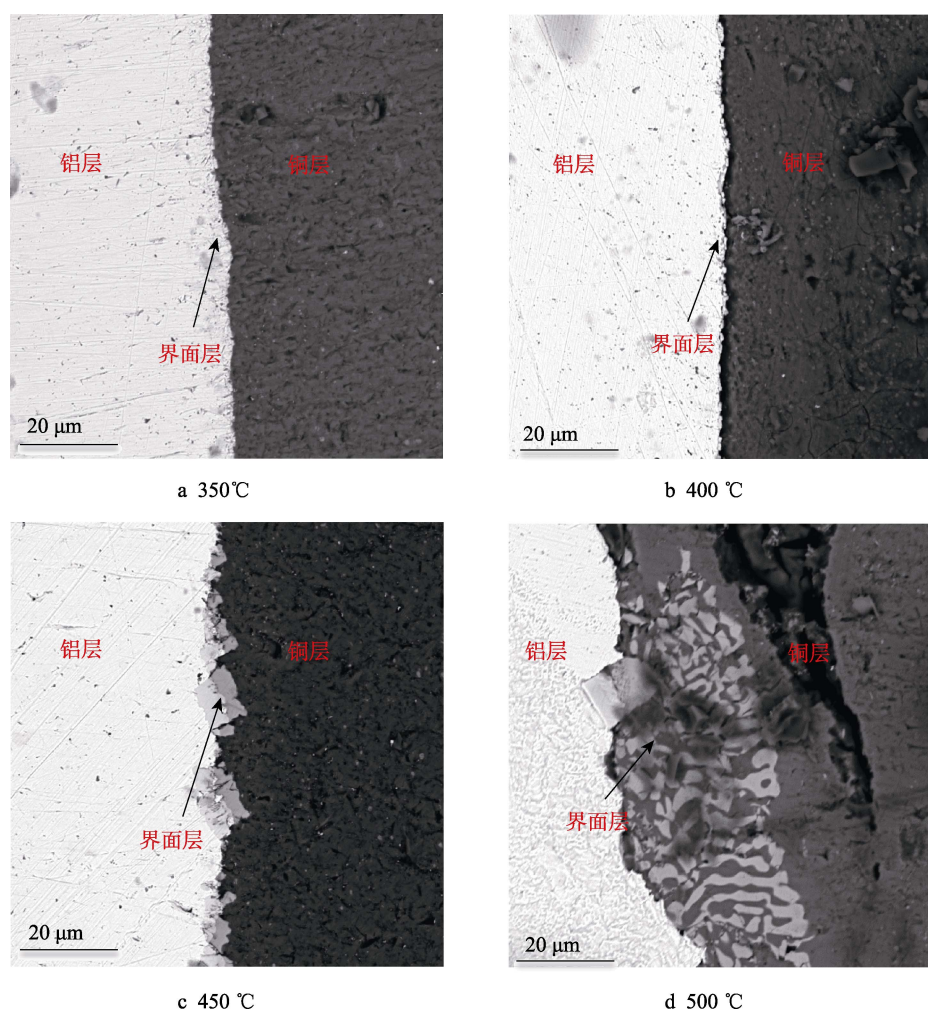


图 2 在不同温度条件下轧制后的 Cu/Al/Cu 层状复合材料界面中间层的形貌

Fig.2 Morphology of intermetallic layers of the Cu/Al/Cu laminated composites after rolling at different temperature

度低于 400 °C 时, 界面中间化合物层相对比较平整。当轧制温度升高到 450 °C, 金属间化合物层演变成锯齿状。这种界面层形态形成的原因可解释为: 随着轧制温度的升高, 金属间化合物层的厚度超过一个临界值, 在轧制力的作用下作为硬层挤入到铝基体当中, 导致这种特殊界面的形成。这种锯齿状的中间化合物层的形成是高温塑性成形技术加工的多金属层状复合材料中的典型现象^[14]。当轧制温度升高到 500 °C 时, 较大的 Cu 和 Al 的共存区域出现在界面层。

图 3 展示了不同温度条件下轧制后层状复合材料中间界面层的元素分布扫描结果。图 4a—d 为该层状复合材料中间界面层 Al 和 Cu 元素线扫结果, 图 4e 为中间界面层的平均厚度随着轧制温度的变化情况。当轧制温度为 350 °C 时, 中间界面的平均厚度为 3.49 μm。随着轧制温度的升高, 中间界面层的厚度急剧升高。当轧制温度升高到 500 °C, 界面层的平均厚度达到 38.96 μm。

图 5 展示了不同温度条件下轧制的 Cu/Al/Cu 层状复合材料室温条件下的拉伸性能。拉伸样尺寸如图 5a 中右下角所示。从图 5b 可以看出, 当轧制温度从

350 °C 增加到 500 °C 时, 极限抗拉强度逐渐从 224 MPa 增加到 287 MPa。随着轧制温度的增加, 断裂伸长率先增加后减少。当轧制温度从 300 °C 逐渐增加到 450 °C 时, 伸长率从 2.50% 逐渐增加到 4.06%。当轧制温度继续增加到 500 °C 时, 断裂伸长率下降到 3.28%。在材料服役过程中, 极限抗拉强度和断裂伸长率都是非常重要的性能, 只有这两方面同时都有较好的性能时, 该复合材料才能更好地满足行业的需求。当轧制温度为 450 °C, 较高的极限抗拉强度 (273 MPa) 和较好的延展性 (4.06%) 同时获得, 这说明 450 °C 为该复合材料较好的轧制温度。

从图 6 可以看出, 经过 3 个道次的热轧之后, Cu/Al/Cu 层状复合材料各层之间未出现断裂的情况。在常温条件下单向拉伸断裂之后, 界面之间的结合形态有很大差异, 这也反映了不同工艺加工的层状复合材料界面结合强度有很大的差别。在 350 °C 条件下轧制的材料断裂之后层与层之间的空隙最大, 说明初始材料的层间结合能力最弱。而在 450 °C 条件下, 轧制的材料断裂之后层间仍保持较为紧密的结合, 反映了在该条件下轧制的材料层与层之间有较好的结合强度。

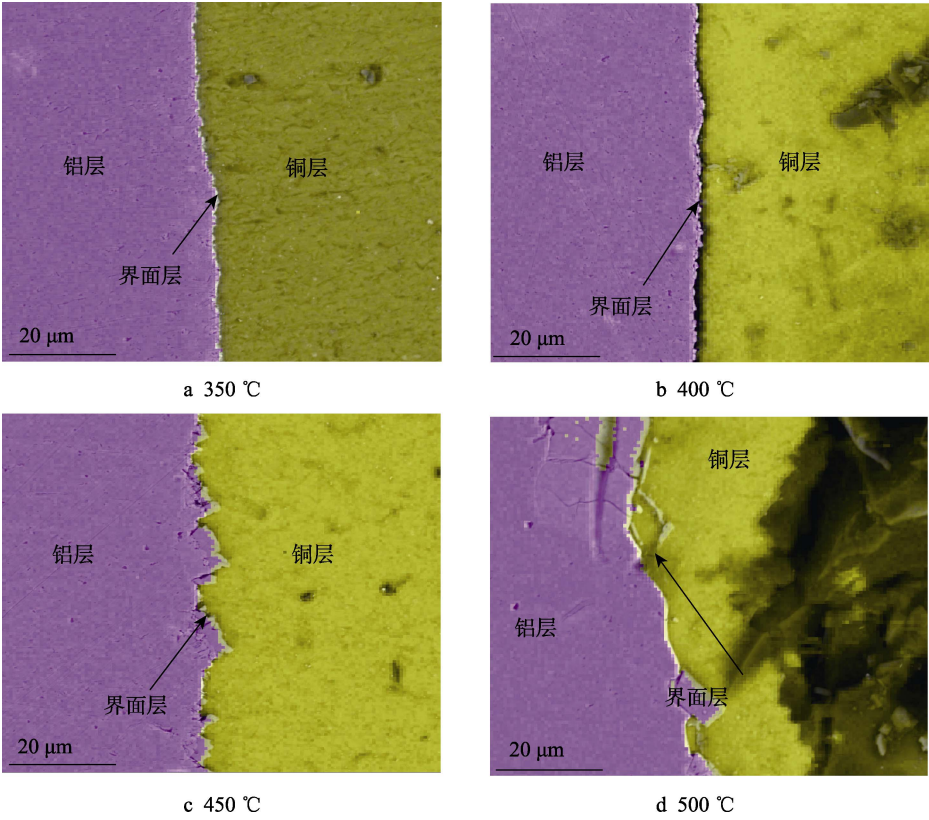


图 3 不同温度条件下轧制的层状复合材料界面层的元素分布扫描结果

Fig.3 Mapping results of the laminated composites near the intermetallic layers after rolling at different temperature

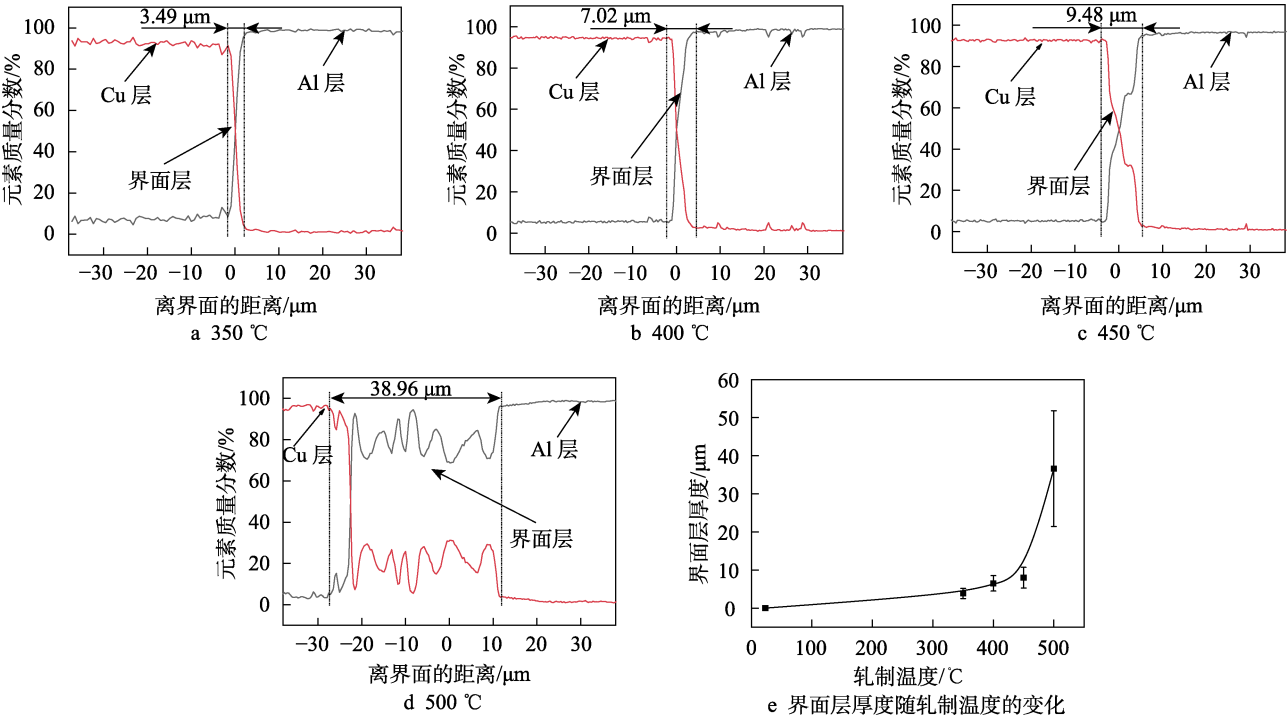


图 4 在不同温度条件下轧制后的层状复合材料 Cu/Al 界面处的 Cu 和 Al 元素分布

Fig.4 Element distribution of Cu and Al of laminated composites near Cu/Al interface after rolling at different temperature

3 讨论

界面层的形成是通过高温和轧制力的驱动，Cu

和 Al 原子向异种基体中扩散，从而形成界面化合物层。原子在另一种基体中的扩散速率是影响界面层成分分布和形态的关键因素。在一定温度条件下，轧制

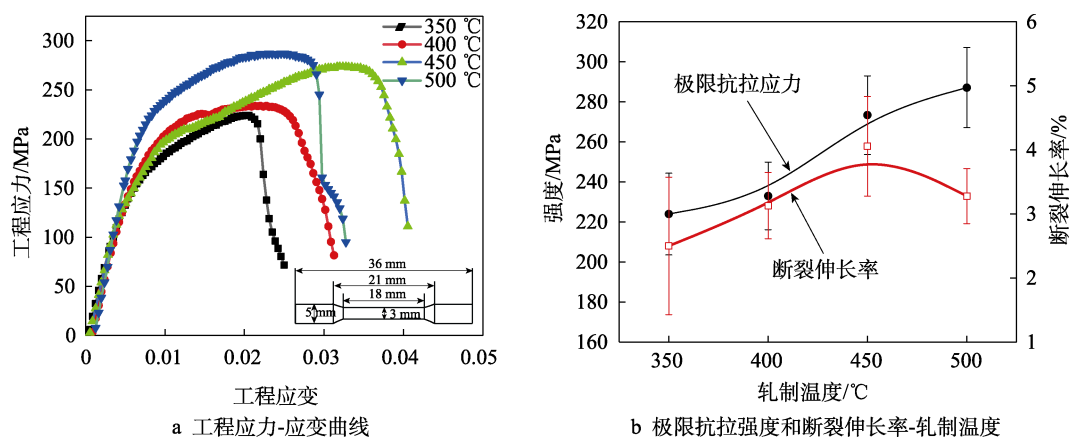


图 5 在不同温度条件下轧制后的 Cu/Al/Cu 层状复合材料的拉伸性能
Fig.5 Tensile properties of Cu/Al/Cu laminated composites after rolling at different temperature

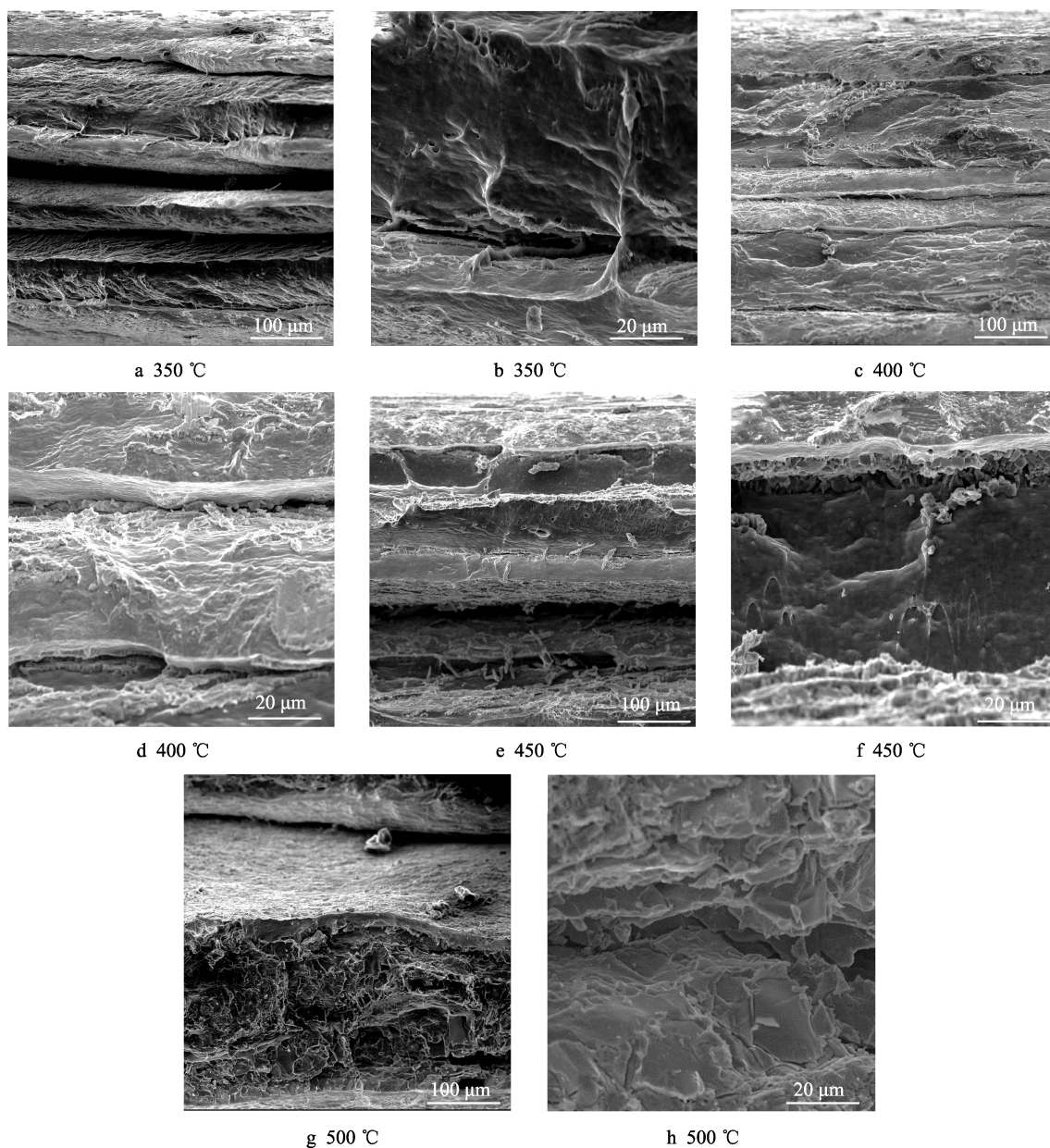


图 6 不同温度条件下轧制的 Cu/Al/Cu 层状复合材料断口形貌
Fig.6 Fracture morphology of Cu/Al/Cu laminated composites after rolling at different temperature

力驱使 Al 和 Cu 沿着位错通道扩散, 占据对方的位置, 从而减少空位^[18]。扩散的速率取决于获得足够能量的活化原子数量。扩散系数可通过以下方程得到^[19]:

$$D = D_0 \exp(-\Delta E_a / RT) \quad (1)$$

式中: D 为扩散系数; D_0 为扩散常数; ΔE_a 为扩散活化能 (J/mol); R 为气体常数; T 为热力学温度 (K)。从式 (1) 明显得出, 轧制温度处于自然指数函数的指数部分, 这说明扩散系数对温度是非常敏感的。随着轧制温度的增加, Cu 和 Al 原子获得了足够的能量来越过这些障碍, 导致该复合材料的中间界面金属间化合物层厚度急剧增加。在 500 °C 的累积叠轧过程中, Cu 和 Al 原子在界面金属间化合物层形成了固溶体。

热轧过程中, 随着轧制温度的升高, Al 层和 Cu 层中发生动态再结晶和晶粒长大的程度增加, 平均晶粒尺寸逐渐增加。根据 Hall-Petch 公式, 单层材料的力学性能会随着轧制温度的增加而逐渐下降, 伸长率逐渐提高, 然而, 该复合材料的拉伸强度随着轧制温度的增加而逐渐增加, 这是由于一种金属间界面化合物层厚度的逐渐增加导致的^[15]。层状复合材料的中间界面层包含了 Al_2Cu , AlCu , Al_3Cu_4 , Al_4Cu_9 等^[16]。各种 AlCu 间金属化合物的硬度是明显高于 Al 基体和 Cu 基体的^[17]。随着轧制温度的升高, 金属间化合物层对材料的强化作用越来越强, 从而导致材料的极限抗拉强度逐渐增加。

轧制温度增加导致的界面层的变化见图 7。当轧制温度从 350 °C 增加到 450 °C 时, 锯齿形的界面出现, 界面层的表面积明显增加, 这导致材料在承受单向拉伸过程中, 界面层之间的变形抗力增加, 增加了该复合材料 2 层之间的协调变形能力, 从而提高材料的断裂塑性。当温度再次升高时, 出现了 Al 和 Cu 的固溶区, 导致这种强化作用减弱。

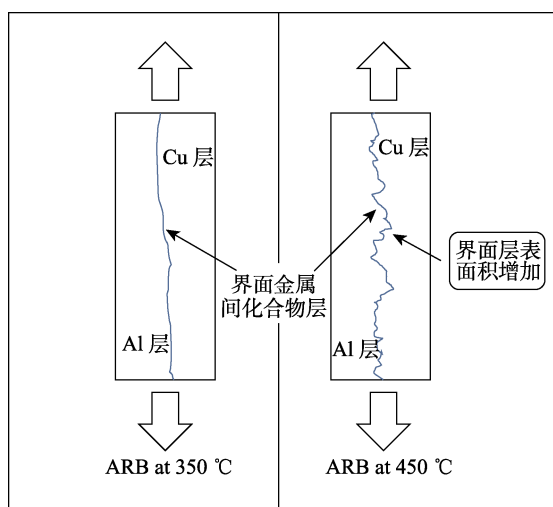


图 7 不同温度条件下轧制的 Cu/Al/Cu 层状复合材料界面层示意

Fig.7 Diagram for interface of Cu/Al/Cu laminated composites after rolling at different temperature

4 结论

对不同温度条件下 (350, 400, 450, 500 °C) 轧制的 Cu/Al/Cu 层状复合材料的中间界面金属间化合物层的形状和元素分布, 及其对力学性能的影响进行了深入地研究。通过以上实验结果和讨论得出以下结论。

1) 当轧制温度低于 400 °C 时, 界面中间氧化物层相对比较平整; 当轧制温度升高到 450 °C, 界面金属间氧化物层的形状变成了锯齿形。

2) 随着轧制温度的增加, 元素的扩散速率急剧增加, 导致界面层金属间化合物的厚度急剧增加。这种界面层的急剧变化会对该 Cu/Al/Cu 层状复合材料的力学性能有很大的影响。轧制温度为 450 °C 时, 材料同时具有较好的强度 (273 MPa) 和断裂伸长率 (4.06%)。

参考文献:

- [1] YUAN Yuan, CHEN Peng-wan, AN Er-feng, et al. Experimental Study on the Explosive Welding of Thin Al/Cu Composite Plates[J]. Materials Science Forum, 2018, 910: 52—57.
- [2] MONIREH A, REZA T M, MORTEZA S, et al. Grain and Texture Evolution in Nano/Ultrafine-Grained Bi-metallic Al/Ni Composite during Accumulative Roll Bonding[J]. Metals, 2018, 53(17): 12553—12569.
- [3] SUN Y, AINDOW M, HEBERT R J, et al. High-Pressure Torsion-Induced Phase Transformations and Grain Refinement in Al/Ti Composites[J]. Journal of Materials Science, 2017, 52(20): 12170—12184.
- [4] CHEN M C, HSIEH H C, WU W. The Evolution of Microstructures and Mechanical Properties during Accumulative Roll Bonding of Al/Mg Composite[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2006, 416(1/2): 169—172.
- [5] TAYYEBI M, EGHBALI B. Study on the Microstructure and Mechanical Properties of Multilayer Cu/Ni Composite Processed by Accumulative Roll Bonding[J]. Materials Science and Engineering A, 2013, 559: 759—764.
- [6] DENG Guan-yu, LU Cheng, SU Li-hong, et al. Investigation of Sample Size Effect on the Deformation Heterogeneity and Texture Development during Equal Channel Angular Pressing[J]. Computational Materials Science, 2013, 74: 75—85.
- [7] YU Hai-liang, DU Qing-lin, GODBOLE A, et al. Improvement in Strength and Ductility of Asymmetric-Cryorolled Copper Sheets under Low-Temperature Annealing[J]. Computational Materials Science, 2018, 49: 4398—4403.
- [8] WANG Hui, SU Li-hong, YU Hai-liang, et al. A New Finite Element Model for Multi-Cycle Accumulative Roll Bonding Process and Experiment Verification[J]. Materials Science and Engineering A, 2018, 726:

- 93—101.
- [9] LI Xiao-bing, ZU Guo-yin, WANG Ping. Microstructural Development and Its Effects on Mechanical Properties of Al/Cu Laminated Composite[J]. Transactions of Nonferrous Metals Society of China, 2015, 25(1): 36—45.
- [10] LEE J, PARK J, JEONG H. Effect of Strain on Mechanical and Microstructural Properties of Al/Cu Claddings during Caliber-Rolling[J]. Materials Letters, 2018, 222: 122—125.
- [11] GUO Ya-jie, LIU Gui-wu, JIN Hai-yun, et al. Intermetallic Phase Formation in Diffusion-Bonded Cu/Al Laminates[J]. Journal of Materials Science, 2011, 46(8): 2467—2473.
- [12] CHANG Dong-xu, WANG Ping, ZHAO Ying-ying. Effects of Asymmetry and Annealing on Interfacial Microstructure and Mechanical Properties of Cu/Al Laminated Composite Fabricated by Asymmetrical Roll Bonding[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2020, 815(30): 152453.
- [13] 罗龙, 王宝峰, 李丽荣. 铜/铝热轧扩散复合界面扩散的分子动力学模拟[J]. 热处理技术与装备, 2011, 32(2): 55—60.
- LUO Long, WANG Bao-feng, LI Li-rong. Molecular Dynamics Simulation of Diffusion Behavior at the Interface of Hot Rolling-Diffusion Bonding of Cu/Al[J]. Heat Treatment Technology and Equipment, 2011, 32(2): 55—60.
- [14] KIM J S, LEE D H, JUNG S P, et al. Novel Strip-Cast Mg/Al Sheets with Excellent Tensile and Interfacial Bonding Properties[J]. Scientific Reports, 2016, 6: 26333.
- [15] WANG Lin, LIU Juan, KONG Charlie, et al. Sandwich-Like Cu/Al/Cu Composites Fabricated by Cryorolling[J]. Advanced Engineering Materials, 2020, 22(10): 2000122.
- [16] CHEN C Y, HWANG W S. Effect of Annealing on the Interfacial Structure of Aluminum-Copper Joints[J]. Materials Transactions, 2007, 48(7): 1938—1947.
- [17] BOUKHRIS N, LALLOUCHE S, DEBILI M Y, et al. Microhardness Variation and Related Microstructure in Al-Cu Alloys Prepared by HF Induction Melting and RF Sputtering[J]. European Physical Journal Applied Physics, 2009, 45: 30501.
- [18] BAIK S C, ESTRIN Y, KIM H S, et al. Dislocation Density-Based Modeling of Deformation Behavior of Aluminum under Equal Channel Angular Processing[J]. Materials Science and Engineering A, 2003, 351(1/2): 86—97.
- [19] MEHRER H. Diffusion in Solids: Fundamentals, Methods, Materials, Diffusion-Controlled Processes[M]. Springer, 2007.