

文章编号:1000-582X(2010)05-083-06

压力对铍/铜/HR-1 不锈钢热静压组织结构的影响

李 辉^{1,3}, 康人木¹, 周上祺¹, 孔纪兰¹, 张鹏程²

(1. 重庆大学 材料科学与工程学院, 重庆 400044; 2. 表面物理与化学国家重点实验室, 四川 绵阳 621907;
3. 重庆市计量质量检测研究院, 重庆 401121)

摘 要:在 800 °C 下, 分别在 20、30、40、50 MPa 压力下对铍/铜/HR-1 不锈钢进行真空热静压扩散连接。利用光学金相、显微硬度计、扫描电镜(SEM)、俄歇电子能谱(AES)和 X 射线衍射仪(XRD)分析了接头扩散区的微区成分和组织结构; 探讨了扩散区成分, 组织结构与压力的关系。研究表明: 压力的作用将使试样产生动态形变再结晶和扩散性蠕变, 也能影响扩散焊区的扩散宽度、晶粒大小和金属间化合物数量; 单轴向压力作用下, 基材或扩散焊区出现织构; 降低铍/铜/HR-1 不锈钢接头性能的主要因素是金属间化合物优先沿晶界生成, 适当降低压力或缩短热压时间可减少金属间化合物的形成, 改善连接性能。

关键词:铍; 铜; HR-1 不锈钢; 压力; 扩散连接; 组织结构

中图分类号: TG457.1

文献标志码: A

Pressure effects on the microstructure of Be/Cu/HR-1 stainless steel by hot pressing

LI Hui^{1,3}, KANG Ren-mu¹, ZHOU Shang-qi¹, KONG Ji-lan¹, ZHANG Peng-cheng²

(1. College of Materials Science and Engineering, Chongqing University, Chongqing 400044, P. R. China;
2. National Key Laboratory for Surface Physics and Chemistry, Sichuan Mianyang 621907, P. R. China;
3. Chongqing Academy of Metrology and Quality Inspection, Chongqing 401121, P. R. China)

Abstract: Be/Cu/HR-1 stainless steel is bonded at 800 °C by hot pressing under different pressure. Optical microscopy, microhardness tester, scanning electron microscopy (SEM), auger electron spectroscopy (AES) and X-ray diffraction (XRD) were used to study microstructure and elements distribution of the steel at the bonded area. The relationship of composition and microstructure with pressure is discussed. The results show that pressure will lead to dynamic recrystallization and diffusion creep, and also has effect on the width of diffusion bonding zones, sizes of grain and amounts of intermetallic compound at the diffusion bonding zones. Texture is formed in matrix or at diffusion bonding zones under uniaxial pressure. The intermetallic compound formed along grain boundary is a main reason for causing breakdown of the bonding area. By the reducing holding pressure or time, the intermetallic compound can be reduced and the bonding strength can be improved.

Key words: beryllium; copper; HR-1 stainless steel; pressure; diffusion bonding; microstructure

收稿日期: 2009-12-15

基金项目: 国家自然科学基金和中国工程物理研究院联合基金资助项目(10076025)

作者简介: 李辉(1963-), 男, 重庆大学博士研究生, 重庆市计量质量检测研究院高级工程师, 主要从事异种金属的扩散连接的研究, (E-mail) lihui@cqu.edu.cn.

随着材料科学的发展,新材料的不断出现,在生产应用中,经常遇到新材料本身或与其他材料的连接问题。一些新材料和一些特殊的高性能构件材料的制造,往往要求把性能差别较大的异种材料,如金属与陶瓷、铝与钢等连接在一起,用传统的焊接方法,很难实现可靠的连接。为了适应这种要求,扩散焊技术成为连接领域的研究热点。近年来,国内外对耐热合金、钛合金、铝合金、陶瓷材料、铍/钢、铍/铜合金、铜合金/钢、铜合金/铜合金、铜合金/铝合金、铝合金/钢、钢/钢等的真空热静压扩散连接开展了研究^[1],主要集中在异种金属的直接扩散连接^[2-6]和为了改善连接性能在异种金属间加中间过渡层扩散连接^[7-12]。其中,扩散连接时间及温度对扩散连接接头质量影响的研究^[2-5,7-10]和温度、时间及压力对扩散连接行为的研究较多^[6,11-12],而在压力方面的影响深入研究尚不多。

铍具有密度小,比强度和比热容高以及导热性好等优点,被广泛应用于核能、航空和航天工业。但铍的延展性差,脆性大,与不锈钢的相容性差,其与不锈钢直接扩散焊生成大量的脆性金属间化合物^[13],降低了接头性能,致使铍/HR-1 不锈钢扩散连接存在较大困难。因此,笔者采用铜中间过渡层来改善连接性能,从热静压压力对连接接头的关系,探讨应用真空热静压扩散连接技术进行铍/铜/HR-1 不锈钢连接的工艺,以期优化参数,得到高质量的连接接头。

1 试验材料及方法

1.1 材料

铍材为国产热等静压棒料,其成分如表 1 所示。HR-1 不锈钢(SS)为奥氏体抗氢不锈钢,杂质含量小于 0.17%,其主要合金元素含量如表 2 所示。两种材料均加工成 $\phi 10 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ 的试样,采用不锈钢试样端头待连接面电镀沉积 $50 \mu\text{m}$ 厚的纯铜层作为中间层材料进行扩散连接。

表 1 国产热压铍杂质的质量分数 $\mu\text{g/g}$

Be	Fe	Al	Ni	Cr	Mn	Pb	Mg	O
余量	1 800	780	32	100	130	10	1 200	7 500

表 2 HR-1 不锈钢合金元素的质量分数 %

Fe	Cr	Ni	Mo	Mn
余量	17.20	14.27	2.19	1.05

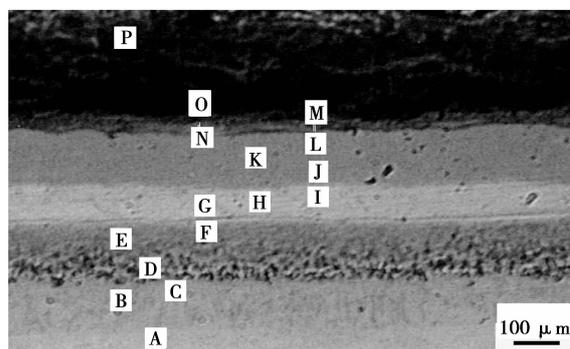
1.2 扩散连接工艺

将铍和不锈钢的待连接端面机械打磨抛光,与不锈钢试样端头待连接面上电镀沉积 $50 \mu\text{m}$ 厚的纯铜层后用 15% HCl 溶液酸洗处理、用水冲洗并滴酒精吹干,然后在 Greeble 1500 热模拟试验机上进行扩散连接。试验工艺参数压力为:20、30、40、50 MPa;温度 $800 \text{ }^\circ\text{C}$;保温 2 h 后随炉冷至室温。

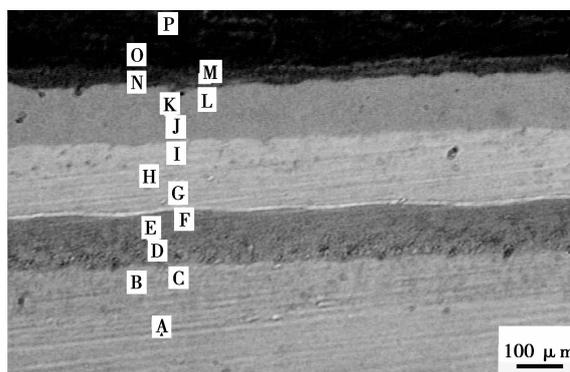
1.3 扩散区分析方法

将扩散连接后样品沿轴向剖开,用金相显微镜进行接头区组织分析,用俄歇谱仪在磨制面沿轴向扫描分析扩散区成分,用显微硬度计对剖面进行显微硬度梯度测定,用扫描电镜观察拉伸断口的形貌,用 X 射线衍射仪对接头进行剥层物相分析。

2 试验结果与分析



(a) 40 MPa



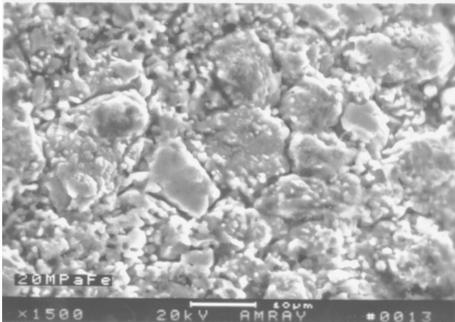
(b) 50 MPa

图 1 试样扩散连接接头显微组织

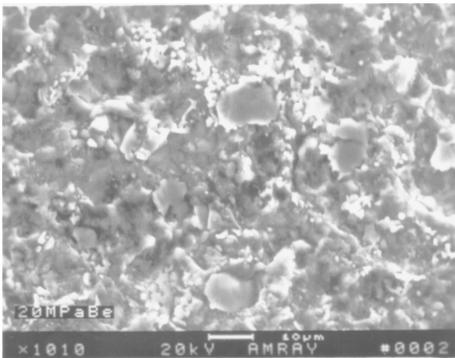
2.1 热静压扩散连接界面区组织及断口形貌

热静压扩散连接后线切割加工时,压力 20 MPa 和 30 MPa 的试样在扩散连接区断裂,压力 40 MPa 和 50 MPa 的试样连接较好。由图 1 可知,扩散连接区为层状组织,ABC 为不锈钢区,P 为铍区,随压力增加 D-O 层扩散距离增加。由图 2-5 断口形貌可见,4 个试样都是冰糖状断口,金属间化合物沿晶界

生长并相互连接,最后形成三维网状结构。晶界,特别是不锈钢侧的晶界有微裂纹或沟槽。试样断裂形式是沿晶脆断。

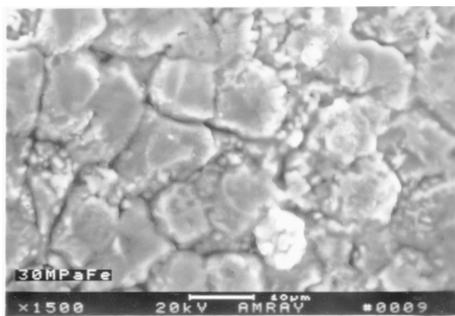


(a) 不锈钢侧

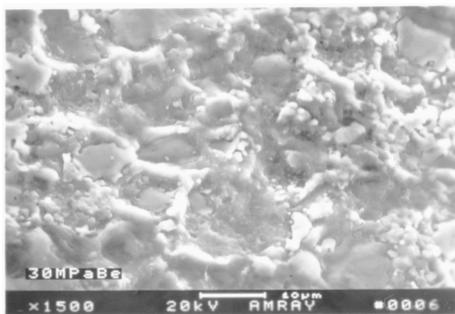


(b) 铍侧

图 2 20 MPa 试样断口形貌

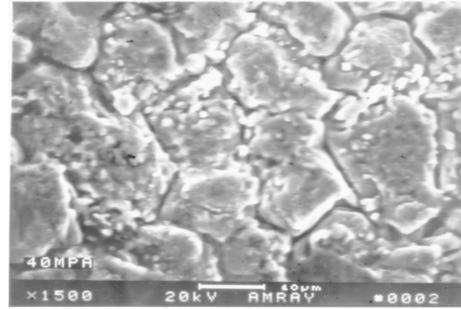


(a) 不锈钢侧

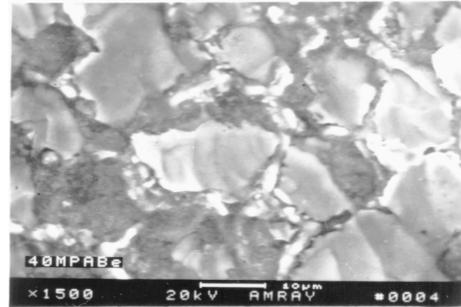


(b) 铍侧

图 3 30 MPa 试样断口形貌

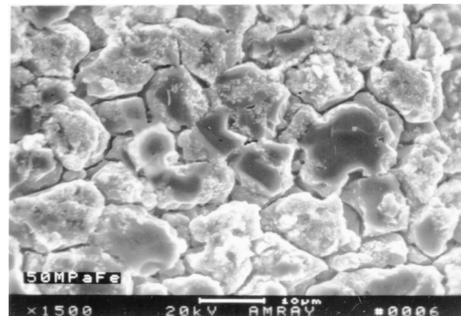


(a) 不锈钢侧

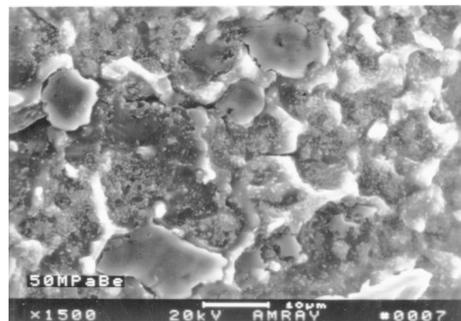


(b) 铍侧

图 4 40 MPa 试样断口形貌



(a) 不锈钢侧

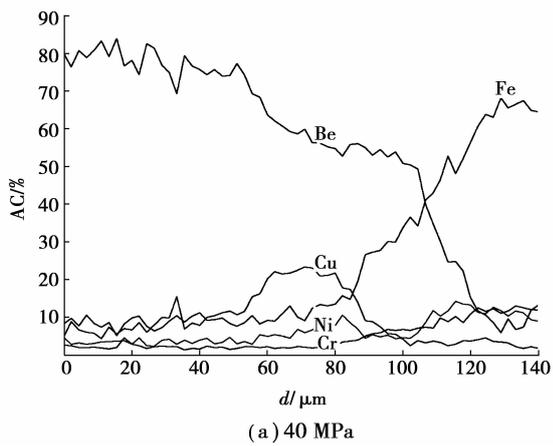


(b) 铍侧

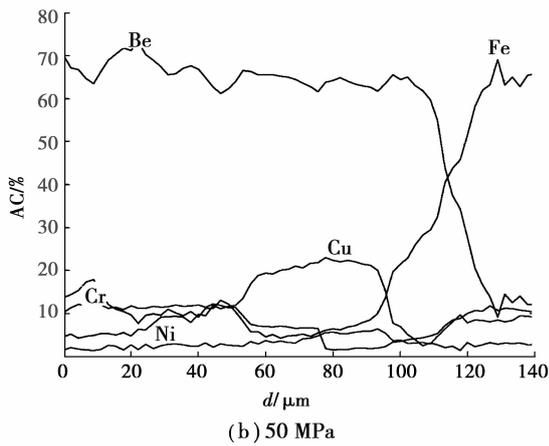
图 5 50 MPa 试样断口形貌

2.2 扩散连接接头区成分分布

图 6 为 40 MPa 和 50 MPa 热静压后 Be、Fe、Cr、Ni 和 Cu 5 种元素沿轴向在扩散区的分布,如取铍浓度 12%~90% 区间为扩散宽度,40 MPa 和 50 MPa 压力下的扩散宽度分别为 120 μm ,140 μm 。

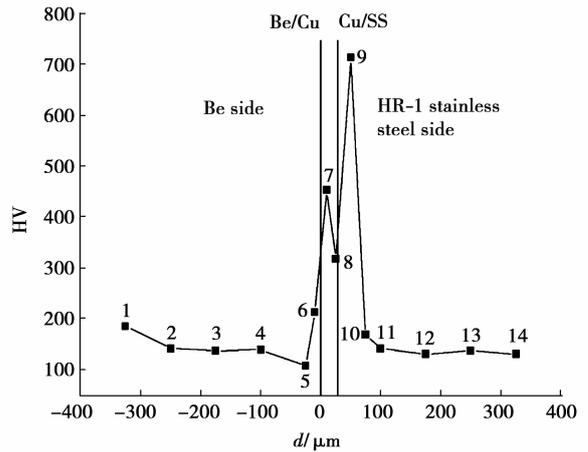


(a) 40 MPa

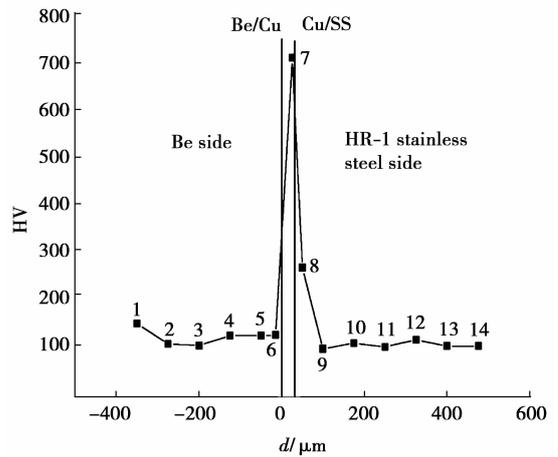


(b) 50 MPa

图 6 试样扩散区 5 元素分布



(b) 40 MPa

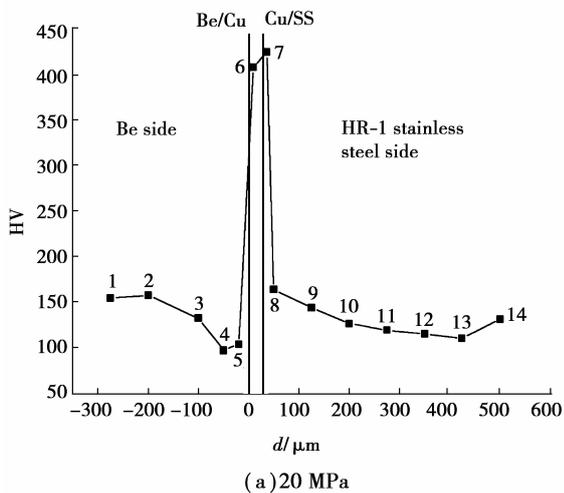


(c) 50 MPa

图 7 试样扩散区的显微硬度分布

2.3 扩散连接区的显微硬度

由图 7 可知,在铍、不锈钢与铜中间层的界面处 (Be/Cu 与 Cu/SS),显微硬度出现大的跃变,原铜中间层区都是高硬度区。



(a) 20 MPa

2.4 扩散连接区的物相分析

表 3 列出了铍的 ASTM 卡相对强度值、实验测定未热静压铍的 X 射线衍射相对强度值和热静压后从铍侧断口向铍基体各次剥层的 X 射线衍射相对强度值 I/I_0 。图 8 是压力为 50 MPa 试样的铍侧和不锈钢侧断面的 X 射线衍射物相分析。

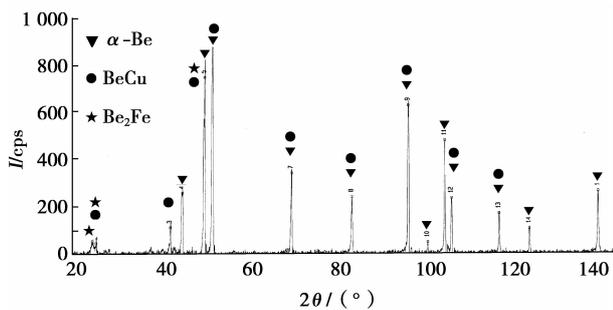
3 讨论

3.1 扩散连接区的物相组成

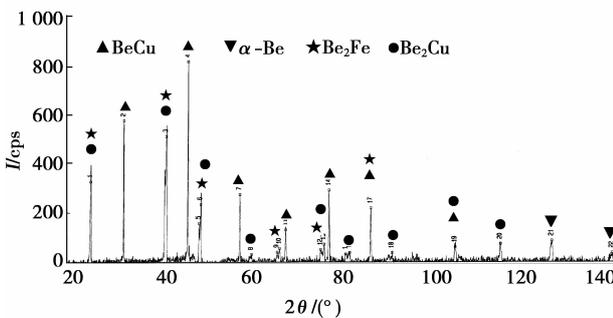
图 8 中 50 MPa 热静压试样断口物相分析说明,金属间化合物的形成和分布与 Be-Cu 二元相图一致。Be-Cu 二元相图^[14]表明,800 °C 下,随 Be 质量分数的增加,BeCu 和 Be₂Cu 依次生成。从图 2-5 断口形貌可知,铍侧断口以脆性的 α-Be 为基,脆性的金属间化合物 Be₂Cu 和 Be₂Fe 沿晶界分布;不锈

表 3 铍 X 射线衍射线相对强度 I/I_0

剥层深度/ μm	HKL											
	100	002	101	102	110	103	200	112	201	004	202	104
0	27	78	100	35	25	65	5	50	24	18	11	27
30	16	47	71	16	11	100	10	94	52	33	23	54
55	7	22	34	8	5	98	8	100	59	33	26	52
75	33	100	93	26	14	44	2	27	16	9	5	
ASTM 卡	28	25	100	11	12	10	2	14	10	2		
未热静压铍	1	70	100	20	14	29	5	22	14	9	7	14



(a) 铍侧断口物相分析



(b) 不锈钢侧断口物相分析

图 8 50 MPa 试样断口物相分析

钢侧断口以脆性的 BeCu 为基,脆性金属间化合物 Be₂Cu 和 Be₂Fe 沿晶界分布。金属间化合物相间体积变化而产生内应力,造成应力集中和晶间裂纹。这说明,降低接头性能的物相都是脆性很大的 α -Be 和金属间化合物 BeCu、Be₂Cu 和 Be₂Fe。如果适当缩短扩散时间或降低压力,减少金属间化合物的形成,降低应力梯度,从而可望提高连接性能。

3.2 压力对组织形貌的影响

由图 2-5 断口形貌可见,4 种压力下都是脆性断口。虽然都是脆性断口,但晶粒大小截然不同。在 20 MPa 热静压时,不锈钢侧断口基体 BeCu 的晶粒极不均匀,大小晶粒所占空间几乎各一半;在 30 MPa 时,不仅晶粒长大,而且多数都是大晶粒。在 40 MPa 时,晶粒进一步长大,而且有的大晶粒中

包含若干小晶粒;当增加为 50 MPa 时,BeCu 晶粒反而减小,但每一个晶粒内部结构都比较致密。上述结果表明,热静压过程中存在临界应变变量,当达到这一临界应变变量时,基体晶粒最大。在铍侧断口基体 α -Be 的晶粒度也有类似变化,即在 40 MPa 热静压时得到的铍基体晶粒最大。试验结果说明,压力的作用,不仅仅是使连接界面的接触面积逐渐扩大,还将使试样产生扩散再结晶^[15-16]、动态形变再结晶和扩散性蠕变。因此,控制压力与时间可调整基体晶粒大小,提高接头性能。

3.3 压力对晶粒取向的影响

从表 3 可知,经热静压后,断口上的(103)和(112)晶面的衍射线强度增强,并随剥层深度的增加而递增,当剥层到 55 μm 时,强度达到(或接近)100%。同时,最强线(101)和(002)的强度逐渐递减,说明热静压过程中,在靠铍侧断口 55 μm 范围内,主要有[103]、[112]丝织构。当剥层至 75 μm 时,(103)、(112)的衍射强度已经下降,而此时(002)的相对强度为 100%,(101)的相对强度上升至 93%,表明此时出现了[002]丝织构。总之,说明热静压扩散区各层的晶粒取向是变化的,这种变化除受压力、温度的影响外,还与各层的相组成和分布以及新相的形核、长大等内在因素有关。

3.4 压力对扩散的影响

从图 6 热静压后 5 元素沿轴向在扩散区的分布结果可知,随压力增加扩散距离增加。同时铜中间层极大地阻碍了 Cr、Ni 合金元素向 Be 的扩散,减少了多种脆性金属间化合物的生成,阻止了金属间化合物 Be₂₁Ni₅、Be₁₂Cr 和 NiBe^[13]等在铍基体内的生成,有利于提高连接性能。根据扩散连接理论,压力升高首先促使连接表面微观凸起部分产生塑性变形,增加接触面积,加快扩散速度,因而扩散宽度增大。由于晶界本身就是空位的源和阱,材料受压时,与应力垂直的晶界受压缩易于接受空位,与应力平

行的晶界受拉伸易于放出空位,因此在应力作用下就发生空位的扩散流动,在反方向发生金属原子的流动,即扩散。扩散的结果必然会增加压缩方向的应变,这就是扩散性蠕变。压力越高,扩散蠕变速度越大。由此表明,外力的作用促进原子在晶界上迁移和扩散,晶界成了扩散的主要通道,更易形成金属间化合物。随压力增加金属间化合物增加,使界面的脆性加大,导致结合性能下降。

3.5 压力对金属间化合物形成的影响

Be/Cu/HR-1 不锈钢界面区域显微硬度差异大,其显微硬度的变化,可以定性的反映本试验扩散过程中新相的生成情况以及它们的相对数量。在扩散连接试验中,扩散元素的扩散通量在界面处最大,脆性的金属间化合物在此区域集中生成,相对数量最高。随着扩散的进行,它们的扩散通量也逐渐减少,显微硬度会呈下降趋势或保持微小波动。从显微硬度分布图 7 可知,30 MPa 试样的显微硬度峰值(423 HV)远低于 40 MPa 和 50 MPa 试样的显微硬度峰值(714 HV),其硬度峰值范围分别为 70、125、125 μm 。分析结果说明,随着压力的增加,扩散层宽度和金属间化合物显著增加,使界面的脆性加大。

4 结 论

1) 金属间化合物优先沿晶界生成,形成脆性中间相,造成应力集中和微裂纹,是降低 Be/Cu/HR-1 不锈钢接头质量的主要原因。

2) Cu 作为中间层材料有效地阻挡了不锈钢中合金元素 Ni、Cr 等向钛基体的扩散,减少了脆性中间相的生成,提高了接头性能。

3) 随着压力的增加,扩散速度及扩散层宽度增大,更易形成金属间化合物。如果适当缩短扩散时间或降低压力,可减少脆性金属间化合物的形成,提高连接性能。

4) 压力的作用使试样产生动态形变再结晶和扩散性蠕变,也能影响扩散连接区晶粒大小。单轴向压力作用下,基材或扩散连接区出现织构。

参考文献:

- [1] 李亚江,王娟,夏春智. 特种焊接技术及应用[M]. 2 版. 北京:机械工业出版社,2008:133-179.
- [2] KHEDER A R I, AKBAR A A, JUBEH N M. Diffusion welding of OFHC copper to austenitic stainless steel 316L[J]. International Journal for the Joining of Materials,2004,16(4):97-102.
- [3] RYBIN V V, GREENBERG B A, ANTONOVA O V, et al. Examining the bimetallic joint of orthorhombic titanium aluminide and titanium alloy (diffusion

welding)[J]. Welding Journal,2007,86(7):205-210.

- [4] ARIK H, AYDIN M, KURT A. Weldability of Al4C3-Al composites via diffusion welding technique [J]. Materials and Design,2005,26(6):555-560.
- [5] LIU S Y. Joints performance of diffusion bonding between pure Cu and stainless steel and dynamic analysis of atomic diffusion [J]. Transactions of the China Welding Institution,2009,30(9):101-104.
- [6] KARFOUL M K, TATLOCK G J., MUNARY R T. The behavior of iron and aluminium during the diffusion welding of carbon steel to aluminum [J]. Journal of Materials Science,2007,42(14):5692-5699.
- [7] 陈文华,秦展琰,沈以赴. 1420 铝锂合金扩散焊工艺及中间层材料对接头性能的影响[J]. 焊接学报,2005,26(10):101-104.
- CHENG WEN-HUA, QIN ZHAN-YAN, SHEN YI-FU. Effect of process parameters interlayer on properties of 1420Al-Li alloy diffusion bonded joint [J]. Transactions of the China Welding Institution, 2005,26(10):101-104.
- [8] WANG X S, ZHANG P C, XIAN X B. Interface characterization of Be/CuCrZr joints by hot isostatic pressing bonding [J]. Rare Metal Materials and Engineering,2008,37(12):2161-2164.
- [9] TORUN O, CELIKYUREK I. Microstructure and strength of diffusion-bonded joint between nickel aluminide Ni75Al25 and AISI 316 L stainless steel using a nickel interlayer [J]. Kovove Materialy-Metallic Materials,2009,47(4):263-267.
- [10] QIN B, SHENG G M, HUANG J W, et al. Application of nickel nano-particles in the diffusion bonding of titanium alloy and stainless steel [J]. Nuclear Power Engineering,2004,25(5):457-462.
- [11] 赵丽敏,刘黎明,徐荣正,等. 镁合金与铝合金的夹层扩散焊连接[J]. 焊接学报,2007,28(10):9-12.
- Zhao LI-MIN, Liu LI-MING, XU RONG-ZHENG, et al. Diffusion bonding of Mg/Al alloy with Zn interlayer metal [J]. Transactions of the China Welding Institution, 2007,28(10):9-12.
- [12] 杨雄,易松林,冉小丰,等. 水平射流钻头真空扩散焊中间层材料对接头性能的影响试验[J]. 石油天然气学报,2008,30(5):152-154.
- YANG XIONG, YI SONG-LING, RAN XIAO-FENG, et al. Effect of interlayer on properties of vacuum diffusion welding joint [J]. Journal of Oil and Gas Technology,2008,30(5):152-154.
- [13] 孔纪兰. 铍/不锈钢扩散连接的研究[D]. 重庆:重庆大学,2002.
- [14] [日]长崎诚三,平林真. 二元合金状态图集[M]. 刘安生,译. 北京:冶金工业出版社,2004.
- [15] SCHWARZ S M, KEMPSHALL B W, GIANNUZZI L A. Effects of diffusion induced recrystallization on volume diffusion in the copper-nickel system [J]. Acta Materialia,2003,51(10):2765-2766.
- [16] SOFFAA W A, LAUGHLIN D E. High-strength age hardening copper-titanium alloys redivivus [J]. Progress in Materials Science,2004,49(3/4):347-366.

(编辑 王维朗)