

# 高压扭转制备钨铜梯度材料的仿真和实验研究

王 雪, 陈广清, 王明明, 严思梁, 薛克敏

(合肥工业大学 材料学院, 安徽 合肥 230009)

**摘 要:** 采用 ABAQUS 软件对钨铜材料高压扭转变形进行有限元模拟, 分析了扭转变形过程中的应力场分布和应变累积状态, 以及压力和温度对界面层应变累积的影响。模拟结果表明, 铜在高压扭转 (HPT) 变形过程中为剪切变形的主要承受方, 钨未得到充分的剪切变形, 界面层应变累积最大; 较高的温度和压力有利于界面层的应变累积, 但温度的提升效果并不显著, 并且高压力和高温度易导致铜反挤和模具失效。在 300 °C、1 GPa、扭转 5 圈的工艺条件下采用高压扭转工艺制备了界面连接质量良好的钨铜梯度材料。实验结果表明, 随着扭转半径的增大, 钨和铜的组织均得到显著细化, 平均晶粒尺寸分别约为 32.6 和 0.28  $\mu\text{m}$ , 并且在界面处出现晶粒尺寸为 4.8~6.75  $\mu\text{m}$  的铜组织过渡层; 界面处钨和铜结合良好, 钨和铜元素的扩散距离分别约为 1.74 和 2.59  $\mu\text{m}$ 。铜的显微硬度 (HV) 由初始态的 790 MPa 提升至 1310 MPa, 界面处钨的显微硬度由初始的 3470 MPa 提高到 4240 MPa, 表明大变形条件下的晶粒细化和缺陷累积有利于界面连接和性能提升。

**关键词:** 钨铜梯度材料; 高压扭转; 有限元模拟; 微观组织; 显微硬度

中图分类号: TG376; TB331

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2022)04-1371-07

钨铜复合材料是由高熔点、低膨胀系数、高强度的钨和高导热性能的铜构成的两相假合金, 兼具钨和铜的本质物理特点, 是优良的电子封装材料<sup>[1]</sup>。随着微电子器件的大功率化发展, 相对于均质分布的钨铜复合材料, 组织和性能呈现连续或阶梯型变化的钨铜功能梯度材料更能满足器件小型化发展的要求<sup>[2,3]</sup>。目前制备钨铜功能梯度材料的方法主要是基于钨粉与铜粉的粉末冶金成形技术和基于扩散原理的整体连接技术<sup>[4-9]</sup>。粉冶材料致密度低, 铜相组织粗大、分布不均匀且制备过程中易引入杂质; 整体连接技术需要在钨与铜合金之间添加中间适配层材料以缓解热膨胀系数不匹配产生的热应力, 而适配材料的加入会增大界面连接面积, 降低钨铜材料整体的综合性能。

研究表明, 在钨铜复合材料的现有制备方法中, 机械合金化制备的纳米晶粉末可以改善钨和铜的界面润湿性, 取代活化元素对烧结致密度的提升作用<sup>[10]</sup>; 而热等静压技术利用高温、高压和长时间保温状态下的原子扩散可以实现异种金属的整体连接<sup>[11]</sup>; 这 2 种工艺中纳米结构的界面活性和压力对扩散连接的促进作用, 为制备高性能钨铜功能梯度材料提供了新的思路和方法, 即大塑性变形工艺 (severe plastic deformation, SPD)。高压扭

转 (high-pressure torsion, HPT) 作为大塑性变形工艺的典型代表, 在高静水压力下通过模具旋转对材料施加剪切变形, 不仅可以细化晶粒尺寸至亚微米甚至纳米尺度, 而且可以在较低温度下实现 Al-Cu、Al-Mg 等异种金属间的扩散连接<sup>[12-14]</sup>, 但对于性能差异巨大的钨和铜的功能梯度材料制备在各国相关研究中尚未见报道。

本研究借助 ABAQUS 有限元软件, 对钨铜材料进行了不同温度和压力下的高压扭转变形模拟, 分析了界面处的应变累积, 为实验工艺参数的选择提供理论基础。同时, 将浮动凹模技术引入高压扭转工艺, 成功制备了界面连接质量良好、组织显著细化的钨铜梯度材料, 并借助电子背散射衍射技术 (electron backscattered diffraction, EBSD) 研究了应变对晶粒尺寸、晶界角度和界面连接的影响规律。

## 1 有限元模拟

### 1.1 有限元模型建立

图 1 为限制性高压扭转的结构形式, 试样被封闭在由上模、下模和预应力圈组成的型腔中, 型腔直径为 14 mm。不考虑钨和铜之间的打滑, 将钨和铜视为一个整体试样, 试样为直径 13 mm、厚度 2 mm 的圆片形, 采用 ABAQUS

收稿日期: 2021-04-03

基金项目: 国家自然科学基金青年科学基金 (51705118, 51705119); 中央高校基本科研业务费专项资金 (JZ2019HGTA0048)

作者简介: 王 雪, 女, 1988 年生, 博士, 讲师, 合肥工业大学材料学院, 安徽 合肥 230009, 电话: 0551-62901368, E-mail: wangxue@hfut.edu.cn

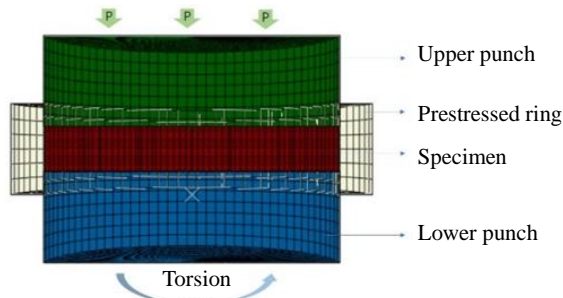


图 1 钨铜高压扭转工艺结构示意图

Fig.1 Schematic illustration of high-pressure torsion process for tungsten-copper



图 2 钨-铜试样有限元模型

Fig.2 Finite element model of tungsten-copper specimen

中的 partition 命令将试样拆分为轴向对称且属于同一部件的 2 个区域，对其上半部分赋予铜的材料属性，下半部分赋予钨的材料属性，如图 2 所示。C18150 铜合金和工业烧结纯钨的本构模型查阅文献获得<sup>[15,16]</sup>。采用 ABAQUS 静力通用方法，进行温度为 300、400、500 °C，压力为 1 和 3 GPa，扭转速度 1 r/min 的高压扭转模拟。试样与模具之间采用库伦摩擦模型，摩擦系数为 0.5。

### 1.2 模拟结果分析

#### 1.2.1 变形过程中的应力和应变分析

图 3 为 300 °C、1 GPa 条件下试样纵截面上  $\sigma_x$ 、 $\sigma_y$  和  $\sigma_z$  在不同变形阶段的分布变化。在压缩变形阶段，钨和铜 3 个方向的正应力都出现了明显的应力梯度，沿着径向应力值呈递减趋势，中心处的最大压应力为 1.76 GPa。

这种不均匀的应力分布与所谓的摩擦峰现象有关，模具与试样之间的摩擦在试样表面中心处产生较高的压应力<sup>[17]</sup>。随着扭转角度的增加，3 个方向的应力分布情况和变化趋势基本相同，继续呈现由试样中心向边缘递减的趋势，但各处应力值均逐步提升且分布均匀性提高。在试样厚度方向上，钨铜界面处的应力始终高于其他位置，1/6 圈扭转结束后的压应力为 0.5~1.8 GPa。

图 4 为 300 °C、1 GPa 条件下变形不同阶段试样纵截面的等效应变分布云图。试样在压缩阶段累积的应变极小，最大等效应变仅为 0.05，主要在铜的上层边缘处，而钨的应变几乎为 0。随着扭转变形的进行，钨的应变累积速度很慢，铜的应变累积迅速，并沿半径方向梯度递增，铜边缘处最大应变达到 5.98，这与试样变形过程中的应力分布有关。由于铜的屈服强度明显低于钨，且钨受到的应力小于铜，导致钨在扭转变形时部分材料未发生屈服变形，因而应变累积不足。在扭转变形过程中，试

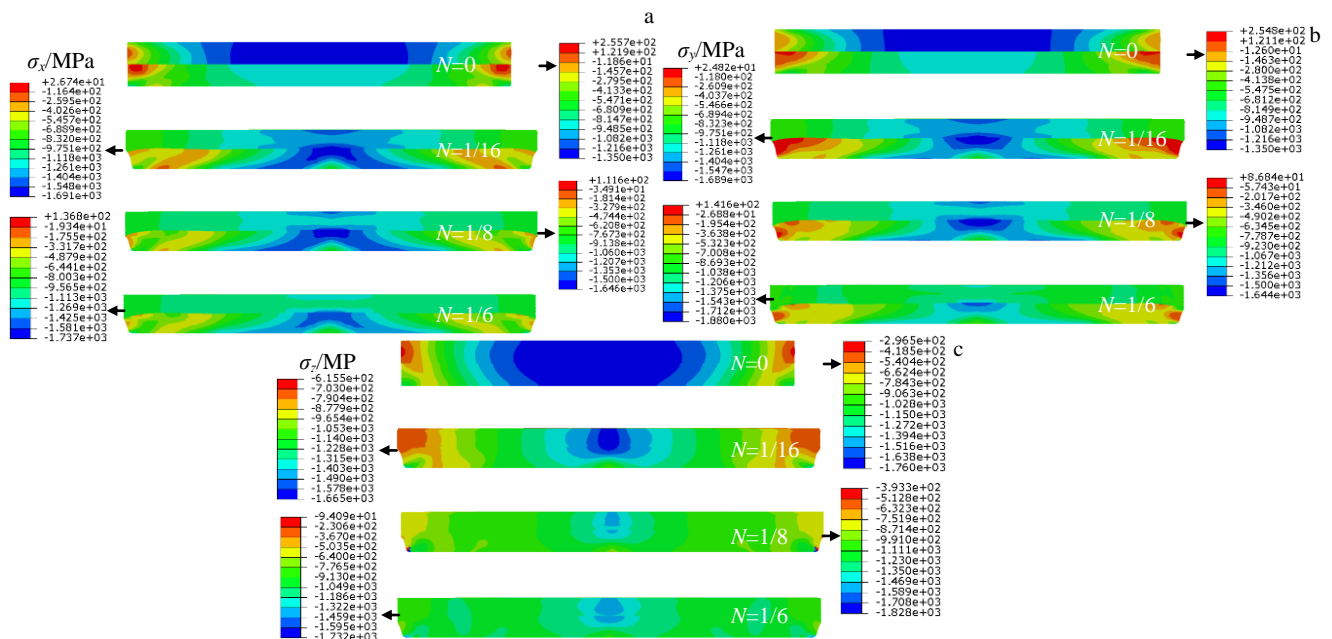


图 3 300 °C、1 GPa 下试样纵截面上不同方向的应力分布

Fig.3 Stress distribution in x (a), y (b), z (c) directions on the longitudinal section of the specimen under the pressure of 1 GPa and temperature of 300 °C

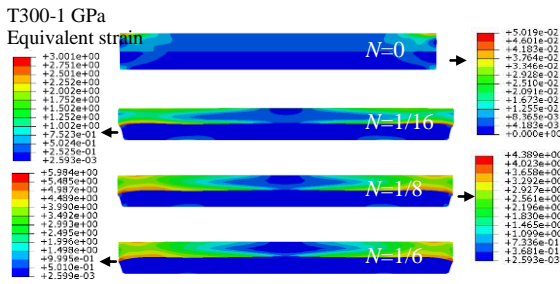


图 4 300 °C、1 GPa 下变形不同阶段试样纵截面的等效应变分布  
Fig.4 Equivalent strain distribution of longitudinal section of specimen in different deformation stages under the pressure of 1 GPa and temperature of 300 °C

样厚度方向上的应变分布为界面层>铜>钨，并且厚度方向上的应变梯度随着扭转变形的进行不断增大。钨铜界面处较大的应变累积有利于原子扩散和钨铜界面连接。

1.2.2 压力对应变累积的影响

图 5 为 300 °C、3 GPa 条件下变形不同阶段试样纵截面的等效应变分布云图。可以看出，在压缩阶段，3 GPa 下试样的应变分布与 1 GPa 基本相同，但应变累积上升显著，铜上表层边缘处的最大等效应变提升至 1.76，而

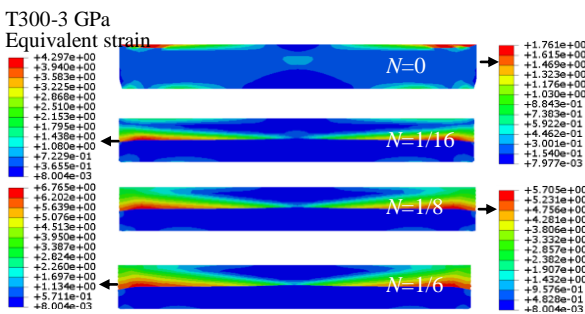


图 5 300 °C、3 GPa 下变形不同阶段试样纵截面的等效应变分布  
Fig.5 Equivalent strain distribution of longitudinal section of specimen in different deformation stages under the pressure of 3 GPa and temperature of 300 °C

钨的累积应变依旧较小，最大应变累积约为 0.59。在扭转阶段，铜的应变累积迅速，钨的应变累积速度很慢，最大应变依旧出现在钨铜界面处，当扭转圈数为  $N=1/6$  时，最大等效应变提升至 6.77。

图 6 为 300 °C 不同压力下扭转 1/6 圈后，钨铜界面处沿半径方向的应变变化情况。可以看出，当变形压力由 1 GPa 增加至 3 GPa 时，界面各处的累积应变均显著提升，说明增大变形压力有利于应变的累积，但过大的变形压力也会导致模具载荷急剧上升，模具发生压塌或断裂的损伤倾向增大，因此选择 1 GPa 作为实验研究的变形压力，既可以累积足够的剪切应变，又能有效降低模具损伤。

此外，通过对比高压扭转变形 von Mises 应变的理论计算值，可以看出试样边缘处等效应变的理论值约为 3.92，而模拟结果显示该处的等效应变约为 4.65，偏差约为 18.6%，表明等效应变的理论计算和有限元模拟在试样径向分布规律和数值上基本吻合，这证明了模拟结果的有效性。

1.2.3 温度对应变累积的影响

图 7 为 1 GPa 不同温度下变形不同阶段试样纵截面的等效应变分布云图。可以看出，相同压力不同温度下

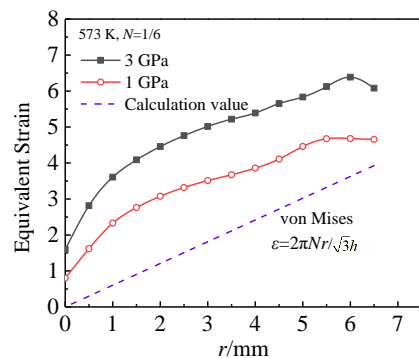


图 6 300 °C 不同压力下钨铜界面处沿半径方向的应变变化  
Fig.6 Strain variation along radius direction on W-Cu interface under different applied pressures and temperature of 300 °C

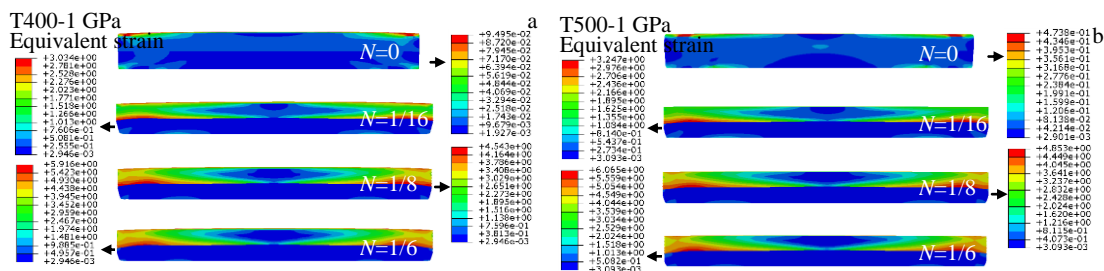


图 7 1 GPa 不同温度下变形不同阶段试样纵截面的等效应变分布  
Fig.7 Equivalent strain distribution of longitudinal section of specimen in different deformation stages under the pressure of 1 GPa and temperature of 400 °C (a), 500 °C (b)



试样在压缩阶段和扭转阶段的累积应变有着相同的变化趋势，但在数值上有所不同。一般而言，随着温度的上升，金属的变形抗力越低，塑性越好，相同压力下的变形也就越大。在压缩阶段，试样的最大等效应变均出现在铜上表面边缘位置，并且由 300 °C 的 0.05 增大到 500 °C 的 0.47；在扭转变形阶段，不同温度下试样的最大应变均出现在钨铜界面处，这与应力分布趋势相一致。1/6 圈扭转变形结束后，300 和 400 °C 的最大等效应变分别约为 5.98 和 5.92，当变形温度上升至 500 °C 时，最大等效应变略有增长，为 6.07。

图 8 为 1 GPa 不同温度下扭转 1/6 圈后，钨铜界面处沿半径方向的应变变化情况。随着温度的上升，钨铜界面沿半径方向上的应变整体增大，但温度对应变的累积并不显著，虽然温度的上升有利于应变的累积和界面原子的扩散，但高温下不仅铜的屈服强度降低会导致铜发生反挤，而且会降低模具使用强度。因此，选取 300 °C 作为实验研究的变形温度。

## 2 实验材料及方法

实验所用的材料为工业烧结纯钨和固溶-时效处理后的 C18150 铜合金，其组织形貌如图 9 所示。铜基体的晶粒尺寸为 30~40 μm，尺寸分布范围较宽，晶粒尺寸相差较大，并且在铜基体上弥散分布着尺寸约为 5 μm 的球状第二相颗粒。工业烧结纯钨的晶粒尺寸约为 30 μm，且大多呈现近似等轴状。将 Φ12 mm×3 mm 圆形片铜铬钨合金试样夹置于 2 个 Φ12 mm×1 mm 的圆片形钨试样中，外层用圆环形 304L 不锈钢包套，如图 10 所示。在温度 300 °C、压力 1 GPa、扭转速度 1 r/min 条件下，进行扭转圈数为 5 圈的高压扭转实验。

采用振动抛光技术，分阶段去除钨、铜和界面层的表面应力，借助电子背散射衍射技术 (EBSD) 对变形试样中心和距离中心 4 mm 处上层钨铜界面连接组织进

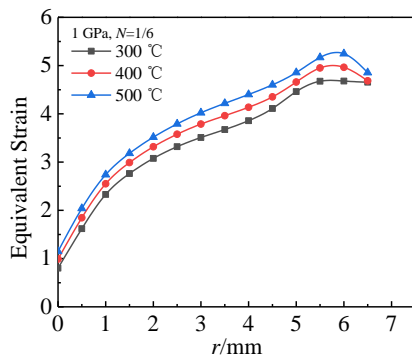


图 8 1 GPa 不同温度下钨铜界面处沿半径方向的应变变化  
Fig.8 Strain variation along radius direction on W-Cu interface under the pressure of 1 GPa and different temperatures

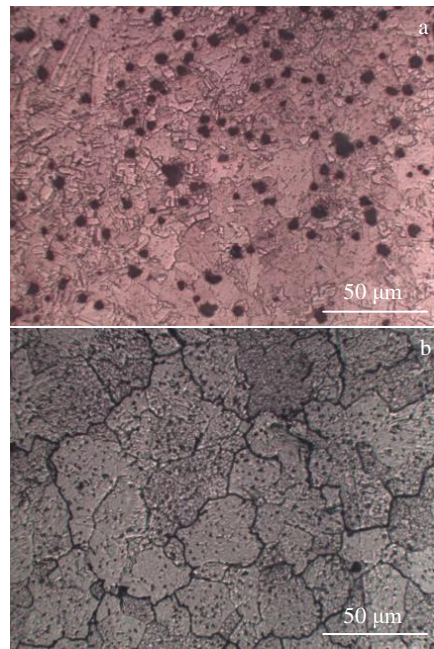


图 9 C18150 铜合金和工业烧结纯钨的金相显微组织  
Fig.9 OM microstructures of C18150 copper alloy (a) and industrial sintered pure tungsten (b)

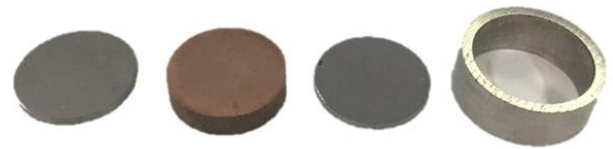


图 10 W-Cu-W 3 层结构试样  
Fig.10 W-Cu-W three-layer structure sample

行表征，测试仪器为德国 Zeiss SIGMA 500 型场发射扫描电镜。使用 MH-3L 维氏硬度仪对变形后上层钨铜界面进行显微硬度测试，测试载荷为 200 g，保压时间为 15 s。

## 3 结果与讨论

### 3.1 微观组织分析

图 11 为 5 圈变形试样中心和半径 4 mm 处晶粒成像和取向成像图。可以看到，在试样中心，变形后钨仍保留较大的晶粒尺寸，平均晶粒尺寸为 38.50±19.80 μm，大角度晶界占比仅为 17.6%，平均晶界角度约为 10.85°；铜平均晶粒尺寸仅为 0.28±0.13 μm，大角度晶界占比高达 76.4%，平均晶界角度约为 32.9°。半径 4 mm 处铜的组织形貌与试样中心处基本保持一致，但由于此处的应变累积大于中心处，导致钨的晶粒尺寸更加细化，平均晶粒尺寸约为 32.60±20.80 μm，大角度晶界的占比和平均晶界角度也略微提升至 19.9%和 12°。对比可知，在

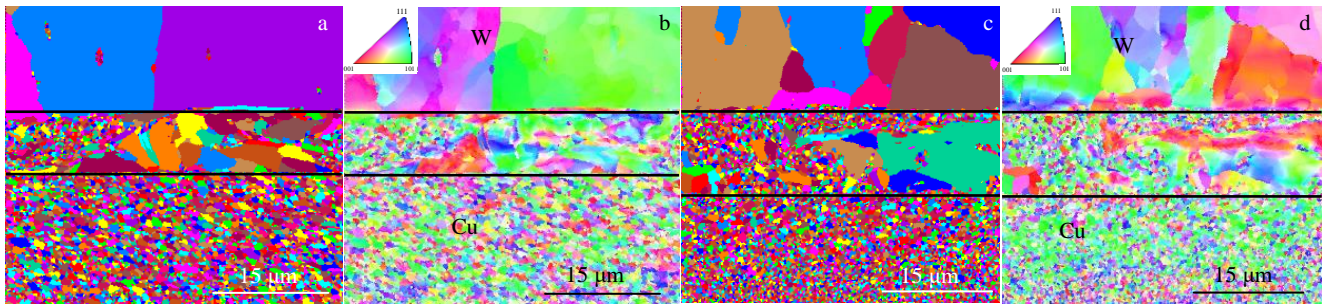


图 11 5 圈变形试样中心和半径 4 mm 处过渡层组织的晶粒成像和取向成像

Fig.11 Grain (a, c) and orientation (b, d) images of transition layer structures at center (a, b) and 4 mm away from center (c, d) of 5 turns HPT processed sample

1 GPa、5 圈的变形条件下，铜的晶粒细化和大角度晶界演化已达到饱和，但钨的晶粒尺寸仍随着应变量的增大而进一步细化。这与有限元模拟应力分布结果相符，由于铜的屈服强度远低于钨，因此铜在 HPT 变形过程中为剪切变形的主要承受方，而钨未得到充分的剪切变形。

在钨和铜的界面处，出现铜组织的过渡层，其在试样中心和半径 4 mm 处的平均晶粒尺寸分别为  $6.75 \pm 8.56 \mu\text{m}$  和  $4.80 \pm 5.67 \mu\text{m}$ ，远大于铜基体的晶粒尺寸。另外，铜组织过渡层的厚度也随着扭转半径的增加由  $8.47 \mu\text{m}$  增加至  $18.84 \mu\text{m}$ ，表明大变形条件不仅有利于钨和铜的晶粒细化，而且可以获得晶粒尺寸梯度分布的过渡层组织。图 12 所示为界面处的 KAM 图，可以看出铜组织过渡层的局部应变明显高于两侧的钨和铜，且铜的局部应变高于钨，这与有限元模拟厚度方向应变累积分布结果相吻合，验证了模拟的有效性，同时说明异种材料的 HPT 变形主要发生在材料结合面，这有利于该处的晶粒细化和缺陷累积，为界面结合提供有力条件。

图 13 为变形试样半径 4 mm 处钨铜界面的 SEM 像和 EDS 线扫描。可以看出，变形试样呈现出良好的结合

界面，无连接缝隙、孔洞等缺陷，两侧的钨和铜无裂纹产生。在界面处，钨和铜元素发生了相互扩散，铜的扩散深度约为  $2.59 \mu\text{m}$ ，钨的扩散深度约为  $1.74 \mu\text{m}$ ，铜元素的扩散深度明显高于钨元素。这是因为钨在铜中的扩散系数偏低，而铜在钨中的扩散系数较高，并且铜的自扩散性强，导致铜更容易向钨中扩散。目前，已有学者采用热等静压技术在温度  $940 \text{ }^\circ\text{C}$ ，压力  $120 \text{ MPa}$ ，保温  $2 \text{ h}$  的条件下制备了 W/CuCrZr 偏滤器部件焊接模块，并对其焊接界面质量进行分析，其界面的扩散深度约为  $1 \mu\text{m}$ <sup>[11]</sup>。对比可知，高压扭转工艺实现了钨和铜较低温度下的结合。

### 3.2 显微硬度分析

图 14 为 1 GPa、5 圈 HPT 变形试样的显微硬度分布。初始铜和钨的维氏硬度分别为  $790 \pm 30 \text{ MPa}$  和  $3470 \pm 230 \text{ MPa}$ ，变形后得到显著提升，铜的平均显微硬度为  $1310 \pm 30 \text{ MPa}$ ，界面处和试样表层钨的平均显微硬度分别为  $4240 \pm 120 \text{ MPa}$  和  $4180 \pm 190 \text{ MPa}$ 。可以看出，铜的硬度分布均匀，其显微硬度随着扭转半径增大保持不变，表明铜的晶粒细化和硬度提升已达到饱和；

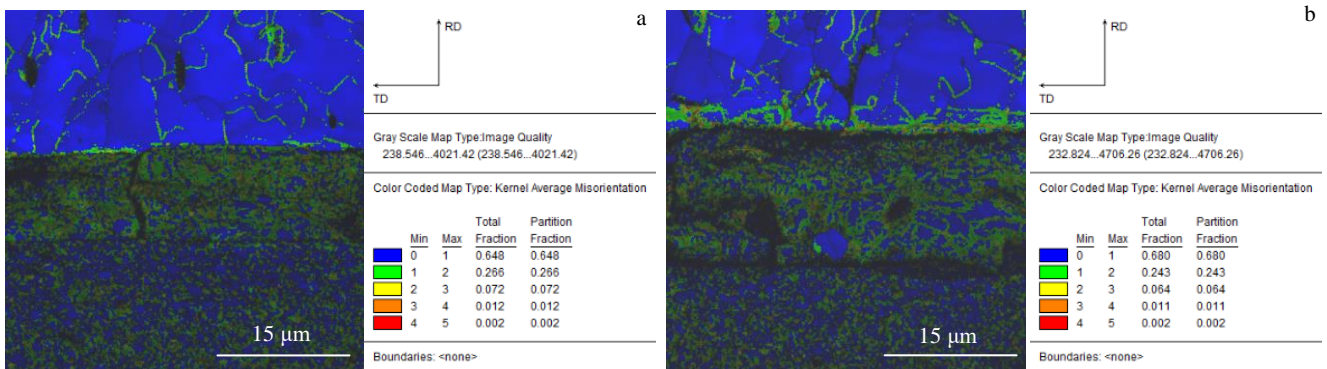


图 12 5 圈变形试样中心和半径 4 mm 处过渡层组织的 KAM 图

Fig.12 KAM diagrams of transition layer structures at center (a) and 4 mm away from center (b) of 5 turns HPT processed sample



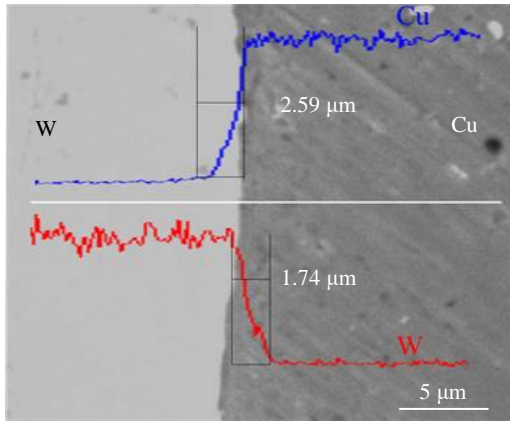


图 13 变形试样半径 4 mm 处钨铜界面 SEM 像和 EDS 线扫描  
Fig.13 SEM image and EDS mappings of element Cu and W for W-Cu interface at 4 mm away from center of 5 turns HPT processed sample

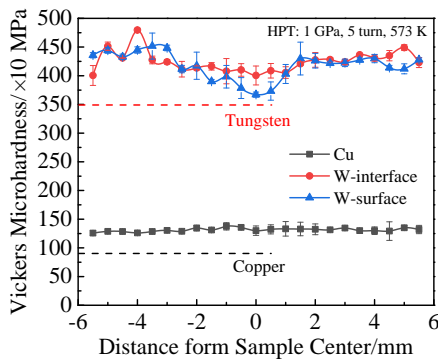


图 14 HPT 试样直径方向的显微硬度分布  
Fig.14 Microhardness distribution along the diameter direction of HPT processed sample

钨的硬度分布不均,其显微硬度整体依然呈现中心处略低的状态,这与显微组织演化规律保持一致,表明铜的晶粒细化和硬度提升已达到饱和。另外,由应变分布和晶粒尺寸分布结果可知,变形界面处的变形累积量最大,其晶粒细化程度也更明显,因此界面处钨的硬度高于试样表层钨。

### 4 结 论

1) 模拟结果表明,钨铜界面在 HPT 变形过程中的应变累积明显高于钨和铜的表面,并且随着压力和温度的提高而增加。

2) 在 300 °C、1 GPa、5 圈条件下,采用高压扭转工艺,成功制得界面结合质量良好、晶粒尺寸显著细化的钨铜梯度材料,钨和铜元素的扩散距离分别约为 1.74

和 2.59 μm,且钨和铜界面出现了晶粒尺寸约为 4.80~6.75 μm 的铜组织过渡层。

3) 变形后试样钨和铜的硬度均显著提升,界面处应变累积最大,其平均显微硬度为 4240±120 MPa,高于表层钨 4180±190 MPa 和表层铜 1310±30 MPa。

### 参考文献 References

[1] Zhang Xiqing(张喜庆). *Nonferrous Metals Engineering*(有色金属工程)[J], 2010, 62(3): 53

[2] Ibrahim A, Abdallah M, Mostafa S F *et al. Materials & Design*[J], 2009, 30(4): 1398

[3] Liu Binbin(刘彬彬), Xie Jianxin(谢建新), Chen Jianghua(陈江华). *The Chinese Journal of Nonferrous Metals*(中国有色金属学报)[J], 2009, 19(3): 538

[4] Zhao Pei, Wang Song, Guo Shibin *et al. Materials & Design*[J], 2012, 42: 21

[5] Zhao Ziyang(赵紫盈), Liu Jinxu(刘金旭), Zhang Hongyan(张鸿雁) *et al. Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2016, 45(1): 182

[6] Chen Ping'an, Luo Guoqiang, Shen Qiang *et al. Materials & Design*[J], 2013, 46: 101

[7] Tokitani M, Masuzaki S, Hiraoka Y *et al. Plasma and Fusion Research*[J], 2015, 10: 3 405 035

[8] Li Qiang, Qin Sigui, Wang Wanqing *et al. Fusion Engineering and Design*[J], 2013, 88(9-10): 1808

[9] Zhao S X, Li Q, Wang W J *et al. Fusion Science and Technology*[J], 2015, 67(4): 784

[10] Zhang Qiaoxin. *Journal of Wuhan University of Technology*[J], 2008, 23(3): 399

[11] Wang Qin(王 钦), Yang Fazhan(杨发展), Zhu Hailong(朱海龙) *et al. The Chinese Journal of Nonferrous Metals*(中国有色金属学报)[J], 2015, 25(2): 360

[12] Zhilyaev Alexander P, Langdon Terence G. *Progress in Materials Science*[J], 2008, 53(6): 893

[13] Oh-ishi Keiichiro, Edalati Kaveh, Kim Hyoung Seop *et al. Acta Materialia*[J], 2013, 61(9): 3482

[14] Kawasaki Megumi, Ahn Byungmin, Lee HanJoo *et al. Journal of Materials Research*[J], 2016, 31(1): 88

[15] Dümmer T, Lasalvia J C, Ravichandran G *et al. Acta Materialia*[J], 1998, 46(17): 6267

[16] Wang Bingjie(王冰洁), Tian Baohong(田保红), Zhang Yi(张毅) *et al. Transactions of Materials and Heat Treatment*(材料热处理学报)[J], 2018, 39(1): 145

[17] Lee Dong Jun, Yoon Eun Yoo, Ahn Dong-Hyun *et al. Acta Materialia*[J], 2014, 76: 281

## Simulation and Experimental Study of W-Cu Gradient Material Processed by High-Pressure Torsion

Wang Xue, Chen Guangqing, Wang Mingming, Yan Siliang, Xue Kemin

(School of Materials Science and Engineering, Hefei University of Technology, Hefei 230009, China)

**Abstract:** The deformation behavior of W-Cu material during high-pressure torsion (HPT) was simulated by ABAQUS software. The distributions of stress and equivalent strain, as well as the influence of applied pressure and deformation temperature on the strain accumulation of interface layer were analyzed. The simulation results show that shear deformation mainly occurs on copper during HPT process, but has little influence on tungsten, and the strain accumulation of interface layer is the largest. The increase of deformation temperature varying from 300 °C to 500 °C and applied pressure varying from 1 GPa to 3 GPa has positive effect on the strain accumulation of interface layer, but the effect of temperature increase is not significant, and higher temperature and applied pressure may lead to the extrusion of copper and the failure of HPT die. At the same time, the W-Cu gradient material with noble bonding interface is obtained through 5 turns of HPT processing at 300 °C and 1 GPa. The experimental results show that with the increase of torsion radius, the microstructures of W and Cu are significantly refined to 32.6 and 0.28  $\mu\text{m}$ , respectively. Also, a transition layer of Cu with grain size of 4.8~6.75  $\mu\text{m}$  can be found at the interface. The interface of tungsten and copper is well combined, and the diffusion distances of tungsten and copper on the bonding interface are 1.74 and 2.59  $\mu\text{m}$ , respectively. The microhardness (HV) of copper increases from 790 MPa to 1310 MPa, and that of tungsten at the interface increases from 3470 MPa to 4240 MPa, which indicates that grain refinement and defect accumulation under large deformation condition are beneficial to interface bonding and performance improvement.

**Key words:** W-Cu gradient material; high-pressure torsion; finite element simulation; microstructure; Vickers microhardness

---

Corresponding author: Yan Siliang, Ph. D., Lecturer, School of Materials Science and Engineering, Hefei University of Technology, Hefei 230009, P. R. China, Tel: 0086-551-62901368, E-mail: yansiliang741@163.com