

# 冷拉拔铜包铝细丝的退火工艺与组织性能研究

Study on Annealing Process and Microstructure and Properties of Cold-drawing Copper Cladding Aluminum Thin Wires

王秋娜, 刘新华, 刘雪峰, 谢建新

( 北京科技大学 材料科学与工程学院, 北京 100083)

WANG Qiu-na, LIU Xin-hua, LIU Xue-feng, XIE Jian-xin (School of Materials Science and Engineering, University of Science and Technology, Beijing 100083, China)

**摘要:** 研究了冷拉拔铜包铝细丝合理的退火工艺及其对材料力学性能、铜包覆层组织及界面扩散层厚度的影响规律。结果表明: 铜包铝细丝的最佳退火工艺为  $300\text{ }^{\circ}\text{C} \times 60\text{ min}$ 。低于  $200\text{ }^{\circ}\text{C}$  退火时, 铜包铝细丝铜包覆层处于回复阶段, 细丝强度从冷拉态的  $361\text{ MPa}$  急剧下降到  $236\text{ MPa}$ , 延伸率略有降低;  $300\text{ }^{\circ}\text{C}$  退火后, 铜包覆层的再结晶完成, 细丝的抗拉强度下降至约  $152\text{ MPa}$ , 延伸率升到最高, 达到  $16.3\%$ ;  $400\text{ }^{\circ}\text{C}$  退火后, 铜包覆层晶粒显著长大, 界面处生成脆性金属间化合物, 延伸率急剧下降。界面扩散层的厚度随退火温度和保温时间的增加而增大, 当退火温度低于  $300\text{ }^{\circ}\text{C}$  时, 扩散层厚度随退火时间增加缓慢; 当退火温度高于  $350\text{ }^{\circ}\text{C}$  后, 扩散层厚度快速增大。延伸率随扩散层厚度的增加先升高后降低, 当界面扩散层厚度为  $2\mu\text{m}$  时, 铜包铝细丝的延伸率最高。

**关键词:** 铜包铝细丝; 冷拉拔; 退火工艺; 组织性能

中图分类号: TF 125.2 文献标识码: A 文章编号: 1001-4381(2008)07-0030-06

**Abstract:** The appropriate annealing process for cold-drawing copper cladding aluminum wire was studied. The variations of mechanical properties, microstructure of copper sheaths and diffusion thickness of copper cladding aluminum wires with annealing process were investigated. The results show that the proper annealing process for copper cladding aluminum wire is  $300\text{ }^{\circ}\text{C} \times 60\text{ min}$ . At an annealing temperature below  $200\text{ }^{\circ}\text{C}$ , a recovery of microstructure occurs in copper sheaths, the strength of the copper cladding aluminum wire decreases dramatically from  $361\text{ MPa}$  to  $236\text{ MPa}$  and the elongation drops a little compared with unannealed wires. Annealed at  $300\text{ }^{\circ}\text{C}$ , the recrystallization of microstructure in copper sheath is fully completed, the strength of the copper cladding aluminum wire drops to  $152\text{ MPa}$  and the elongation achieves maximum value  $16.3\%$ . The grain size of copper sheath grows up and intermetallic phases are formed at interface as annealing temperature reaches  $400\text{ }^{\circ}\text{C}$ , while the elongation of material decreases. The diffusion thickness increases as annealing temperature and time increase. When the annealing temperature is lower than  $300\text{ }^{\circ}\text{C}$ , with the increase of annealing time, diffusion thickness increases slowly. When the annealing temperature is higher than  $350\text{ }^{\circ}\text{C}$ , the diffusion thickness increases quickly as the annealing time prolongs. With the diffusion thickness increasing, the elongation shows a trend that it increases at the beginning and then decreases. The critical diffusion thickness of copper cladding aluminum wire is  $2\mu\text{m}$ , when the material possesses optimum mechanical properties.

**Key words:** copper cladding aluminum thin wire; cold drawing; annealing process; microstructure and property

铜包铝线材充分发挥了铜的优良导电性能和铝的低密度优势, 在微型精密仪器、微型电控仪表、无线电元件、半导体器件等方面具有重要应用前景<sup>[1-3]</sup>。目前铜包铝线材的制备加工工艺一般是先将铜、铝通过机械结合或是冶金结合形成复合棒坯或棒材, 再经冷

加工(如挤压、拉拔)并结合中间退火获得所需直径和性能的线材。退火是冷加工过程中降低抗拉强度、改善塑性加工性能的不可缺少的工序, 对于线材的制备具有重要意义。

姜喜成等人<sup>[4]</sup>对铜包铝线的退火工艺进行了初步

研究,讨论了将铜线退火炉应用于铜包铝线生产所遇到的新问题。国外研究学者对铜/铝双金属层状复合材料退火工艺的研究较多,但主要是针对轧制复合铜/铝双金属板的退火工艺及其对组织性能的影响。如J E Lee等人<sup>[5]</sup>在100~400℃对轧后的不锈钢/铝/铜复合板进行退火,发现复合板延伸率低于单金属板的原因是铜/铝界面上出现了大量的CuAl<sub>2</sub>相;G Heness等人<sup>[6]</sup>将轧后的铜/铝复合板在450℃退火不同时间,发现随着退火时间的延长,扩散层厚度逐渐增加,界面上生成的金属间化合物的种类和数量控制着界面的结合强度;C Y Chen等人<sup>[7]</sup>将冷轧后的铜/铝复合板在250~500℃和15~90min工艺下进行退火,分析了界面结构的变化对界面断裂机理及结合强度的影响。但是,目前国内外对冷拉拔态铜包铝线材尤其是直径在1mm以下的铜包铝细丝的退火工艺及其对线材组织性能的影响的研究尚未见到公开报道。

本工作拟采用冷静液挤压和后续冷拉拔相结合的方法制备直径在 $\phi 1\text{mm}$ 以下的铜包铝细丝,重点研究冷拉拔铜包铝细丝的退火工艺,以及退火工艺对铜包铝细丝的力学性能、铜包覆层微观组织与界面扩散层厚度的影响规律,为制定铜包铝细丝制备加工工艺参数提供理论依据。

## 1 实验材料与方法

以外径 $\phi 31.4\text{mm}$ 、内径 $\phi 27.6\text{mm}$ 的无氧铜管和直径 $\phi 27.6\text{mm}$ 的二号工业高纯铝(A1090)棒为原材料。将铜管和铝棒头部旋压或车削成60°的锥角后,采用稀硫酸和双氧水的混合液清洗铜管,10%氢氧化钠溶液清洗铝棒,并用细砂布打磨铜管内表面使其粗糙化,以利于增大其内表面与铝棒的接触摩擦。将铜管和铝棒套装,并通过施加一定的压力装配成铜/铝复合坯料。然后将复合坯料经冷静液挤压加工成直径为 $\phi 6\text{mm}$ 的铜包铝复合线坯,其中铜层的厚度为0.35mm,复合线坯横断面上铜层比例约为22%。

将直径 $\phi 6\text{mm}$ 的铜包铝复合线坯直接冷拉拔成直径 $\phi 0.26\text{mm}$ 的细丝,然后在150~400℃、60min的制度下进行真空退火,研究退火温度对细丝力学性能的影响,确定其最佳的退火温度。然后将 $\phi 0.26\text{mm}$ 的细丝在最佳退火温度下进行10~120min的真空退火,研究退火保温时间对材料力学性能的影响。

采用INSTRON 1122万能材料试验机测试铜包铝细丝的力学性能,拉伸条件为标距70mm、速度5mm/min;采用金相显微镜观察铜包铝细丝退火后铜包覆层的显微组织;采用SEM观察退火后铜包铝细

丝拉伸断口和界面扩散层,并对界面扩散层的成分进行线扫描分析。

## 2 实验结果与分析

### 2.1 退火温度对铜包铝细丝力学性能的影响

图1所示为对经冷静液挤压后直接冷拉拔成形的直径 $\phi 0.26\text{mm}$ 的铜包铝细丝进行退火处理时,细丝的力学性能随退火温度的变化情况。

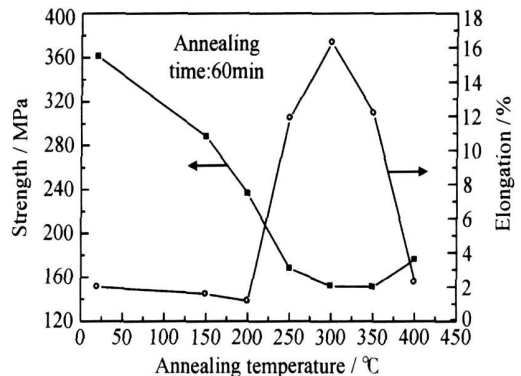


图1 退火温度对铜包铝细丝力学性能的影响

Fig 1 Effect of annealing temperature on the mechanical properties of copper cladding aluminum thin wires

从图中可以看出,随着退火温度的增加,铜包铝细丝的抗拉强度由未退火时的361MPa降到300℃退火后的152MPa;然后呈现出略有上升的趋势,到400℃时为176MPa。这可能是由于经过冷静液挤压和冷拉拔大变形后,铜包铝细丝在超过再结晶温度以上进行退火后产生了织构强化。延伸率则由未退火时的2.0%增加到300℃退火后的16.3%,然后又迅速下降,到400℃时仅为2.3%。这是因为随着退火温度的升高,铜、铝基体内由于冷拉拔变形导致的加工硬化得以消除,铜/铝之间形成了合适的扩散层,从而提高了材料的延伸率;但退火温度过高时,导致基体晶粒粗大,界面生成脆性金属间化合物,从而使延伸率降低<sup>[8,9]</sup>。因此,退火温度对铜包铝细丝的力学性能影响非常显著。由图1可知,在保温时间为60min时,当退火温度为300℃时,细丝的抗拉强度最低,而塑性(延伸率)最好,从有利于细丝后续冷拉拔的角度,直径 $\phi 0.26\text{mm}$ 的冷拉拔态铜包铝细丝最佳的退火温度为300℃。但当 $\phi 0.26\text{mm}$ 细丝作为最终产品时,则可根据对产品强度和塑性的使用要求选择合适的退火温度。

从图1中还可以看出,150℃和200℃退火后,铜包铝细丝的延伸率不但没有增加,反而呈略有下降的趋势。这与常规的材料的抗拉强度和延伸率在退火过

程中此消彼长的变化规律相反。为了研究这一现象出现的原因, 采用 SEM 对 150℃退火后的铜包铝细丝的

拉伸断口形貌进行观察, 并对其界面成分进行线扫描分析, 结果如图 2 所示。

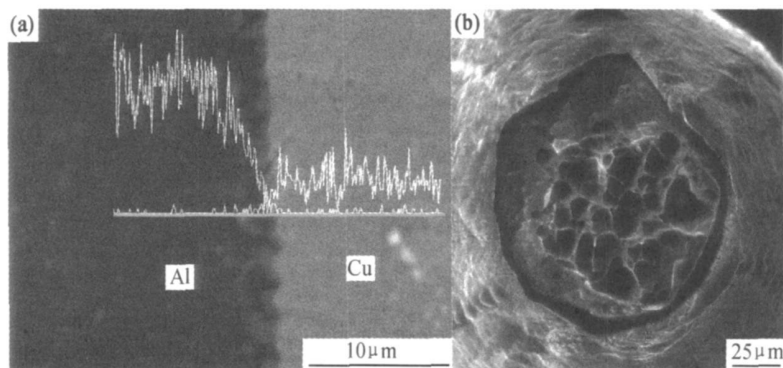


图2 退火后铜包铝细丝的界面成分和断口形貌(150℃)

(a) 铜/铝复合界面线扫描像; (b) 铜包铝细丝拉伸断口形貌

Fig 2 Element diffusion and fracture morphology of copper cladding aluminum thin wire annealed at 150℃

(a) line scan analysis; (b) fracture morphology

从图 2a 可以看出, 在 150℃退火后, 铜包铝细丝界面比较平直, 铜、铝几乎没有发生互扩散, 即此时铜、铝还处于机械结合状态。这一点可由图 2b 的断口形貌得到证实。由图 2b 可以看出, 铜包铝细丝拉伸断裂时, 铝层断口完全由韧窝组成, 显示韧窝较深, 大小比较一致, 分布均匀, 表明此时铝层塑性变形能力较强, 发生了韧性断裂; 而铜包覆层的断口缩颈趋势不明显, 呈脆断状, 并且铜/铝界面显示出明显分离的现象。上述结果表明, 在 150℃退火后, 铝芯由于发生了回复已得到充分软化, 但铜包覆层由于在冷静液挤压及后续冷拉拔过程中的变形程度远大于铝芯, 使得铜层的加工硬化程度要比铝芯显著, 因此导致铜层即使在发生了回复的情况下, 其塑性变形能力仍与铝芯之间相差较大; 并且由于此时铜/铝界面间尚未形成合适的扩散层, 导致拉伸过程中铜、铝发生分层, 致使 150℃乃至 200℃退火后铜包铝细丝的延伸率略有下降的现象。

根据图 1, 2 的结果可知, 影响铜包铝细丝经 150℃以上退火后力学性能的主要因素是铜包覆层及界面状态。因此, 以下关于退火工艺对组织性能影响的研究重点为铜包覆层及界面层。

## 2.2 退火温度对铜包铝细丝铜包覆层显微组织的影响

图 3 所示为不同退火温度后的铜包铝细丝包覆层的显微组织照片。可以看出, 在 200℃退火后, 铜包铝细丝铜包覆层横截面组织为不规则形状(见图 3a), 表明此时铜层组织仍处于回复阶段, 只发生了空位的扩散和位错组态的移动和重新组合, 释放出一定的储存能, 减弱加工硬化效果, 因此使抗拉强度略有下降。当退火温度升到 250℃时, 纯铜包覆层横截面组织与

200℃退火时有明显不同, 绝大部分区域已经转变为大小不均的晶粒(见图 3b), 表明再结晶已经开始, 但还不完全, 所以致使抗拉强度和延伸率在此温度下发生显著变化, 抗拉强度大幅度下降, 延伸率急剧上升。在 300℃退火后, 横截面的晶粒几乎全部由不规则形状转变为等轴状(见图 3c), 晶粒大小比较均匀, 形状规整, 表明再结晶已经完成。此时晶体内部位错密度大大降低, 加工硬化已基本消除, 因此抗拉强度下降到最低值, 延伸率达到最高值。继续升高退火温度到 400℃时, 晶粒尺寸有较明显的长大(如图 3d), 由此导致了延伸率急剧下降。

## 2.3 退火温度对铜包铝细丝界面扩散层厚度的影响

图 4 所示为保温时间 60min、不同退火温度下直径  $\phi 0.26\text{mm}$  铜包铝细丝界面附近的成分分布以及界面层厚度。图 4a 所示为 200℃, 60min 退火后的状态, 可以看出此时界面比较平直, 线扫描成分分析表明铜向铝侧略有扩散, 而铝向铜侧几乎没有扩散现象发生, 界面没有金属间化合物出现, 表明此温度尚不满足金属间化合物生成的热力学条件。250℃退火后, 铜、铝发生了互扩散, 界面上出现了很薄的扩散层, 厚度约为  $1.5\mu\text{m}$ ; 界面结合强度增加, 铜包铝细丝的延伸率大幅度上升, 如图 4b 所示。300℃退火后, 铜/铝之间的互相扩散加剧, 形成了约  $2\mu\text{m}$  的扩散层(见图 4c)。由于此时所生成的合适的扩散层厚度<sup>[10]</sup>以及铜、铝母材的适当软化效果, 使铜包铝细丝的延伸率达到峰值。退火温度升到 350℃后, 界面扩散层厚度显著增大, 达到近  $4\mu\text{m}$ (见图 4d), 延伸率下降。相关研究文献表明, 此时界面上会产生大量的脆性金属间化合物, 严重降低了界面的有效结合面积, 改变了铜/铝之间的结合方

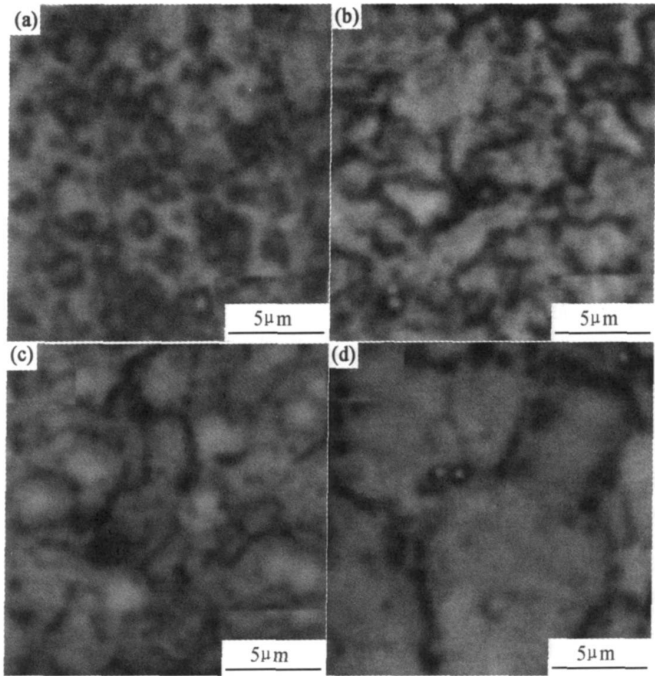


图 3 退火温度对铜包铝细丝纯铜包覆层组织的影响(横截面)  
(a) 200℃;(b) 250℃;(c) 300℃;(d) 400℃

Fig. 3 Effect of annealing temperature on the microstructure of copper sheath(cross section)  
(a) annealed at 200℃;(b) annealed at 250℃;(c) annealed at 300℃;(d) annealed at 400℃

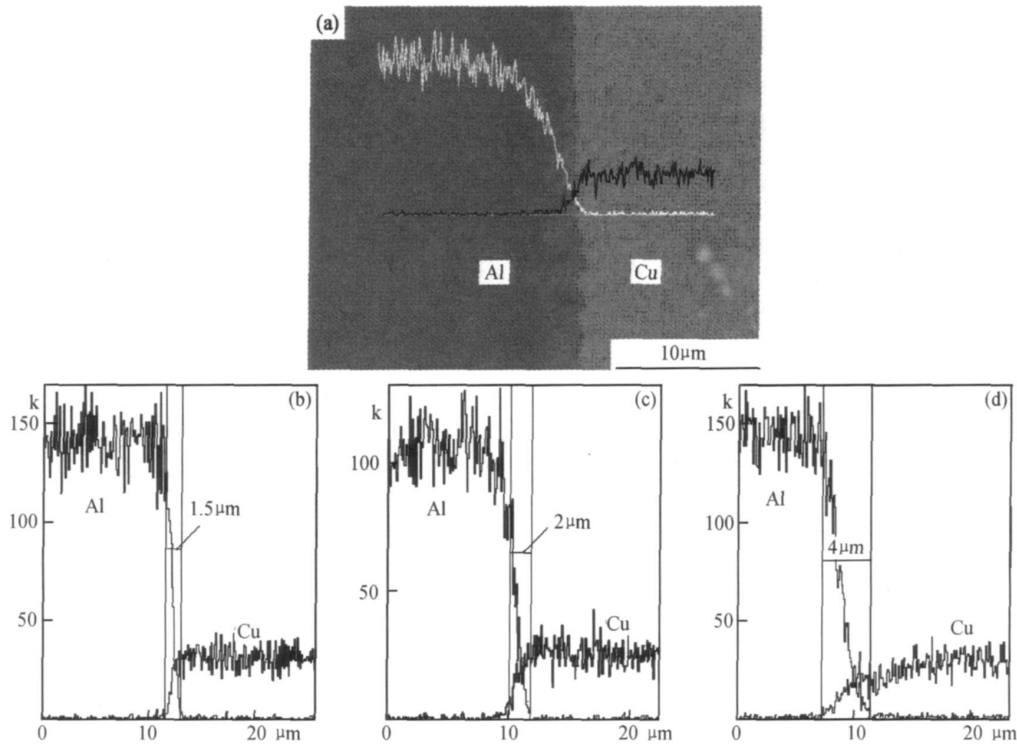


图 4 退火温度对铜包铝细丝界面扩散层厚度的影响(退火 60min)  
(a)200℃;(b)250℃;(c)300℃;(d)350℃

Fig. 4 Effect of annealing temperature on the interface thickness of copper cladding aluminum thin wires(60min)  
(a)annealed at 200℃;(b)annealed at 250℃;(c)annealed at 300℃;(d)annealed at 350℃

式,使得结合强度急剧降低<sup>[11]</sup>。可见,精确控制退火温度以形成合适的扩散层厚度对提高铜包铝细丝的力学性能是非常关键的。

2 4 退火保温时间对铜包铝细丝力学性能的影响

图 5 所示为直径  $\phi 0.26\text{mm}$  的铜包铝细丝在最佳退火温度  $300\text{ }^{\circ}\text{C}$  后的力学性能随保温时间的变化情况。从图中可以看出,抗拉强度和延伸率随保温时间的变化均较小,在退火保温  $60\text{min}$  后抗拉强度降到最低,延伸率则达到最高。这是因为随着保温时间的延长,扩散层的生长速度逐渐减小,界面迁移受到抑制<sup>[12]</sup>,而扩散层的厚度是控制复合材料性能的重要因素<sup>[13]</sup>。因此,从提高塑性、便于后续拉拔的角度来看,铜包铝细丝的最佳退火制度为  $300\text{ }^{\circ}\text{C}$ ,  $60\text{min}$ 。在退火保温时间  $10\sim 120\text{min}$  的范围内,铜包铝细丝的延伸率升降缓慢,未发生显著变化,即与退火温度相比,保温时间的变化对细丝力学性能的影响较小。综上分析可以看出,退火温度是影响铜包铝细丝力学性能的主

要因素,保温时间则为次要因素。

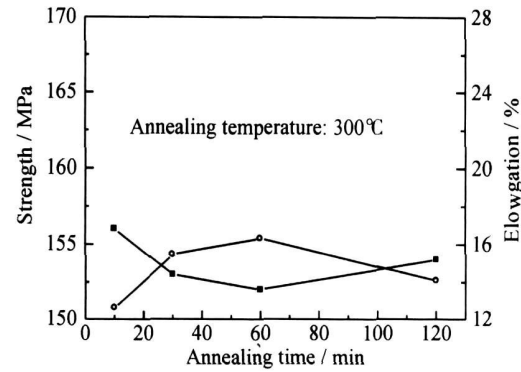


图 5 退火保温时间对铜包铝细丝力学性能的影响

Fig 5 Effect of annealing time at  $300\text{ }^{\circ}\text{C}$  on the mechanical properties of copper cladding aluminum thin wires

2 5 退火保温时间对铜包铝细丝扩散层厚度的影响

图 6 所示为在退火温度  $300\text{ }^{\circ}\text{C}$  的条件下,经不同保温时间退火后铜包铝细丝界面层厚度的变化情况。

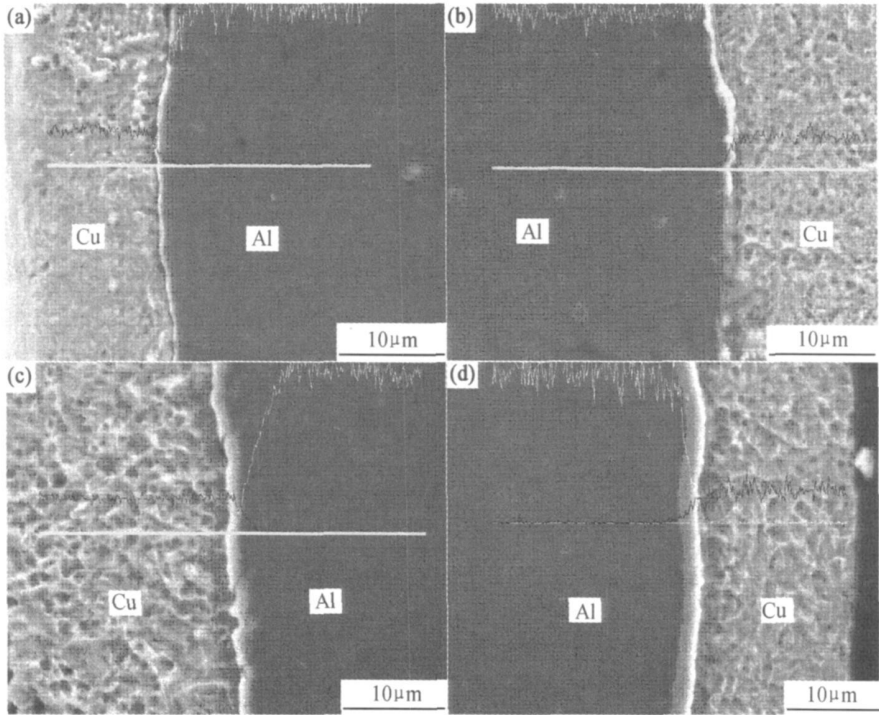


图 6 退火保温时间对铜包铝细丝扩散层厚度的影响

(a) 10m in; (b) 30min; (c) 60m in; (d) 120min

Fig 6 Effect of annealing time at  $300\text{ }^{\circ}\text{C}$  on the interface thickness of copper cladding aluminum thin wires

(a) 10m in; (b) 30min; (c) 60m in; (d) 120min

从图 6 中可以看出,随着保温时间的延长,扩散层的厚度逐渐增加,导致铜包铝细丝的延伸率先逐渐上升后缓慢下降。由图 6a 可见,在退火温度为  $300\text{ }^{\circ}\text{C}$  的条件下,虽然保温时间仅为  $10\text{min}$ ,但此时铜、铝原子之间已经开始了相互扩散,铜/铝界面上出现了厚度约

为  $1.4\mu\text{m}$  的较薄扩散层;当保温时间为  $60\text{min}$  时,扩散层厚度增加到约  $2\mu\text{m}$  (见图 6c),此时铜包铝细丝的延伸率达到最高;保温  $120\text{min}$  后,扩散层厚度增加到约  $2.7\mu\text{m}$  (见图 6d),此时细丝的延伸率有较明显的下降。当保温时间较短时,原子扩散不充分,界面未形成

牢固结合,退火的主要作用是加速原子重排和减少晶格缺陷<sup>[2]</sup>,减轻冷加工造成的加工硬化,释放残余应力<sup>[14]</sup>,因此延伸率开始上升。随着保温时间的延长,铜、铝原子的扩散趋于充分,达到最佳的界面结合效果,延伸率升到最大。但保温时间过长后,导致母材金属晶粒长大,界面层变宽,生成较多的金属间化合物,削弱铜/铝之间的结合强度<sup>[15]</sup>,延伸率随之下降。有文献报道,铜/铝之间的扩散层超过  $2\mu\text{m}$  后,材料的延伸率将大幅度降低<sup>[8]</sup>。可见,  $2\mu\text{m}$  的扩散层对铜包铝细丝最为合适,为扩散层厚度的临界值,超过此临界值后,复合材料的延伸率开始下降。

### 3 结论

(1) 采用冷静液挤压后直接冷拉拔成形的直径  $\phi 0.26\text{mm}$  的铜包铝复合细丝的最佳退火工艺为  $300^\circ\text{C} \times 60\text{min}$ 。

(2) 直径  $\phi 0.26\text{mm}$  冷拉拔铜包铝细丝的组织 and 性能受退火温度影响显著。低于  $200^\circ\text{C}$  退火时,铜包铝细丝的铜包覆层组织处于回复阶段,抗拉强度和延伸率与未退火时相比都有所降低;  $300^\circ\text{C}$  退火后,铜包覆层组织的再结晶完成,抗拉强度降到最低,延伸率升到最高;  $400^\circ\text{C}$  退火后,铜包覆层组织显著长大,延伸率下降。

(3) 铜包铝细丝的扩散层厚度随退火温度和保温时间的增加而增大,当退火温度低于  $300^\circ\text{C}$  时,扩散层厚度随退火时间缓慢增加;当退火温度高于  $350^\circ\text{C}$  后,扩散层厚度快速增大。

(4) 延伸率随扩散层厚度的增加先升高后下降,当扩散层厚度为  $2\mu\text{m}$  时,铜包铝细丝的抗拉强度达到最小,为  $152\text{MPa}$ ;延伸率达到最高,为  $16.3\%$ 。

#### 参考文献

- [1] BRAUNOVIC M, ALEKSANDROV N. Intermetallic compounds at aluminum-to-copper and copper-to-tin electrical interfaces[J]. IEEE Holm Conference on Electrical Contacts, 1992, 18-21(10): 25-34.
- [2] XU Rong-chang, TANG Di, REN Xue-ping, et al. Improvement of the matrix and the interface quality of a Cu/Al composite by the MARB process[J]. Rare Metals, 2007, 26(3): 230-235.
- [3] KANG C G, JUNG Y J, KWON H C. Finite element simulation of die design for hot extrusion process of Al/Cu clad composite and its experimental investigation[J]. Journal of Materials Processing

Technology, 2002, 124(1-2): 49-56.

- [4] 姜喜成,唐可洪,魏福玉.铜包铝线退火工艺的初步探讨[J].电线电缆,1999,(1):34-35.
- [5] LEE J E, BAE D H, CHUNG W S, et al. Effects of annealing on the mechanical and interface properties of stainless steel/aluminum/copper clad metal sheets[J]. Journal of Materials Processing Technology, 2007, 187-188(1-3): 546-549.
- [6] HENESS G, WUHRER R, YEUNG W Y. Interfacial strength development of roll-bonded aluminium/copper metal laminates[J]. Materials Science and Engineering A, 2007, Available online at www.sciencedirect.com (in Press).
- [7] CHEN C Y, CHEN H L, HWANG W S. Influence of interfacial structure development on the fracture mechanism and bond strength of aluminum/copper bimetal plate[J]. Materials Transactions, 2006, 47(4): 1232-1239.
- [8] 王立东,阮雪榆. Cu/Al 双金属固相结合的实验研究[J]. 机械科学与技术, 1996, 15(6): 606-607.
- [9] LEE WON BAE, BANG KUEK SAENG, JUNG SEUNG BOO. Effects of intermetallic compound on the electrical and mechanical properties of friction welded Cu/Al bimetallic joints during annealing[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2005, 390(1-2): 212-219.
- [10] PENG X K, WUHRER R, HENESS G, et al. On the interface development and fracture behaviour of roll bonded copper/aluminum metal laminates[J]. Journal of Materials Science, 1999, 34(9): 2029-2038.
- [11] 祖国胤,于九明,温景林.在线高频电阻加热工艺对碳钢/铝复合带组织与力学性能的影响[J].中国有色金属学报,2004,14(8): 1431-1436.
- [12] 耿相英,何艳玲,李世春.固相扩散 Cu/Al 界面研究[J].中国石油大学学报(自然科学版),2006,30(6): 78-80.
- [13] ABBASI M, TAHERI K, SALEHIA M T. Growth rate of intermetallic compounds in Al/Cu bimetal produced by cold roll welding process[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2001, 319: 233-241.
- [14] 祖国胤,刘刚,王宁.退火工艺对镍/铝复合带金属间化合物的影响[J].材料热处理学报,2007,28(2): 54-59.
- [15] 谢军,吴卫东,杜凯. Al/Cu 微米级厚度薄膜扩散连接工艺及显微组织分析[J].原子能科学技术,2004,38(增刊): 120-124.

基金项目:国家“973”计划项目(2006CB605200);国家自然科学基金项目(50674008);教育部“新世纪优秀人才支持计划”资助项目(NCET-06-0083)

收稿日期:2007-11-25;修订日期:2008-02-18

作者简介:王秋娜(1982—),女,硕士研究生,主要从事先进金属层状复合材料制备加工研究,联系地址:北京科技大学材料科学与工程学院 刘雪峰 转(100083)。E-mail: wangqiunao827@126.com