

铝基复合材料的活性液相扩散焊新工艺

张贵锋¹, 张建勋¹, 李思玉¹, 韦中新²

(1. 西安交通大学金属材料强度国家重点实验室, 710049, 西安; 2. 广西特种设备监督检验院, 530022, 南宁)

摘要: 为优化中间层合金系的设计, 对液相扩散焊过程中陶瓷颗粒/金属(P/M)界面的弱化、强化及断裂模式进行了研究, 发现在采用纯 Cu 箔的 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{p}/\text{Al}$ 复合材料液相扩散焊件的剪切断口上, Al_2O_3 颗粒未破裂, 断口上所有 Al_2O_3 颗粒及部分金属表面光滑, 无粘结物生成, 表明 P/M 界面结合弱而呈“界面脱粘”断裂方式. 为此, 提出了一种旨在改善 P/M 弱界面润湿性的新工艺——活性液相扩散焊, 要求所用中间层内必须同时含有降熔元素及可与陶瓷增强相反应的活性元素(Ti). 当 Ti 含量较低时, Al_2O_3 颗粒增强相表面上出现细微、凹凸不平且不连续的界面粘结物(反应物); 当 Ti 含量较高时, P/M 界面可形成强力结合, 剪切测试中足以使一些陶瓷颗粒本身破裂.

关键词: 金属基复合材料; 过渡液相扩散连接; 活性元素; 界面反应; 断裂模式

中图分类号: TG454 **文献标志码:** A **文章编号:** 0253-987X(2009)11-0071-04

Novel Process of Active-Transient Liquid Phase (A-TLP) Bonding for Aluminum Matrix Composite

ZHANG Guifeng¹, ZHANG Jianxun¹, LI Siyu¹, WEI Zhongxin²

(1. State Key Laboratory for Mechanical Behavior of Materials, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China;

2. Inspection Institute for Special Equipment, Nanning 530022, China)

Abstract: The weakening, enhancement and fracture mode of the interface between ceramic particulate reinforcement and metal (P/M) in transient liquid phase(TLP) bonded joint of aluminum matrix composite are investigated to optimize the design of alloying system of interlayer. From the fracture surface of the TLP bonded joint of $\text{Al}_2\text{O}_3\text{p}/\text{Al}$ using pure copper foil, it can be seen that the Al_2O_3 particulates exhibit smooth surface without adhesives or disruption, and some areas of metal on fracture surface also appear smooth. The results indicate that the P/M interface bonding gets weak showing interfacial debonding fracture mode. A novel process of active-transient liquid phase (A-TLP) bonding with an interlayer containing both melting point depressant (MPD) and active alloying element is hence proposed to improve the interfacial wettability between weak P/M interface. When the Ti content is lower, a large amount of discontinuous adhesives with small size are present on the Al_2O_3 particulate surfaces in the A-TLP bonded joint as a result of reaction, while the P/M interfacial bonding becomes so strong that many Al_2O_3 particulates are disrupted during shear test in the case of higher Ti content.

Keywords: metal matrix composite; transient liquid phase bonding; active alloying element; interfacial reaction; fracture mode

对于颗粒增强铝基复合材料(MMC)的过渡液相扩散焊(TLP)的研究内容, 可分为以下若干方面:

铝基体表面的去膜^[1-3]; 焊缝中心颗粒偏聚的原因及防止; 焊接区陶瓷颗粒/金属(P/M)界面接合的改

善^[4-6];其他 TLP 派生工艺^[3,7-8]. 如何防止颗粒偏聚曾一度是研究热点,特别是在 1990 年代后半期. 极慢的等温凝固速度、陶瓷颗粒不能成为液态金属凝固时的形核质点、液态金属的大量挤出这 3 个方面被认为是颗粒偏聚的主要原因^[9]. 作为防止颗粒偏聚的主要措施,研究人员认为中间层不宜过厚,以免 MMC 母材溶解范围过宽,导致大量陶瓷增强相颗粒进入液相区以及大量液态金属被挤出^[9].

相对而言,关于 TLP 连接中改善 P/M 界面结合的研究文献较少. 在最近的报道中,张贵锋等^[4]将 P/M 界面分为一次界面(焊前制备态)与二次界面(焊后)2 类,并指出在 TLP 扩散焊过程中,P/M 界面经历了“一次界面的解体与二次界面的重建”,但由于 TLP 扩散焊过程中温度过低(不能超过基体熔点)、压力过低(不能出现明显变形),因此二次 P/M 界面的致密性要比一次 P/M 界面的差,即出现了二次界面的弱化,特别对于 P/M 界面不易反应的稳定复合系,如 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al}$,这种情况尤其明显. 必须指出,R/M 二次界面一旦被弱化,即使陶瓷增强相在接头内呈均匀分布,接头强度也难以提高. 因此,改善 R/M 二次界面的润湿性是决定焊接成败的关键.

P/M 界面间的结合状况首先取决于两者之间的润湿性,可选的主要改进途径有:对陶瓷颗粒进行涂/镀层或掺杂等预处理;改进金属基体的成分设计;合理控制气氛条件;加入钎剂;优选增强相;等等. 作者着眼于 P/M 界面润湿性的改善(特别是对于热力学稳定的陶瓷增强相如 Al_2O_3),试图通过改进中间层成分设计来实现反应润湿,循此思路提出了“活性过渡液相扩散连接(Active-TLP bonding, 简称 A-TLP 连接)”,即采用同时含有降熔元素和能与 MMC 内陶瓷增强相反应的活性元素的合金型中间层,并使这两种合金元素在焊接温度下均处于液态,以利于各自的扩散及反应. 目前,A-TLP 连接已申报国家发明专利(200810017375.3). 在近期新一轮的分析中,作者对 P/M 界面断裂模式的实验证据及界面产物的表征(连续性)有了新的思考. 本文以 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al}$ 的 A-TLP 连接为例,重点对比介绍了采用纯 Cu、Cu-Ti 活性合金层所得接头的断口分析结果,据此论证了 A-TLP 连接在改善二次 P/M 界面润湿性及断裂模式方面的优越性.

1 实验材料与方法

实验所用 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al}$ 母材为西安交通大学金

属材料强度国家重点实验室采用粉末冶金法制备,并经 520 °C 热挤压(挤压比为 9)的 $\varnothing 10$ mm 棒料. Al_2O_3 颗粒平均粒径为 35 μm ,体积分数为 20%. 为简化反应分析,基体采用纯 Al.

选用纯 Cu 箔(厚 50 μm)与 Cu-Ti 箔(Ti 质量分数分别为 2.5%、3.5%和 10%)中间层,分别进行了 TLP 与 A-TLP 对比实验. 焊接规范为 600 °C-90 min-0.16 MPa,真空度为 9 mPa. 所取焊接温度高于 Al-Cu 的共晶点(548 °C),以确保利用共晶反应(接触反应)获得液相并实现破膜的目的. 焊接试验在真空钎焊炉中进行,采用重物加压. 升温过程设为 3 个阶段:先以 10 °C/min 由室温升温至 500 °C,保温 10 min,即在液相即将出现前均温;再以 5 °C/min 由 500 °C 升至 600 °C;焊后炉冷. 本文主要对接头的组织、剪切性能及剪切断口进行分析,提出 A-TLP 连接能够改善 P/M 弱界面接合性的依据.

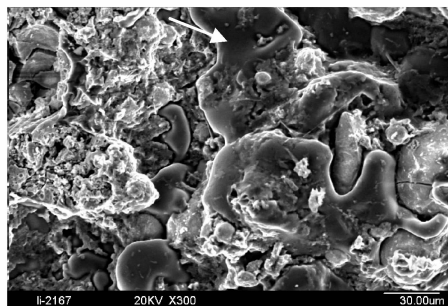
2 实验结果与讨论

2.1 TLP 接头断口

图 1 为 TLP 接头(用厚 50 μm 的纯 Cu 箔)剪切断口形貌的 SEM 照片. 从图 1a 可以看出,断口上的陶瓷颗粒增强相仍保持完好形状,既未破裂,也未在其表面观察到任何粘附物生成;从图 1b 可以看到,断口上部分液相金属表面光滑,似呈自由凝固状,由此可知这部分残余液相未与陶瓷相发生基



(a) Al_2O_3 颗粒表面形貌仍为完整球状(箭头所指)



(b) 部分基体的光滑表面形貌(箭头所指)

图 1 采用 50 μm 厚纯 Cu 箔所得 TLP 接头的剪切断口形貌 SEM 照片

本的反应润湿及进一步的粘连. 断口上陶瓷颗粒与焊缝基体形貌的观察结果均表明,传统 TLP 接头中 P/M 界面因未发生反应润湿而呈“界面脱粘”断裂方式. 由此可见,焊接区的 P/M 界面被弱化了.

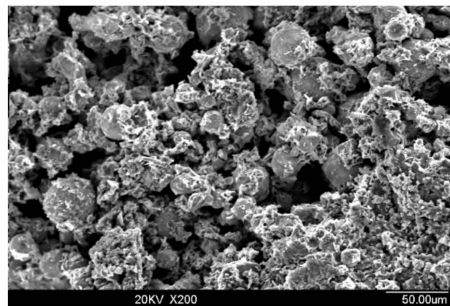
从全程关注焊接过程中焊接区“增强相/金属”(R/M)界面演变行为的角度分析,R/M 界面的弱化有其必然性. 这是由于^[4]:在经历 TLP 焊接热循环后,R/M 界面发生了一次 R/M 界面(焊前原始界面)的解体与二次 R/M 界面(焊后所得界面)的重建;一次 R/M 界面作为中间层扩散入母材的短路扩散通道,易于在基体溶解阶段被沿“R/M 界面”(无反应层的机械结合界面)或“反应层/金属界面”(有反应层的化学结合界面)解体;R/M 界面演变结果是,原致密且结合较强的一次界面(热挤压态)在基体溶解阶段被解体后,因界面润湿性差而蜕变为密合较差的二次弱界面. 与制备条件相比,TLP 连接过程中的低温(不允许超过基体熔点)、低压(不允许出现大变形),特别是中间层合金系的设计缺陷(无活性元素),均是导致 R/M 二次界面润湿性变差的重要原因. R/M 二次界面的致密性将因润湿性不良而变差.

综合作者的前期研究^[4]可知,影响传统 TLP 接头性能的不利因素有 3 项:P/M 二次界面的弱化(润湿性不良);颗粒偏聚;棱边处有环形缺口. 由此导致 TLP 接头在断裂方面具有如下特征:断裂位置在颗粒偏聚区(并非界面);断裂方式为 P/M 界面脱粘方式. 在上述 3 项因素中,颗粒偏聚与环形缺口主要通过适当减小中间层的“厚度”来解决,而二次 P/M 界面润湿性的改善主要通过优化中间层“成分”设计来解决(因温度与压力方面的潜力极为有限).

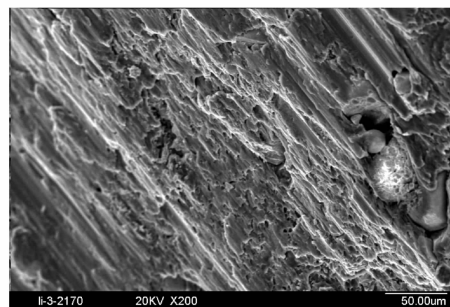
2.2 A-TLP 接头断口

图 2 为采用 100 μm 厚 Cu-2.5Ti 箔带所得 A-TLP 接头的剪切断口 SEM 照片. 该接头断口上用肉眼便可观察到存在 2 块面积大致相同但光亮度明显不同的区域. 由图 2a 可见,A-TLP 接头断口上的 Al_2O_3 颗粒表面明显有细微、凹凸不平且不连续的粘附物生成,图 2b 所示断口则呈现明显的塑性流变型剪切形貌,与母材的剪切断口特征一致^[4],表明断裂可扩展入母材内. 由此可见,A-TLP 连接接头呈混合断裂形式,即在颗粒偏聚区起裂,部分断裂可扩展入完好 MMC 母材的内部. 尽管 600 $^{\circ}\text{C}$ 的焊接温度远低于陶瓷/金属常用的活性钎焊温度(典型 Ag-Cu-Ti 钎料的活性钎焊温度一般在 800 $^{\circ}\text{C}$ 以上),而且也远低于液相法制备 MMC 的温度,但是活性元素 Ti 与

Al_2O_3 陶瓷颗粒增强相间的反应得以顺利实现,不过仍需再强化,以扩大反应面积(同时应适当抑制反应相的厚度). 因此,在进行成分设计时,除了在热力学方面考虑反应自由能变化量之外,还应尽量使活性元素处于液态,以便其迁移并反应.



(a) 焊缝中心颗粒偏聚区的颗粒表面反应产物形貌



(b) 母材区基体的塑性流变型剪切形貌

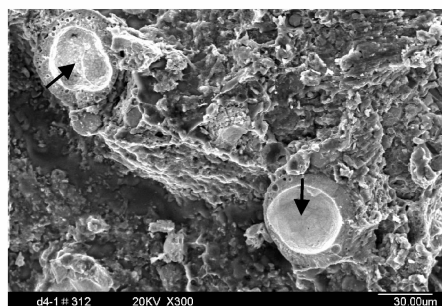
图 2 采用 100 μm 厚 Cu-2.5Ti 箔所得 A-TLP 接头的剪切断口上不同区域的 SEM 形貌

断裂路径向完好 MMC 母材内扩展,避免了断裂路径全位于颗粒偏聚区内,对提高接头强度非常有利. 这应归因于 P/M 界面反应粘附物适当强化了接头区,使裂纹改变方向朝母材内扩展. 有关 Ti 的分布与扩散行为,粘结相的测试、表征及优化控制,以及粘结相对断裂路径的影响及机理,有待于进一步研究.

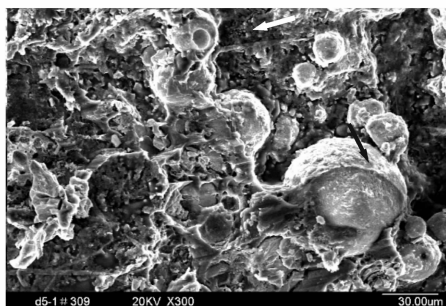
如图 3 所示,在采用 Cu-3.5Ti、Cu-10Ti 箔的 A-TLP 连接接头断口上,观察到了 Al_2O_3 陶瓷颗粒增强相破裂的情况,这使得 P/M 界面脱粘得以有效防止,但是因为边缘缺口窄而深以及基体脆化,接头强度并不高. Ti 虽然有防止液相流失的作用,但由此引起的被挤出液相在待焊面周边的聚集会加剧对棱边的溶解,使环状缺口窄而深,致使剪切时接头发生劈裂(见图 3a 左下部),对接头性能极为不利.

3 结 论

(1) 在采用纯 Cu 箔作中间层的传统 TLP 连接接头的剪切断口上, Al_2O_3 陶瓷颗粒增强相无破损,



(a) 采用 Cu-3.5Ti 箔中间层



(b) 采用 Cu-10Ti 箔中间层

图3 采用高 Ti 中间层的 A-TLP 接头断口上 Al_2O_3 颗粒的破裂形貌(箭头所指)

无粘结物,同时断口上部分金属基体呈自由凝固的光滑状表面,由此可知二次 P/M 界面润湿不良,致使传统 TLP 连接接头在剪切测试中呈 P/M 界面脱粘断裂方式。

(2)A-TLP 的优越性主要体现在以下 3 个方面:①在 M/M 界面处,继承了传统 TLP 工艺可获得良好 M/M 界面接合的优点,表现为所制备的 Cu-Ti 合金系活性中间层均在 $600\text{ }^{\circ}\text{C}$ 通过与 Al 基体反应而被顺利液化,同时使基体必然发生溶解;②在 P/M 界面处,改善了二次 P/M 界面的润湿性;③对 P/M 界面润湿性及断裂模式的改善优化了接头断裂路径。

(3)在 A-TLP 连接中,Ti 含量的影响可初步概括为:对 P/M 界面的反应润湿、挤出液相的流失距离、新形成基体的塑性、环形缺口的形状与尺寸、P/M 界面的断裂模式、接头断裂路径与强度等方面有直接或间接影响;当 Ti 含量较低时, Al_2O_3 颗粒增强相表面出现细微、凹凸不平且不连续的界面反应物,有利于改善 R/M 界面的润湿性与粘结强度,避免了 P/M 界面脱粘;当 Ti 含量较高时,P/M 界面可形成强力结合,足以使陶瓷颗粒本身破裂。但是,Ti 的过量添加会引起基体塑性变形能力变差,焊接面周边的环状缺口窄而深,接头强度锐减。

致谢 西安交通大学金属材料强度国家重点实验室的柴东朗教授提供了复合材料母材,柳永宁教授为二元活性钎料的冶炼提供了实验条件,谨致谢忱。

参考文献:

- [1] YAN J C, XU H B, SHI L, et al. Vibration assisted brazing of SiCp/A356 composites: microstructure and mechanical behaviour [J]. Science and Technology of Welding and Joining, 2008, 13(8): 760-764.
- [2] XU Huibin, YAN Jiuchun, XU Zhiwu. Interface structure changes during liquid phase bonding of SiCp/A356 composite in air [J]. Composite, A: Applied Science and Manufacturing, 2006, 37(9): 1458-1463.
- [3] XU Zhiwu, YAN Jiuchun, WU Gaohui, et al. Interface structure and strength of ultrasonic vibration liquid phase bonded joints of $\text{Al}_2\text{O}_3\text{p}/6061\text{Al}$ composite [J]. Scripta Materialia, 2005, 53(7): 835-839.
- [4] ZHANG Guifeng, ZHANG Jianxun, PEI Yi, et al. Joining of $\text{Al}_2\text{O}_3\text{p}/\text{Al}$ composite by transient liquid phase (TLP) bonding and a novel process of active-transient liquid phase (A-TLP) bonding [J]. Materials Science and Engineering: A, 2008, 488(1/2): 146-156.
- [5] HUANG J H, WAN Y, ZHAO H T, et al. Effect of Ti on TLP bonding of SiCp/2618Al composites using interlayers of mixed Al-Ag-Cu system powders [J]. Materials Science and Technology, 2007, 23(1): 87-91.
- [6] HUANG J H, DONG Y L, WAN Y, et al. Reactive diffusion bonding of SiCp/Al composites by insert layers of mixed powders [J]. Materials Science and Technology, 2005, 21(10): 1217-1221.
- [7] YAN Jiuchun, XU Zhiwu, WU Gaohui, et al. Interface structure and mechanical performance of TLP bonded joints of $\text{Al}_2\text{O}_3/6061\text{Al}$ composites using Cu/Ni composite interlayer [J]. Scripta Materialia, 2004, 51(2): 147-150.
- [8] GUO Wei, HUA Meng, LAW H W, et al. Liquid-phase impact diffusion welding of SiCp/6061Al and its mechanism [J]. Materials Science and Engineering: A, 2008, 490(1/2): 427-437.
- [9] 张贵锋,张建勋,裴怡,等. 金属基复合材料过渡液相(TLP)扩散焊中间层设计的改进[J]. 热加工工艺(焊接版), 2006, 35(19): 28-31.
ZHANG Guifeng, ZHANG Jianxun, PEI Yi. Improvement of interlayer design for transient liquid phase bonding of metal matrix composite [J]. Hot Working Technology, 2006, 35(19): 28-31.

(编辑 葛赵青)