第 25 卷第 3 期 Volume 25 Number 3 2015年3月 March 2015

文章编号:1004-0609(2015)-03-0662-06

# Ti<sub>2</sub>AlNb 基合金固态扩散连接工艺



李贝贝<sup>1</sup>, 王 斌<sup>2</sup>, 李 萍<sup>1</sup>, 刘雨生<sup>1</sup>, 薛克敏<sup>1</sup>

(1. 合肥工业大学 材料科学与工程学院,合肥 230009;
 2. 中国航天科工集团 第三研究院 306 研究所,北京 100074)

摘 要:采用真空热压扩散工艺,进行 Ti<sub>2</sub>AlNb 基合金的固态扩散连接,利用扫描电子显微镜及拉伸试验,对连 接界面进行了组织和性能分析。结果表明:Ti<sub>2</sub>AlNb 基合金扩散连接对连接温度十分敏感,当温度为 950 时, 合金的抗强度最大且拉伸断口由大量等轴状韧窝组成,具有典型的韧性断裂特征;增大连接压力有利于界面冶金 结合,但实际中希望压力尽可能小;保温时间决定扩散层深度,当保温时间为 120 min 时,扩散层深度约为 2 μm, 连接面实现了良好的冶金结合。通过实验确定了较佳连接工艺规范为温度 950 ,压力 10~15 MPa,时间 120 min。 关键词:金属间化合物;Ti<sub>2</sub>AlNb 基合金;界面;扩散连接 中图分类号:TG146.2 文献标志码:A

## Solid diffusion bonding of Ti<sub>2</sub>AlNb-based alloy

LI Bei-bei<sup>1</sup>, WANG Bin<sup>2</sup>, LI Ping<sup>1</sup>, LIU Yu-sheng<sup>1</sup>, XUE Ke-min<sup>1</sup>

(1. School of Materials Science and Engineering, Hefei University of Technology, Hefei 230009, China;

2. 306 Research Institute, The Third Research Academy of

China Aerospace Science and Industry Corporation, Beijing 100074, China)

**Abstract:** Ti<sub>2</sub>AlNb-based alloy diffusion bonding was prepared by the vacuum warm compaction diffusion method, the structures and performances of the bonding interfaces were analyzed by scanning electron microscope and tensile test. The results indicate that Ti<sub>2</sub>AlNb-based alloy diffusion bonding is sensitive to temperature, when temperature is 950  $\,$ , the tensile strength is the largest, and the tensile fracture is composed of a lot of toughening nests, which shows typical ductile fracture characteristics. Increasing connection pressure is beneficial to the metallurgical bonding interface, but in reality, low pressure is expected. The depth of diffusion layer is determined by heat preservation time, when the time is 120 min, the depth is about 2  $\mu$ m, the junction surface achieves good metallurgical bonding. The better parameters are determined by experiment, which are temperature 950  $\,$ , pressures 10–15 MPa, time 120 min. **Key words:** intermetallic compound; Ti<sub>2</sub>AlNb-based alloy; interface; diffusion bonding

在 Ti<sub>3</sub>Al 基合金韧化机制的研究过程中,印度学 者 BANERJEE 等<sup>[1]</sup>于 1988 年首先发现了 Ti<sub>2</sub>AlNb 相, 具有 *CmCm* 晶体结构,属于正交系的有序相,又称为 *O* 相。作为典型的 Ti-Al 系金属间化合物,Ti<sub>2</sub>AlNb 基 合金具有较高比强度、室温塑性、断裂韧性和蠕变抗 力,且具有较好的抗氧化性、无磁性等优点,可在 600~800 长时间使用、1000 以上短时间使用。这 些优异的性能使 Ti<sub>2</sub>AlNb 基合金成为最具潜力的航空 航天高温结构材料<sup>[2-9]</sup>。

关于 Ti<sub>2</sub>AINb 基合金的研究多集中在合金成分设 计、热加工成形、材料组织与性能的控制方面<sup>[3-12]</sup>, 由于宇航部件结 构复杂,多为同种或异种材料连接,

基金项目:国家自然科学基金资助项目(51175137);教育部新世纪优秀人才支持计划(NCET-13-0765)

收稿日期:2014-05-14;修订日期:2014-12-28

通信作者:李 萍,教授,博士;电话:0551-62901368;E-mail:cisi 1314@126.com

因此,Ti<sub>2</sub>AlNb 基合金的焊接研究是此类材料推广应 用的关键问题。Ti<sub>2</sub>AlNb 基合金的合金化程度高、热 导率低、热应力大,属于难焊接材料<sup>[10-14]</sup>,迄今为止, 关于该合金焊接的研究还非常有限。固态扩散连接在 制作结构简单的构件时更易获得室温和高温强度更理 想的接头<sup>[15-18]</sup>。

本文作者对 Ti<sub>2</sub>AlNb 基合金的扩散连接工艺进行 了实验研究,并利用扫描电子显微镜(SEM)、拉伸试 验等测试分析手段,对合金材料的结合界面进行组织 及性能分析,研究结果为 Ti<sub>2</sub>AlNb 基合金的实际应用 提供指导。

## 1 实验

#### 1.1 实验材料

研究所用材料为 Ti<sub>2</sub>AlNb 基 (O 相)合金,材料密 度为 5.278 g/cm<sup>3</sup>,合金室温下的抗拉强度为 1126 MPa。合金的原始显微组织如图 1 所示,由 O 相、B2 相和  $a_2$  相组成,初生的  $a_2$  相或 O 相等轴颗粒及二次 的  $a_2/O$  相细板条分布于连续的 B2 相基体中,该 Ti<sub>2</sub>AlNb 基合金组织为双态组织,该组织具有良好的 综合性能。



图 1 Ti<sub>2</sub>AlNb 基合金原始显微组织

Fig. 1 Original microstructure of Ti<sub>2</sub>AlNb-based alloy

#### 1.2 实验方法

采用真空热压扩散工艺进行扩散连接实验,试样 尺寸为 *d* 38 mm×22 mm,连接前对待焊表面依次用 240~2000 号砂纸依次进行打磨,并将打磨后的试样放 入丙酮中进行超声波清洗、烘干。连接过程中,要求 真空度达到 1×10<sup>-4</sup> Pa,以一定的加热速率达到扩散 连接温度,保温一段时间后加压到所需压力,并保压 至扩散连接所需时间后卸载、炉冷,扩散连接工艺参 数为连接温度、保温时间及连接压力。

合金进行室温拉伸试验,拉伸试样均从扩散连接 后的试样上截取,并保证连接界面位于拉伸试样的中 间位置。试样经线切割制备后放在超声波清洗器中洗 去污垢,分别用 240 号、400 号、800 号、1000 号型 号砂纸磨除线切割痕迹。室温拉伸试验在 MTS-810 试验机上进行,室温拉伸试验应变速率为  $1.2 \times 10^{-2} s^{-1}$ 。

在线切割设备上切取 8 mm × 10 mm × 5 mm 的矩 形小试样,经过多道砂纸打磨平整后分别进行机械抛 光和电解抛光,并采用 Kroll 试剂对抛光面进行腐蚀。 电解抛光电解液配比为:6%高氯酸+60%甲醇+34%正 丁醇(体积分数),抛光温度为-40 左右,抛光电流为 0.80 A,抛光时间约 90 s。Kroll 试剂由 HF、HNO<sub>3</sub>和 H<sub>2</sub>O 组成,各组分体积比为  $V(HF):V(HNO_3):V(H_2O)=$ 1:3:7,各试样腐蚀时间均为 15 s。采用 FEI Quanta 200 FEG 场发射扫描电子显微镜观察接头的显微组织及拉 伸断口形貌,研究连接温度、连接压力及保温时间对 扩散连接接头质量的影响,从而确定 Ti<sub>2</sub>AlNb 基合金 扩散连接的最佳工艺参数。

## 2 结果与分析

#### 2.1 连接温度的影响

连接温度的变化会对连接初期表面凸出部位的塑 性变形、扩散系数、表面氧化物向母材内的溶解以及 界面孔洞的消失过程等产生显著影响。连接温度对材 料的扩散十分重要,根据扩散定律,扩散系数 D 与扩 散温度 T 有如下指数关系<sup>[9,13-18]</sup>:

$$D = D_0 \exp\left(\frac{-Q}{RT}\right) \tag{1}$$

式中: D<sub>0</sub>为扩散常数; Q 为扩散激活能; R 为摩尔气 体常数; T 为扩散温度。可知,温度越高,扩散系数 越大,扩散温度 T 越高,供金属原子扩散所需要的能 量越高,界面间原子相互扩散的程度就越大。同时, 温度越高,金属的塑性变形能力越好,连接表面达到 紧密接触所需要的压力越小。所以,在一定的温度范 围内,连接温度越高,越有利于提高接头强度。但是, 连接温度同时受到连接材料物理、冶金等方面的限制, 再结晶和晶粒长大等因素又可能造成接头质量的下 降<sup>[9,13-18]</sup>。由此可见,扩散连接温度是一个十分关键 的工艺参数,选择时要综合考虑各种因素,应在尽可 能短的时间内,尽可能小的连接压力下达到良好的连 接,而又不损害母材的组织和性能。扩散连接温度大 都在 0.5θ<sub>m</sub>~0.7θ<sub>m</sub>(θ<sub>m</sub> 为母材熔化温度)范围内,针对 Ti<sub>2</sub>AlNb 基合金,选择扩散连接的温度范围为 900~980 。图2所示为压力为15 MPa、保温时间为 120 min 时不同连接温度下所得连接件的抗拉强度。 由实验结果可知,扩散连接接头的抗拉强度对连接温 度十分敏感。随着扩散连接温度的增高,接头的抗拉 强度也随之升高,当温度达到950 时,抗拉强度最 大。此后,随着扩散连接温度的增高,接头的抗拉强 度反而降低。因此,950 是取得良好接头的扩散连 接温度条件。



图 2 温度对扩散连接抗拉强度的影响

Fig. 2 Influence of temperature on tensile strength of diffusion bonding

图 3 所示为 *p*=15 MPa、*t*=120 min 条件下连接温 度分别为 920 和 950 时扩散连接接头组织的背散射 电子像。由图 3 可见, 920 条件下存在大量的未闭 合孔洞, 950 时扩散充分,形成良好的焊接接头。 说明温度低的情况下,连接界面及其附近处的原子扩 散不够充分,使得孔洞收缩相对困难,因而焊合率(指 焊合良好的界面线长度与试样被检查界面线长度之比) 低;温度越高,在相同连接压力情况下,在扩散连接 的初期阶段,连接界面即可形成较大面积的可靠物理 接触,即有更多的原子扩散通道,同时,较快的原子 扩散速度又可加速孔洞的闭合,所以,温度越高越有 利扩散的进行。

图 4 所示为 *p*=15 MPa、*t*=120 min、*θ*=950 时扫 描电镜下拉伸断口形貌。可以看出,拉伸断口由大量 的韧窝组成,具有典型的韧性断裂特征。结合图 3(b), 对断裂特征进行分析可看出,扩散连接后,母材组织 为典型的双态组织、粒状及片状 *O* 相均匀分布在基体 *B*2 相中;而扩散层组织为粒状 *O* 相分布在连续的 *B*2 相中,为等轴组织类型。与等轴组织相比,双态组织 具有强度和塑性的最佳配合,因而断裂发生在结合界



图 3 15 MPa、120 min 时不同温度下扩散连接接头显微组织 Fig. 3 Microstructures of diffusion bonding joint at 15 MPa, 120 min and different temperatures: (a) 920 ; (b) 950



图 **4** 15 MPa、120 min、950 下扩散连接接头组织及拉伸 断口形貌

Fig. 4 Tensile fracture morphology at 15 MPa,120 min and 950

面处,并表现为韧性断口形貌。

#### 2.2 连接压力的影响

连接压力主要是通过金属塑性变形来改善连接面 的物理接触状况及其对接头性能产生的影响。高温状 态时,金属的屈服强度将明显下降,使接触界面更容 易产生局部的微量塑性变形,而形成可靠的连接。连 接压力确保两个待连接面有足够的原子扩散通道进行 互扩散、回复和再结晶等,从而形成良好的冶金 结合<sup>[13-18]</sup>。

通过 Ti<sub>2</sub>AlNb 基合金高温拉伸试验,得到合金在 950 条件下,应变速率分别为 1×10<sup>-3</sup>、1×10<sup>-4</sup> 和 5×10<sup>-5</sup>s<sup>-1</sup>时,合金的高温屈服强度依次是 57、30 和 23 MPa,可见随着应变速率的减小,合金的高温屈服 强度明显降低。由于扩散连接实验在高温下进行,且 需要较长的保温时间,连接过程中合金的应变速率很 小,所以扩散连接下的合金屈服强度低,因而扩散连 接压力不能过大,以保证连接件不发生较大的变形。 但连接压力过小时,界面间不能达到原子间距,扩散 连接不充分,无法实现接头的有效结合。因此,要选 择合适的连接压力,本实验中连接压力选择范围为 5~15 MPa。

图 5 所示为温度为 950 、保温时间为 120 min 时不同的连接压力下所得连接试件的抗拉强度值。由 图 5 可知,在压力为 5~15 MPa 时,随着压力增大, 接头的抗拉强度增大。这是由于随着压力的增大,材 料表面的微观凸起快速接触和变形,并最终使表面形 成金属键连接。且在 950 的高温条件下,当压力较 大时,粘塑性变形机理将对扩散连接过程发挥重要作 用,伴随着的位错滑移促进孔洞的收缩,从而使连接 面获得足够的原子扩散通道,获得良好质量的焊接接 头,表现为接头拉伸强度逐渐提高,这同时也必将有 助于减少扩散连接的保温时间。

图 6 所示为 Ti<sub>2</sub>AlNb 基合金在 950 、120 min 时不同压力条件下扩散连接的显微组织。当压力为 5 MPa 时,连接部分存在大量未焊合区,焊合率仅为





Fig. 5 Influence of pressure on tensile strength of diffusion

bonding

69%;当连接压力为 10 MPa 时,扩散连接的焊合率为 83%,连接处仍有部分微观孔洞未闭合;在连接压力 达到 15 MPa 时,在接头处的原始界面已经完全消失, 接头处金属原子扩散充分,界面上的微孔消失,通过 原子不断地扩散和再结晶,形成了良好的扩散连接接 头。可见,压力是影响扩散连接质量的重要因素,当 连接压力增大时,扩散连接表面的变形量增加,变形 聚集的能量增加,进一步促进孔洞的闭合和原子扩散 的进行。连接压力过小,界面间不能达到原子间距, 扩散连接不充分,无法实现接头的有效结合;但连接 压力过大,则对设备能力和模具强度提出更高的要求, 也可引起连接件的变形,因此,要选择合适的连接压



图 6 950 、120min 时不同压力下扩散连接接头显微组织 Fig. 6 Microstructures of diffusion bonding joint at 950 , 120 min and different pressures: (a) 5 MPa; (b) 10 MPa; (c) 15

力,扩散连接希望尽可能在低压下进行。根据实验结果,Ti<sub>2</sub>AlNb 基合金扩散连接选取 10~15 MPa 的连接 压力。

#### 2.3 保温时间的影响

保温时间影响被连接材料表面微观蠕变过程及原 子扩散的程度。在一定的温度和压力下,扩散原子迁 移的平均距离即扩散距离与时间的关系如下<sup>[17]</sup>:

$$\delta = K\sqrt{Dt} \tag{2}$$

式中:δ为扩散距离,mm;t为扩散时间,min;D为 扩散系数;K为常数。由式(2)可以看出,时间对扩散 距离有着直接的影响,扩散距离与时间的平方根成正 比。通常,时间越长,扩散距离越大,界面有效扩散 原子越多。因此,在扩散连接过程中,适当延长保温 时间,可使扩散更为充分,促进接头元素成分及组织 的均匀化。扩散连接中,合适的保温时间,是获得良 好连接接头的关键<sup>[9]</sup>。

图 7 所示为 Ti<sub>2</sub>AlNb 基合金在温度为 950 、压 力为 15 MPa 时不同保温时间条件下扩散连接接头的 显微组织。由图 7 可以看出,当保温时间为 60 min 时, 连接处还有大量的微孔存在,焊合率很低,这是由于 保温时间过短时,两边原子来不及充分扩散,不能形 成良好的结合;当保温时间为90min时,初始界面基 本消失,但连接面仍有少量微孔,可见随着保温时间 的延长,形成的扩散层深度逐渐增大;当保温时间为 120 min 时,连接面实现了良好的界面冶金结合,扩 散层深度约为 2 μm,这是由于随着保温时间的进一步 增加,两边原子可以进行充分的扩散,原子迁移距离 增大,形成较大的扩散层深度。由于 950 对于 Ti<sub>2</sub>AlNb 基合金扩散连接来说,并不算是高温,且第 二相的存在抑制基体晶粒的长大,因而,在扩散连接 过程中,组织并没有明显粗大。可见,保温时间是获 得良好接头质量的关键条件,保温时间太短,原子扩 散不足;适当地延长保温时间,可以使原子扩散更加 均匀、充分,获得良好的接头质量;但是如果保温时 间过长,会造成接头晶粒长大,而使接头性能下降。 比较而言,保温时间为120 min 时可实现良好的扩散 连接。

## 3 结论

1) Ti<sub>2</sub>AlNb 基扩散连接对连接温度十分敏感,在

900~950 温度范围内,接头的拉伸强随温度的升高



图 7 950 、15MPa 时不同保温时间下扩散连接接头的显 微组织

Fig. 7 Microstructures of diffusion bonding joint at 950 ,
15 MPa and different heat preservation times: (a) 60 min; (b)
90 min; (c) 120 min

明显增大,当温度大于 950 时,接头拉伸强度有所 降低;当温度为 950 时,拉伸断口由大量等轴状韧 窝组成,具有典型的韧性断裂特征。

2) 增大连接压力有利于实现界面冶金结合,但压 力过大,会引起连接件的变形,同时对设备能力和模 具强度提出更高要求。 Ti<sub>2</sub>AINb 基合金扩散连接压力 为 10~15 MPa 时较为适合。

3)保温时间影响扩散层深度,保温时间过短时, 两边扩散不足,随着保温时间的延长,扩散层深度逐 渐增大;当保温时间为 120 min 时,扩散层深度约为 2 μm, 连接面实现了良好的界面冶金结合。

#### REFERENCES

- BANERJEE D, GOGIA A K, NANDI T K, JOSHI V A. A new ordered orthorhombic phase in a Ti<sub>3</sub>Al-Nb alloy[J]. Acta Metall, 1988, 36: 871–882.
- [2] KUMPFERT J. Intermetallic alloys based on orthorhombic titanium aluminide[J]. Advanced Engineering Materials, 2001, 3(11): 851–864.
- [3] LI Shi-qiong, MAO Yong, ZNANG Jian-wei, LI Jun-tao, CHENG Yun-jun, ZHONG Zeng-yong. Effect of microstructure on tensile properties and fracture behavior of intermetallic Ti<sub>2</sub>AlNb alloys[J]. Transactions of Nonferrous Metals Society of China, 2002, 12(4): 582–586.
- [4] SONG Hui, WANG Zhong-jin, HE Xiao-dong. Improving in plasticity of orthorhombic Ti<sub>2</sub>AlNb-based alloys sheet by high density electropulsing[J]. Transactions of Nonferrous Metals Society of China, 2013, 23(1): 32–37.
- [5] 张建伟,李世琼,梁晓波,程云君. Ti<sub>3</sub>Al和Ti<sub>2</sub>AlNb 基合金的 研究与应用[J]. 中国有色金属学报,2010,20(1):336-341. ZANG Jian-wei, LI Shi-qiong, LIANG Xiao-bo, CHENG Yun-jun. Research and application of Ti<sub>3</sub>Al and Ti<sub>2</sub>AlNb based alloys[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2010, 20(1): 336-341.
- [6] 冯艾寒,李渤渤,沈 军. Ti<sub>2</sub>AlNb 基合金的研究进展[J]. 材 料与冶金学报, 2011, 3701(1): 30-38.
  FENG Ai-han, LI Bo-bo, SHEN Jun. Recent advances on Ti<sub>2</sub>AlNb-based alloys[J]. Journal of Materials and Metallurgy, 2011, 3701(1): 30-38.
- [7] 王 新, 卢 斌, 王娟华, 王 俭, 王红武, 陈永辉. 退火态 Ti<sub>2</sub>AlNb 合金板材的超塑性变形行为[J]. 中国有色金属学报, 2010, 20(S1): s289-s292.
  WANG Xin, LU Bin, WANG Juan-hua, WANG Jian, WANG Hong-wu, CHEN Yong-hui. Superplastic deformation behavior of annealed Ti<sub>2</sub>AlNb alloy sheet[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2010, 20(S1): s289-s292.
- [8] CHENG Yun-jun, LI Shi-qiong, LIANG Xiao-bo, ZNANG Jian-wei. Effect of deformed microstructure on mechanical properties of Ti-22Al-25Nb alloy[J]. Transactions of Nonferrous Metals Society of China, 2006, 16(3): 582–586.
- [9] 张 翥, 王群骄. 钛的金属学和热处理[M]. 北京: 冶金工业 出版社, 2009.
   ZHANG Zhu, WANG Qun-jiao. Physica metallurgy and heat treatment of titanium [M]. Beijing: Metallurgical Industry Press, 2009.
- [10] 杨 锐, 郝玉琳, OBBARD E G, 董利民, 卢 斌. 钛合金中 的正交相变及其应用[J]. 金属学报, 2010, 46(11): 1443-1449.

YANG Rui, HAO Yu-lin, OBBARD E G, DONG Li-min, LU Bin. Orthorhombic phase transformations in titanium alloys and their applications[J]. Acta Metallurgica Sinica, 46(11): 1443–1449.

- [11] WU B, ZINKEVICH M, ALDINGER F, SHEN J Y. Prediction of the ordering behaviours of the orthorhombic phase based on Ti<sub>2</sub>AlNb alloys by combining thermodynamic model with ab initio calculation[J]. Intermetallics, 2008, 16: 42–51.
- [12] 何 鹏, 冯吉才, 韩杰才, 钱乙余. TiAl 金属间化合物及其连接技术的研究进展[J]. 焊接学报, 2002, 23(5): 91-96.
  HE Peng, FENG Ji-cai, HAN Jie-cai, QIAN Yi-yu. Advances in TiAl intermetallics and its joining technology[J]. Transactions of the China Welding Institution, 2002, 23(5): 91-96.
- [13] LEE K S, KWON Y N. Solid-state bonding between Al and Cu by vacuum hot pressing [J]. Transactions of Nonferrous Metals Society of China, 2013, 23(2): 341–346.
- [14] 黄钢华,张益华,门向南,窦小丽. 钛合金超塑成形/扩散连接的数值模拟及工艺研究[J]. 稀有金属与硬质合金,2009, 37(3):16-19,35.

HUANG Gang-hua, ZHANG Yi-hua, MEN Xiang-nan, DOU Xiao-li. Numerical simulation and technical study of superplastic forming/diffusion bonding for Ti alloy sheet[J]. Rare Metals and Cemented Carbides, 2009, 37(3): 16–19, 35.

[15] 邹贵生,白海林,谢二虎,宁立芹,梁德彬. Ti<sub>3</sub>Al 基合金及其 与异种材料的连接研究现状[J]. 宇航材料工艺,2007,37(1): 1-5,67.

ZOU Gui-sheng, BAI Hai-lin, XIE Er-hu, NING Li-qin, LIANG De-bin. Research development of Ti<sub>3</sub>Al-based alloys and joining them to dissimilar materials[J]. Aerospace Materials and Technology, 2007, 37(1): 1–5, 67.

[16] 邹贵生,白海林,谢二虎,吴树甲,吴爱萍,王 庆,任家烈. 0相合金 Ti-22Al-25Nb 固态扩散连接[J].中国有色金属学报, 2008,18(4): 577-582.

ZOU Gui-sheng, BAI Hai-lin, XIE Er-hu, WU Shu-jia, WU Ai-ping, WANG Qing, REN Jia-lie. Solid diffusion bonding of Ti-22Al-5Nb *O* phase alloy[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2008, 18(4): 577–582.

- [17] 李志远,钱乙余,张九海.先进连接方法[M].北京:机械工 业出版社,2000:132-134.
  LI Zhi-yuan, QIAN Yi-yu, ZHANG Jiu-hai. Advanced connection methods[M]. Beijing: China Machine Press, 2000: 132-134.
- [18] ZHONG Zhi-hong, HINOKI T, NOZAWA T, PARK Y H, KOHYAMA A. Microstructure and mechanical properties of diffusion bonded joints between tungsten and F82H steel using a titanium interlayer[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2010, 489(2): 545–551.

(编辑 李艳红)