

[文章编号] 1004-0609(2001)02-0273-06

Ti/Cu/Ti 部分瞬间液相连接 Si₃N₄ 的界面反应和连接强度^①

周 飞¹, 李志章²

(1. 江苏理工大学 材料系, 镇江 212013; 2. 浙江大学 材料系, 杭州 310027)

[摘 要] 用 Ti/Cu/Ti 多层中间层在 1273 K 进行氮化硅陶瓷部分瞬间液相连接, 实验考察了保温时间对连接强度的影响。用 SEM, EPMA 和 XRD 对连接界面进行微观分析, 并用扩散路径理论, 研究了界面反应产物的形成过程。结果表明: 在连接过程中, Cu 与 Ti 相互扩散, 形成 Ti 活度较高的液相, 并与氮化硅发生反应, 在界面形成 Si₃N₄/TiN/Ti₅Si₃+Ti₅Si₄+TiSi₂/TiSi₂+Cu₃Ti₂(Si)/Cu 的梯度层。保温时间主要是通过影响接头反应层厚度和残余热应力大小而影响接头的连接强度。

[关键词] 部分瞬间液相连接; 氮化硅; 扩散路径; 界面反应; 连接强度

[中图分类号] TG 454; TG 113.26

[文献标识码] A

氮化硅陶瓷因其优异的物理、化学和力学性能而被广泛地应用到工业的各个领域。但由于氮化硅是共价键结合的化合物, 其固有脆性限制了形状大而复杂的构件的制备, 因此需要陶瓷连接技术将形状小而简单的陶瓷件连接成形状大而复杂的构件。目前, 活性金属钎焊和固相扩散连接是陶瓷/金属(陶瓷)连接的常用工艺方法。然而, 由于陶瓷与金属的热膨胀系数和弹性模量相差较大, 在连接界面附近易产生很大的残余应力而削弱连接强度。

为了实现陶瓷/金属(陶瓷)的可靠连接, 人们提出缓冲界面应力的陶瓷/金属(陶瓷)部分瞬间液相连接(PTLP bonding)工艺^[1~4]。目前, 活性金属部分瞬间液相连接陶瓷的中间层主要有 Ti/Ni/Ti^[1, 2, 4]。由于 Ni 与 Ti 反应生成 NiTi 共晶脆性相, 导致接头连接强度较低, 而 Cu 是较好的缓冲层材料^[5], 如果接头中存在中间层 Cu, 将起到释放残余应力的作用。文献[6]根据 Ti/Ni/Ti 与 Ti/Cu/Ti 部分瞬间液相连接氮化硅的界面行为, 建立了活性金属部分瞬间液相连接陶瓷的理论模型。本文作者利用 SEM, EPMA 和 XRD 等测试手段, 主要研究 Ti/Cu/Ti 部分瞬间液相连接 Si₃N₄ 的界面反应机理和扩散路径以及保温时间对界面反应和连接强度的影响。

1 实验方法

试验采用气压烧结的 β-Si₃N₄ 陶瓷, 尺寸为 19

mm×19 mm×6 mm, Cu 和 Ti 的纯度大于 99.8%, Cu 的厚度为 0.8 mm。用丙酮将 Ti 粉制成浆料, 然后在 Si₃N₄ 陶瓷的连接面上涂上 0.2 mm 厚的 Ti 粉涂层。按 Si₃N₄/Ti/Cu/Ti/Si₃N₄ 的顺序装入夹具中进行连接, 连接压力为 0.16 MPa。通入氩气进行保护, 达到连接温度 1273 K 后, 分别保温 15, 25, 35 和 60 min。用 SEM, EPMA 和 XRD 对接头进行微观分析。用四点弯曲的方法测定接头的室温和高温弯曲强度, 弯曲强度数据均为同一工艺条件下 3 个试样的平均值。

2 结果与分析

2.1 界面的 EPMA 和 XRD 分析

根据 Ellingham 图可知, 每摩尔 N₂ 参与反应形成 Si₃N₄ 和 TiN 时的生成自由能为:

$$\Delta G_f^\ominus(\text{Si}_3\text{N}_4)/(\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}) = -396.48 + 0.2066T \quad (1)$$

$$\Delta G_f^\ominus(\text{TiN})/(\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}) = -679.14 + 0.1915T \quad (2)$$

由式(1)和(2)可知: Si₃N₄ 没有 TiN 稳定。当 Ti 与 Si₃N₄ 在高温接触时, Ti 将与 Si₃N₄ 中的 Si 和 N 反应, 生成 TiN 和 Ti 的硅化物。图 1(a)~(d) 显示在 1273 K, 保温 25 min 时, Si₃N₄/Ti/Cu 接头剖面的扫描电镜照片和元素的面扫描分析图像。通过对比可以发现, 接近氮化硅陶瓷的反应层中几乎不含有 Cu, 但 Ti 的含量明显高于 Si 的含量; 第二反应层

① [收稿日期] 2000-06-27; [修订日期] 2000-08-20

[作者简介] 周 飞(1969-), 男, 讲师, 博士。

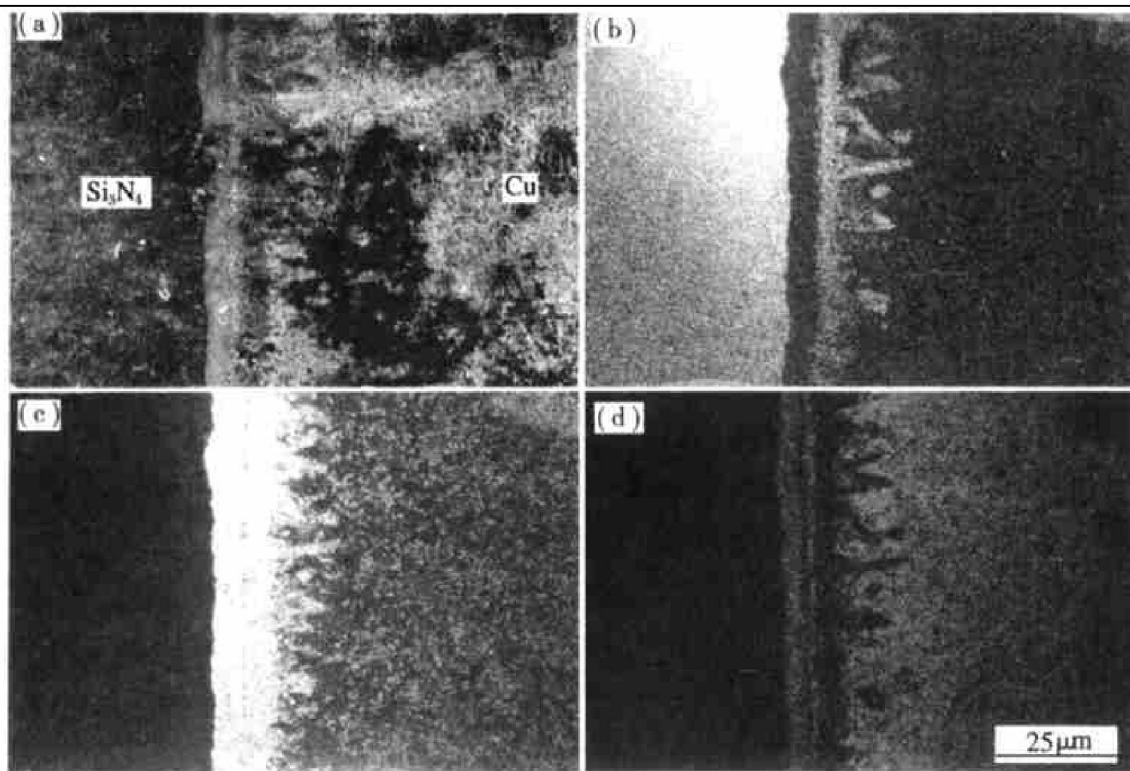


图 1 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Ti}/\text{Cu}$ 的接头剖面的扫描电镜照片和 Si, Ti, Cu 的面扫描分析图

Fig. 1 Microstructure and element area distribution images of

Si, Ti, Cu for $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Cu}$ joint at 1273 K for 25 min

(a) —SEM image; (b) —Si; (c) —Ti; (d) —Cu

则含有 Ti, Si, Cu; 表明 TiN 优先在界面上生成和长大, 反应中释放的 Si 原子通过 TiN 层向 Cu-Ti 合金侧扩散, 并在 TiN/Cu-Ti 合金界面处生成硅化物相。

为了研究活性金属 Ti 的反应相种类及其分布, 实验中对弯曲试验断口进行剥层 X 射线分析。测试结果如图 2(a) ~ (c) 所示。在断口面上, 界面反应产物为 TiN, Ti_5Si_3 , Ti_5Si_4 , TiSi_2 相 (见图 2(a))。其中 TiN, Ti_5Si_3 衍射峰的强度最高, Ti_5Si_4 的次之; 随后向钎料层进行剥层 XRD 分析 (见图 2(b)), 当全部磨去灰色反应物时 (磨去约 10 μm 表层后的样品), 出现金黄色的表面, 此时已不存在 Ti_5Si_3 和 Ti_5Si_4 反应相的衍射峰, 而是 TiSi_2 和 TiN 的衍射峰。若继续剥层分析 (累计磨去约 20 μm 表层后的样品), 在图 2(c) 中已不存在 TiN 的衍射峰, 仅有 Cu_3Ti_2 和 TiSi_2 相的衍射峰。剥层 X 射线分析结果表明, 在氮化硅陶瓷和铜之间引入活性钛进行活性金属部分瞬间液相连接氮化硅陶瓷时, 界面 Cu-Ti 二元液相的形成及界面反应, 使陶瓷/金属之间形成 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{TiN}/\text{Ti}_5\text{Si}_3 + \text{Ti}_5\text{Si}_4 + \text{TiSi}_2/\text{TiSi}_2 + \text{Cu}_3\text{Ti}_2$ (Si)/Cu 的梯度层结合界面。

2.2 保温时间对界面反应层的影响

连接温度为 1273 K 时, 保温时间对界面反应层厚度的影响如图 3 所示。由于界面反应层的生长受界面元素的扩散控制, 则反应层厚度 (Z) 与连接时间 (t) 的关系符合抛物线规律, 即

$$Z = k(Dt)^{1/2} \quad (3)$$

式中 k 为材料常数, D 为活性元素在反应层中的扩散系数, t 为连接时间。在一定连接温度下, D 为常数, 则式 (3) 可简化为:

$$Z = k_p t^{1/2} \quad (4)$$

式中 k_p 为反应层的生长因子。对试验结果进行线性回归, 得到 $k_p = 3.512 \times 10^{-7} \text{ ms}^{-1/2}$, 相关系数 $R = 0.99$ 。许多研究都表明, 活性钎焊中界面反应层的生长受界面活性元素扩散控制, 反应层厚度可表达为: $Z = k_p t^n$, n 为时间指数 (通常为 0.5)。Nakao 等^[7]用 Cu-5Ti 活性钎料钎焊 Si_3N_4 时, 发现反应层厚度与时间的关系偏离抛物线规律, 时间指数 n 小于 0.5; 而 Nakao 等^[7]用 Cu-50Ti 钎料连接氮化硅时, 界面反应层厚度与时间的关系符合抛物线规律, 时间指数 $n = 0.5$ 。这表明: 界面反应层生长的动力学与钎料中 Ti 的浓度有关。用低浓度 Ti 钎料钎焊陶瓷时, Ti 与陶瓷的反应引起的活性元素

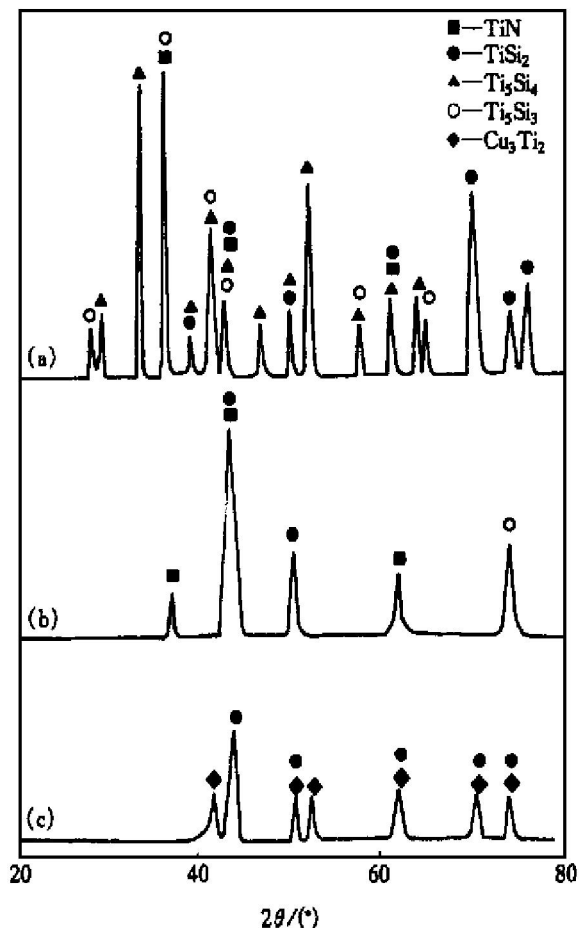


图 2 断口金属侧表面的剥层 XRD 分析

Fig. 2 XRD patterns of fracture surface at 1 273 K for 25 min

(a) —Fracture surface; (b) —After 10 μm polishing;
(c) —After 20 μm polishing

的消耗效应, 使反应层厚度与时间的关系偏离抛物线规律^[7]; 而用高浓度 Ti 钎料钎焊陶瓷时^[8], 活性元素的消耗效应不明显, 则界面反应层厚度与时间的关系符合抛物线规律。在本次试验中, 由于 Si₃N₄ 与 Ti 在 1 273 K 以下反应速率很低^[9], 此时界面发生 Cu/Ti 的扩散反应, 在界面上先形成 Cu-Ti 相, 而不是 Cu₃Ti^[10]。因此, Cu/Ti 之间形成液相的温度应该是 1 255 K, 而不是由 Cu-Ti 二元相图得到的共晶点温度。当温度达到 1 273 K 后, Ti 将与 Si₃N₄ 反应, 同时 Cu/Ti 间的液相区向两侧推移。由于活性元素 Ti 的厚度远小于 Cu 片的厚度和 Ti 的扩散溶解速率高于 Cu, 液相区向 Ti 侧的推移最终使 Ti 全部熔化, 这样在 Si₃N₄/Cu 之间形成钛浓度为 0.56 的 Cu-Ti 二元液相^[11], 活性元素的消耗效应不明显, 因此界面反应层厚度与时间的关系符合抛物线规律, 时间指数 $n = 0.5$ 。

2.3 Si₃N₄/Ti/Cu 界面反应机理

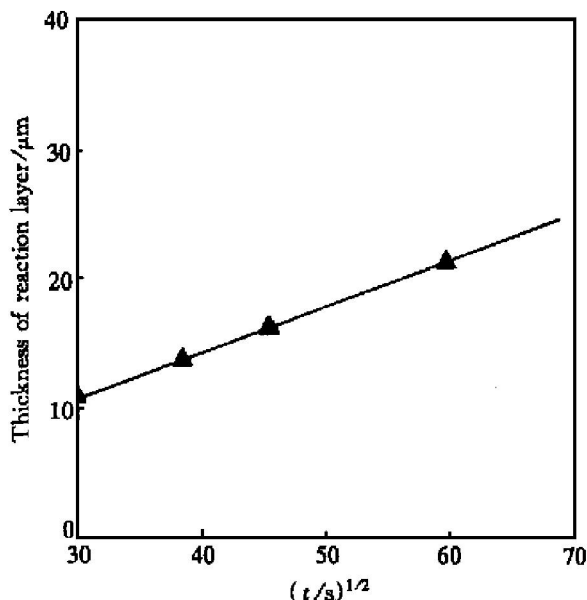


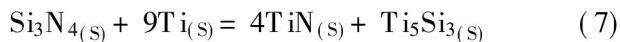
图 3 反应层厚度与连接时间的关系

Fig. 3 Thickness of reaction layer as a function of bonding time at 1 273 K

根据 Ti-Si-N 三元相图可知: 在 1 273 K 时, 当 Ti 的活度在 $6 \times 10^{-4} \sim 2 \times 10^{-2}$ 之间, Si 的活度在 $3 \times 10^{-3} \sim 10^{-5}$ 之间时, Ti₅Si₃(N) 与 TiN 处于平衡状态。Paulasto 等^[12]通过热力学计算得到: 随着 Cu 的熔入, Ti 和 Si 的平衡活度降低, 此时与 TiN 平衡的不是 Ti₅Si₃ 相, 而是 Ti-Si-Cu-N 相^[13]。在本次试验中, 未发现 Ti-Si-Cu-N 相的生成。当温度达到 1 273 K 后, Ti 将与 Si₃N₄ 反应, 即



$$\Delta G_T^\ominus / (\text{kJ} \cdot \text{mol}^{-1}) = -1\,041.6 + 0.024\,7T \quad (6)$$



$$\Delta G_T^\ominus / (\text{kJ} \cdot \text{mol}^{-1}) = -2\,344.4 + 0.098\,1T \quad (8)$$

随着保温时间的增加, Cu/Ti 间的液相区向 Cu, Ti 两侧推移。由于 Ti 的溶解速率高于 Cu 的, 液相区向 Ti 侧的推移最终使活性元素 Ti 全部熔化, 在 Si₃N₄/Cu 之间形成钛浓度为 0.56 的 Cu-Ti 二元液相^[11]。此时界面反应为^[14]:



$$\Delta G_T^\ominus / (\text{kJ} \cdot \text{mol}^{-1}) = -1\,207.12 + 0.109\,46T - 4\Delta G_1 \quad (10)$$



$$\Delta G_T^\ominus / (\text{kJ} \cdot \text{mol}^{-1}) = -2\,716.82 + 0.289\,T - 9\Delta G_1 \quad (12)$$

$$\Delta G_1 = \Delta H^{\text{EX}} + RT(x_{\text{Ti}} \ln x_{\text{Ti}} + x_{\text{Cu}} \ln x_{\text{Cu}})$$

$$\Delta H^{\text{EX}} = x_{\text{Ti}} x_{\text{Cu}} (-16.739 x_{\text{Ti}} - 73.485 x_{\text{Cu}} + 49.668 x_{\text{Ti}}^2)$$

由于铜的扩散溶解速率较慢以及 Ti 与 Si_3N_4 的界面反应抑制了界面液相区的形成^[5], 使 Ti 在 Cu-Ti 液相中保持较高的浓度, 并与 Si_3N_4 反应, 形成 TiN, Ti_5Si_3 , 而不是 Ti-Sr-Cu-N 相。这与 Nakao 等^[7]用 Cu-50Ti 钎料在 1 273 K 和 1.8 ks 的条件下连接 Si_3N_4 的结果相一致。所以, 在氮化硅/钛/铜部分瞬间液相连接过程中, 主要以方程 (9), (11) 的形式进行反应。这样在 Si_3N_4 陶瓷/Cu 之间形成 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{TiN}/\text{Ti}_5\text{Si}_3 + \text{Ti}_5\text{Si}_4 + \text{TiSi}_2/\text{TiSi}_2 + \text{Cu}_3\text{Ti}_2$ (Si)/Cu 的梯度层结合界面。

2.4 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Ti}/\text{Cu}$ 界面反应的扩散路径

在温度低于 1 273 K 时, $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Ti}$ 之间的反应速率很慢^[8], 此时主要发生 Ti 与 Cu 的扩散反应。参照 Cu-Ti 二元合金相图及文献[10, 11]可知: 在 Ti/Cu 的界面上, 首先生成 CuTi 相, 而不是 Cu_3Ti 。这样 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Ti}/\text{Cu}$ 将转变为 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{CuTi}/\text{Cu}$ 。此时的界面扩散路径为图 4(a) 所示。

当温度达到 1 273 K 后, Ti 将与 Si_3N_4 反应, 形成 TiN + Ti_5Si_3 + Ti_5Si_4 相。同时 Cu/Ti 间的液相区向 Cu, Ti 两侧推移。由于 Ti 的扩散溶解速率高于 Cu, 这样在 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Cu}$ 之间形成富钛的 Cu-Ti 二元液相^[11]。由于扩散路径要越过 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{CuTi}(\text{L})$ 的连线, 其扩散路径如图 4(b) 所示, 则 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{CuTi}/\text{Cu}$ 的界面将转变为 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{TiN}/\text{Ti}_5\text{Si}_3 + \text{Ti}_5\text{Si}_4/\text{Cu-Ti}(\text{L})/\text{Cu}$ 的固液界面。随着保温时间的延长, 铜进一步溶解到液相中, 使液相体积增大, 达到成分均匀化。由于 Ti 在 Cu 中的熔化焓为 -78 kJ/mol,

因此, Ti 易于在 Si_3N_4 陶瓷表面吸附和富集。随着钛与氮化硅反应的进行, 反应释放的 Si 向液相中扩散, 并与 Ti 反应, 形成 $\text{Ti}_5\text{Si}_3 + \text{Ti}_5\text{Si}_4 + \text{TiSi}_2$ 化合物相。此时钛与氮化硅的反应抑制液相区的扩展, 加速了液相等温凝固的速度, 最终完成界面连接^[6]。由于扩散路径要越过 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Cu}_3\text{Ti}_2(\text{Si})$ 的连线, 其扩散路径如图 4(c) 所示, 则界面结构为 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{TiN}/\text{Ti}_5\text{Si}_3 + \text{Ti}_5\text{Si}_4 + \text{TiSi}_2/\text{TiSi}_2 + \text{Cu}_3\text{Ti}_2(\text{Si})/\text{Cu}$ 。

2.5 保温时间对接头强度的影响

表 1 显示了连接温度为 1 273 K 时, 保温时间对接头连接强度的影响。随着保温时间的增加, 连接强度逐渐增加。超过理想保温时间后, 强度又逐渐下降。由图 3 和表 1 可知: 反应层厚度是影响连接强度的关键因素。一般地说, 室温的连接强度主要与界面结合强度、反应层强度和残余应力有关。界面结合强度主要受化学反应连接强度控制; 反应层强度主要受反应产物的特性控制。在反应初期, 少量的反应产物在界面形核和生长, 但尚未连续, 由分散孤立的反应产物颗粒与 Si_3N_4 形成连接(反应层很薄时), 界面强度低, 故断裂于界面。随着保温时间的延长, 反应层不断形核长大, 使 Si_3N_4 反应层的界面接触面积增大, 形成残余应力的缓冲层, 提高了界面的化学结合力, 使连接强度增加。可以认为, 反应层的适当长大, 有利于界面连接区的致密化和连接强度的提高。

形成致密的 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{TiN}$ 界面后, 反应层的生长将不再提高界面的连接强度, 相反, 由于脆性界面反应层增厚, 增加了连接界面上因物理性能不匹配产生的热应力, 在临近接头的陶瓷中产生微裂纹(见图 5)。有限元分析表明: 界面形成反应层后,

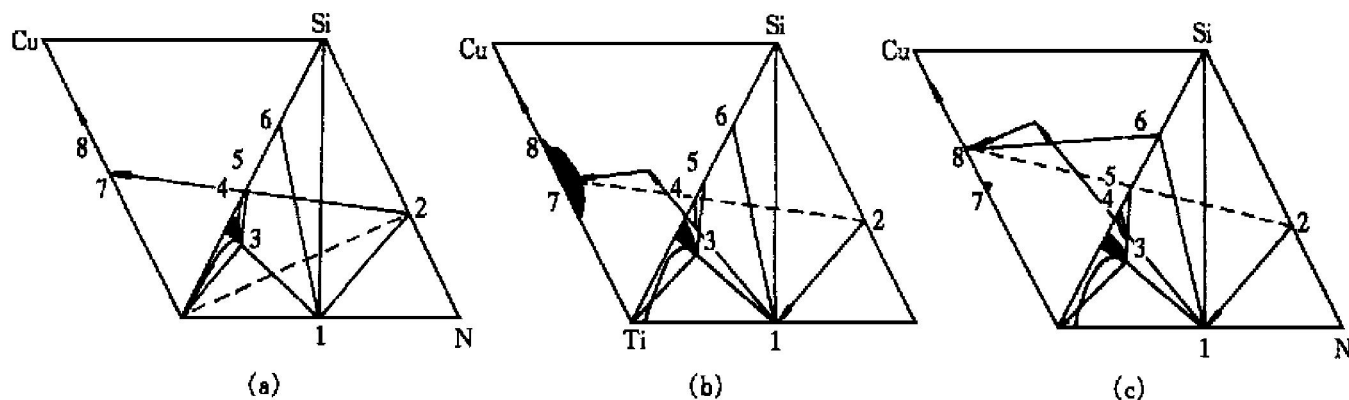


图 4 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Ti}/\text{Cu}$ 界面反应中的扩散路径

Fig. 4 Diffusion path of interface reaction for $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Ti}/\text{Cu}$

(1—TiN; 2— Si_3N_4 ; 3— Ti_5Si_3 ; 4— Ti_5Si_4 ; 5—TiSi; 6—TiSi₂; 7—CuTi; 8— Cu_3Ti_2 ; L—Cu—Ti liquid)

表 1 保温时间对连接强度的影响

Table 1 Effect of holding time at 1 273 K on joining strength

Holding time/ ks	Temperature / K	Bonding strength / MPa	Fracture location
0. 9	298	150	Interface
1. 5	298	250	Interface and ceramic
1. 5	773	150	Interface
1. 5	873	30	Interface
2. 1	298	200	Interface and ceramic
3. 6	298	50	Ceramic

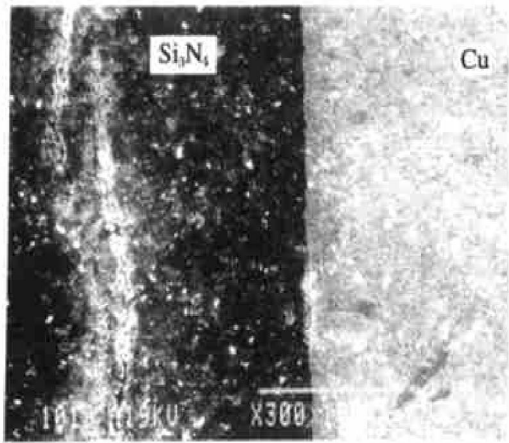


图 5 近接头 Si₃N₄ 中形成的微裂纹(1 273 K, 3. 6 ks)

Fig. 5 Microcrack in ceramic near joint bonded with Ti/ Cu/ Ti interlayer at 1 273 K for 3. 6 ks

改变了残余热应力的分布, 反应层厚度太厚, 有利于产生 I 型裂纹^[15], 从而降低连接强度。因此, 在 1 273 K 下保温 3. 6 ks 的接头几乎都断裂在接头附近的陶瓷中。研究结果表明: 混合断裂时的强度大于界面断裂和近界面陶瓷中断裂时的强度。另外, 由表 1 可知: 与 Ag-Cu-Ti 合金钎焊氮化硅的高温接头强度^[16]相比, Ti/ Cu/ Ti 部分瞬间液相连接氮化硅的高温接头强度得到很大的改善。

3 结论

- 1) 用 Ti/ Cu/ Ti 进行 Si₃N₄ 陶瓷的部分瞬间液相连接, 在 1 273 K 保温 25 min 时的接头强度可达到 250 MPa。Cu/ Ti 扩散后形成的液相与氮化硅反应, 形成 Si₃N₄/ TiN/ Ti₅Si₃+ Ti₅Si₄+ TiSi₂/ TiSi₂+ Cu₃Ti₂/ Cu 的梯度层界面。
- 2) 界面反应层的生长符合抛物线规律, 其生长因子为 $k_p= 3. 512 \times 10^{-7} \text{ ms}^{-1/2}$ 。
- 3) 运用扩散路径理论, 解释了界面反应产物的形成与演变过程, 由于 Ti 在 Cu 中溶解焓较高, 表明 Cu-Ti(l)/ Si₃N₄ 界面的 Ti 的有效活度较高,

易于与氮化硅反应, 抑制了液相区的形成。
4) 保温时间主要通过影响接头反应层厚度和接头残余热应力, 从而影响接头的连接强度。

[REFERENCES]

[1] Lino Y. Partial transient liquid phase bonding of ceramics with Ti/ Ni/ Ti multi-interlayers [J]. J Mater Sci Lett, 1988, 7: 981– 983.

[2] CHEN Zheng (陈 铮), ZHAO Qí-zhang (赵其章), LUO Hong-qing (楼洪清), et al. 用 Ti/ Ni/ Ti 多层中间层进行氮化硅的部分瞬间液相连接 [J]. J Chin Ceram Soc (硅酸盐学报), 1998, 26 (1): 39– 47.

[3] Ceccone G, Nicholas M G, Peteves S D, et al. Partial transient liquid phase bonding method for joining silicon nitride ceramic [J]. Acta Mater, 1996, 44 (2): 657– 665.

[4] CHEN Zheng, ZHAO Qí-zhang, FANG Fang, et al. Interfacial reaction and diffusion path in partial transient liquid phase bonding of Si₃N₄/ Ti/ Ni/ Ti/ Si₃N₄ [J]. Trans Nonferrous Met Soc China, 1999, 9 (4): 831– 837.

[5] BAO Fang-han (包方涵), REN Jia-lie (任家烈), ZHOU Yun-hong (周运鸿). 活性钎料真空钎焊 Si₃N₄/ 钢接头性能的研究 [J]. J of Chin Welding (焊接学报), 1990, 11 (4): 200– 205.

[6] ZHOU Fei (周 飞) and LI Zhí-zhang (李志章). 活性金属部分瞬间液相连接氮化硅的研究 [J]. Acta Metal Sinica (金属学报), 2000, 36 (2): 117– 122.

[7] Nakao Y, Nishimoto K and Saida K. Reaction layer formation in nitride ceramics (Si₃N₄ and AlN) to metal joints bonded with active filler metals [J]. ISIJ Int, 1991, 30 (12): 1142, 1150– 1160.

[8] Naka M, Tanaka T and Okamoto I. Application of amorphous Cu-Ti filler metal to joining of silicon nitride [J]. Trans Japan Weld Soc, 1990, 21 (1): 66– 73.

[9] XIAN Ai-ping (洗爱平). 金属/ 陶瓷界面的润湿和结合机制 [D]. Shenyang: Institute of Metals Research, The Chinese Academy of Science, 1991. 253– 258.

[10] XU Le-ying (徐乐英), WANG Wen-bin (王文斌) and ZHUANG Yu-zhi (庄育智). Cu 与 NbTi 之间扩散反应的研究 [J]. Acta Metall Sinica (金属学报), 1988, 24 (4): B269– 273.

[11] Meier A, Chidambaram P and Edwards G R. Generation of isothermal spreading data and interfacial energy data for liquid reactive metals on ceramic substrates: the copper/titanium/ alumina system [J]. J Mater Sci, 1995, 30: 3791– 3798.

[12] Paulasto M and Kivilahti J K. Formation of interfacial microstructure in brazing of Si₃N₄ with Ti activated Ag-

- Cu filler alloys [J]. Script Metall Mater, 1995, 43(8): 1209–1213.
- [13] Carim A H. Transitional phases at ceramic-metal interface: orthorhombic, cubic and hexagonal Ti-Si-Cu-N compounds [J]. J Am Ceram Soc, 1990, 73(9): 2764–2768.
- [14] Tamai F and Naka M. Microstructure and strength of Si₃N₄/Si₃N₄ joints brazed with Cu-Ti alloys [J]. J of Japan Welding, 1996(2): 327–332.
- [15] ZHOU Fei(周 飞). 氮化硅陶瓷及其复相陶瓷液相连接的界面反应和连接强度的研究 [D]. Hangzhou: Zhejiang University, 1998. 114–124.
- [16] CHEN Zheng(陈 铮). 陶瓷/陶瓷和陶瓷/金属部分瞬间液相连接的界面反应模型和接头强度研究 [D]. Hangzhou: Zhejiang University, 1997. 36–56.

Interfacial reaction and joint strength of Si₃N₄ partial transient liquid-phase bonded with Ti/ Cu/ Ti multi-interlayer

ZHOU Fei¹, LI Zhizhang²

(1. Department of Materials Science, Jiangsu University of Science and Technology,
Zhenjiang 212013, P. R. China;

2. Department of Materials Science, Zhejiang University, Hangzhou 310027, P. R. China)

[Abstract] The partial transient liquid phase(PTLP) bonding of silicon nitride was carried out at 1 273 K with Ti/ Cu/ Ti multi-interlayer. The effect of bonding time and interfacial reaction on the joint strength were investigated and the interfacial microstructures were observed and analyzed using SEM, EPMA and XRD respectively. The formation and transition processes of interface layer sequence at the interface were discussed by diffusion path. It is shown that Cu-Ti transient liquid alloy forms on the surface of silicon nitride and reacts with silicon nitride on the interface at 1 273 K, forming the Si₃N₄/TiN/ Ti₅Si₃+ Ti₅Si₄+ TiSi₂/ TiSi₂+ Cu₃Ti₂(Si)/ Cu gradient interface. Owing to the variation of concentration in transient liquid, the diffusion path in the subsequent reaction changes. According to the microstructural analyses, the joint strength is affected by the thickness of reaction layer and the amount of residual thermal stresses which are affected by the bonding time.

[Key words] partial transient liquid phase bonding; silicon nitride; interface reaction; diffusion path; bonding strength

(编辑 龙怀中)