

[文章编号] 1004- 0609(2002)02- 0241- 04

接触反应钎焊中间层材料的选择原则

——接触反应共晶液相产生的方向性^①

董占贵¹, 钱乙余¹, 马 鑫^{1, 2}, 石素琴¹

(1. 哈尔滨工业大学 现代焊接生产技术国家重点实验室, 哈尔滨 150001;

2. 电子元器件可靠性物理国防科技重点实验室, 广州 510610)

[摘 要] 以 Al/Cu, Al/Si 接触反应偶为例, 研究了不同基体与反应材料组合下, 共晶液相的产生及其铺展行为。结果表明: Al/Cu, Al/Si 接触反应偶中共晶液相的产生具有明显的方向性—优先在 Al 侧产生, 这是扩散偶之间的互扩散系数不等所造成的必然结果。而在接触反应钎焊的中间层材料选择过程中, 考虑接触反应液相产生的方向性是发挥接触反应钎焊优越性的保障。

[关键词] Al/Cu; 接触反应偶; 共晶反应; 中间层选择

[中图分类号] TG 457. 14

[文献标识码] A

接触反应钎焊(Contact reactive brazing, CRB)是一种依靠连接材料之间或连接材料与中间层材料之间的冶金反应(如共晶反应)产生液相合金来实现连接的工艺方法^[1, 2], 它避免了常规钎焊工艺中液态钎料宏观填缝过程所引起的“大、小包围”现象^[3], 因此钎缝致密性很高, 适合于大面积、高致密性连接场合^[4]。同时, CRB 法的钎焊温度较低, 并已经在各种金属^[5, 6]、陶瓷^[7, 8]、金属间化合物^[9]、复合材料^[10, 11]等材料连接中得到应用。

但目前对 CRB 法的微观机理方面研究却进展缓慢。陈定华^[12]和钱乙余^[13]分别从共晶液相沿基体表面方向的反应铺展和沿深度方向的晶界渗透的角度分析了 CRB 之所以形成牢固冶金接合的原因。但是, 从根本讲, CRB 工艺成功与否的关键在于中间层材料的选择是否得当。只有选择合适的中间层, 保证它与基体之间能发生理想的冶金反应, 才能保证形成良好的钎焊接头。从目前掌握的资料看, 除了基于简单的相图分析等经验推断方法以外, 还没有人对 CRB 工艺中间层材料选择的原则进行过讨论。为此本文作者从 Al/Si, Al/Cu 接触反应偶入手, 研究不同基体与反应材料组合情况下共晶液相的产生及其铺展行为特性, 从而为 CRB 中间层材料的选择提供必要的理论依据。

1 实验

所谓接触反应偶实验, 就是将两种材料相互作为基体和相应的反应材料进行接触反应实验。作者选择 Al/Si, Al/Cu 两对接触反应偶, 其中 Al 为 L2 纯铝, Si 为单晶硅片, Cu 为 99.9% 的工业纯铜。Al, Cu, Si 作为反应材料时, 其几何尺寸统一为 2 mm × 2 mm × 0.2 mm。试件加工清洗完毕后, 按图 1 所示的装夹方式组装实验。不锈钢夹具和高温合金弹簧组成的弹性夹具通过氧化铝陶瓷片对试件施加柔性压力, 从而使反应材料与基体间的界面在实验过程中始终保持紧密接触。实验在真空环境下完成, 真空度冷态时为 3.0×10^{-3} Pa, 热态时不低于 8×10^{-3} Pa。同时在试件周围放置 Mg 块以进一步降低气氛中氧的分压。Al/Si 反应偶的实验温度为 600 °C, Al/Cu 的为 570 °C, 保温时间统一为 10 min。

2 接触反应中共晶液相产生的方向性

图 2 和图 3 所示分别为 Al/Cu 和 Al/Si 接触反应偶接触反应的典型表面形貌。由于单晶 Si 片较脆, Si 基体在实验中发生破裂。可见, 同样是 Al/Cu, Al/Si 之间的接触反应, 但随着基体与反应

① [基金项目] 国防预研基金资助项目(18.10.1.18)

[收稿日期] 2001- 04- 02; [修订日期] 2001- 06- 04

[作者简介] 董占贵(1972-), 男, 博士研究生。

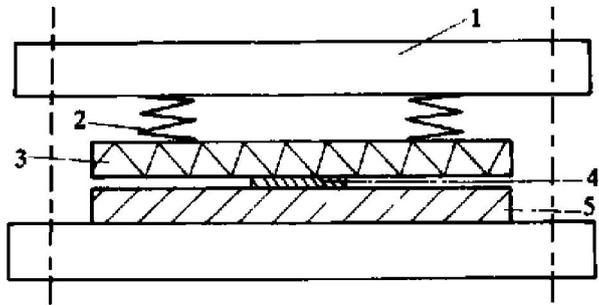
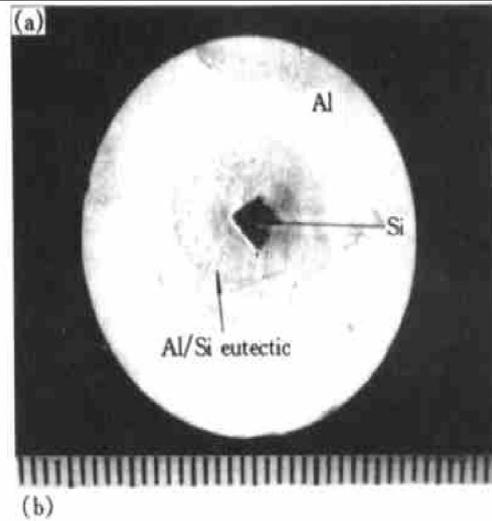


图 1 接触反应偶反应实验件及装夹结构示意图

Fig. 1 Schematic of sample and jig for contact reaction couples

1—Stainless steel jig; 2—Refractory spring;
3—Alumina; 4—Reactant material; 5—Substrate



(b)

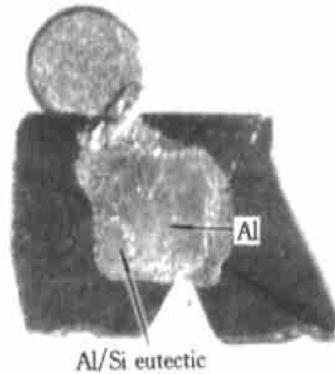
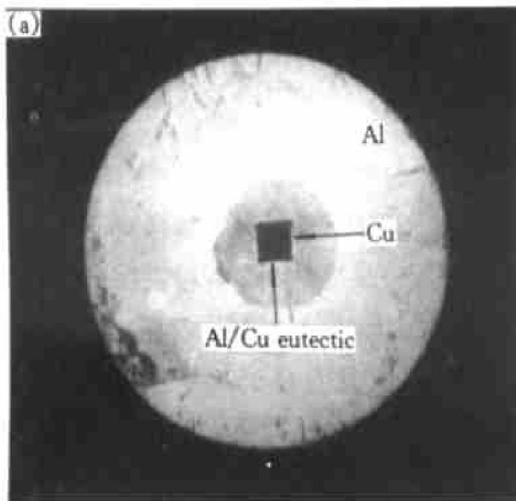


图 3 Al/Si 接触反应偶接触反应表面形貌

Fig. 3 Surface appearances of contact reaction in Al/Si contact reactive couple

(a)—Si as reactant; (b)—Si as substrate



(b)

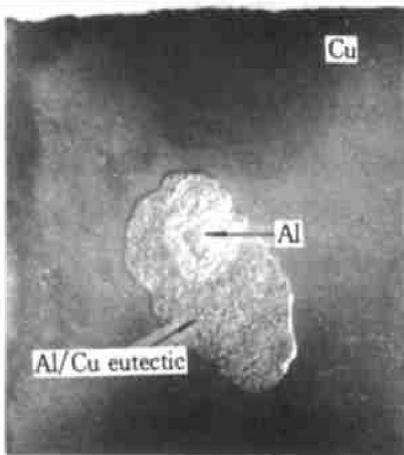


图 2 Al/Cu 接触反应偶接触反应表面形貌

Fig. 2 Surface appearances of contact reaction in Al/Cu contact reactive couple

(a)—Cu as reactant; (b)—Cu as substrate

材料组合的不同, 共晶液相的表面铺展行为截然不同。Al 为基体时, Al/Cu, Al/Si 共晶液相表面铺展的最突出的特点是: 液相的铺展区域较为规则, 而铺展过程几乎不引起基体厚度方向上的尺寸变化

(如图 2(a) 和图 3(a) 所示)。而 Al 块在 Cu 或 Si 基体上进行接触反应实验时, 共晶液相虽然有铺展现象, 但铺展区域不规则, 且铺展区域与液相未达到区域相比, 在高度上有明显的不同(如图 2(b) 和图 3(b) 所示); 另外液相与基体的接触角较大, 说明液相对基体的润湿性不好。因此, 这种情况下液相之所以能铺展开, 实际上是液相产生以后在夹具挤压力的作用下被迫流淌的结果。

观察 Al/Cu 接触反应试件的截面(如图 4 所示)发现, 随着基体的不同, 表面液相与基体间的界面处呈现出不同的组织特征。Al 为基体时, 界面组织是 α 固溶体+ Al-Cu 共晶体, 且共晶液相有明显的晶间渗透现象^[13](如图 4(a) 所示), 对共晶区区域成分能谱分析结果表明 Cu 含量为 35.94%(质量分数); 而 Cu 为基体时, 界面却出现了两层明显的金属间化合物层(如图 4(b) 所示), 对表层液相区进行能谱分析, 结果显示该区域含 Cu 量为 49.92%(质量分数), 可见液相中溶解了大量的 Cu。这是因为 Al/Cu 共晶液相在 Cu 基体上的铺展是润湿铺展,

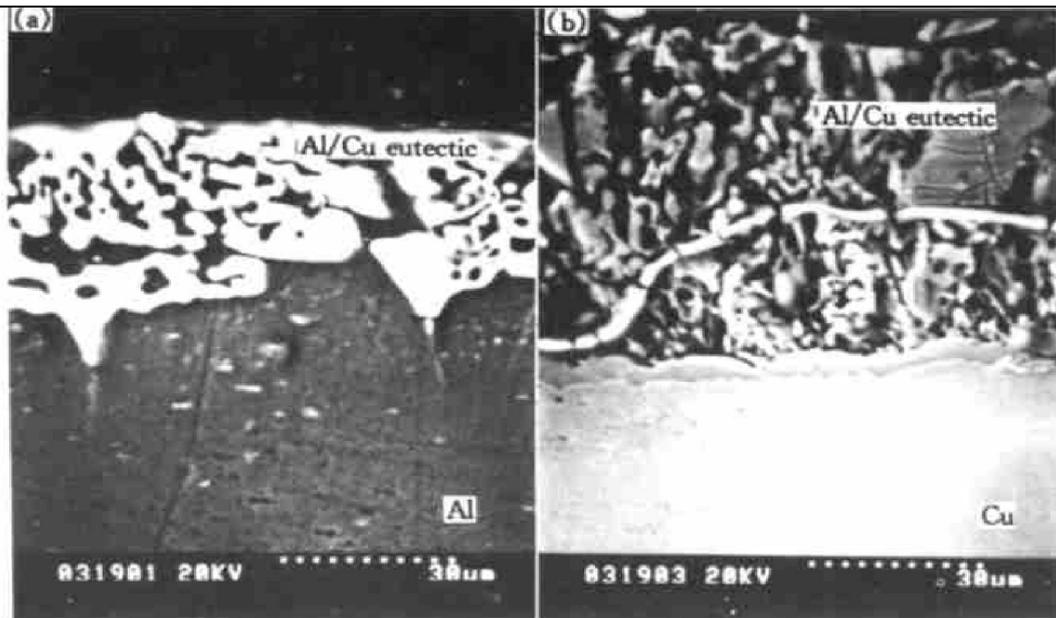


图 4 Al/Cu 接触反应偶接触反应界面组织形貌

Fig. 4 Interface microstructures of contact reaction in Al/Cu contact reactive couple

(a) —Cu as reactant; (b) —Cu as substrate

液相在铺展的同时与基体发生溶解、扩散等冶金作用, 因此对于存在多种金属间化合物的 Al-Cu 二元体系而言, 在液相中已经溶解大量 Cu 的情况下, Al-Cu/Cu 两相界面间自然会出现金属间化合物。

以上实验事实表明, 对于 Al/Cu, Al/Si 接触反应偶来说, 共晶液相都是优先在 Al 侧产生。当 Al 为基体时, 由于反应铺展^[12]的存在, 液相在产生的同时就发生铺展, 同时在基体深度方向上发生晶间渗透^[13]; 当 Al 为反应材料时, 接触反应的结果首先是 Al 的液化, 然后才是液相的铺展, 类似于熔融钎料的润湿铺展, 若液相对基体的润湿性较差时, 就很难形成铺展。可见, 在不同材料组成的接触反应偶中共晶液相的产生有鲜明的方向性。

3 接触反应中液相产生方向性的金属学解释

众所周知, 在两种材料组成的扩散偶中, 彼此间相互向对方扩散的扩散系数—互扩散系数一般是不相等的, 有时甚至相去甚远。例如 Al/Cu 扩散偶中 Cu 向 Al 中的扩散系数是 Al 向 Cu 中的 2000 倍^[12]; 由于 Al 在 Si 中的溶解度几乎为零, 而只有基体内能够溶解的元素才能在该基体内扩散^[14], 因此 Al/Si 扩散偶中只有 Si 向 Al 中的单向扩散。这种情况下, 接触反应偶中必然会出现一种材料向另一种材料中优先扩散, 并迅速达到实验温度下的极限溶解度, 从而促使液相产生, 因此接触反应偶中共晶液相的产生具有方向性是一种必然趋势。这

种方向性, 对 CRB 中选择合适的中间层材料, 得到高致密的钎焊接头, 恰恰是非常必要的。如果在所选中间层与被连接基体之间构成的反应偶中, 共晶液相倾向于在基体一侧产生, 那么在接触反应发生的同时, 共晶液相与基体之间就能发生表面反应铺展和深度方向上的渗透等冶金作用, 最终形成致密的接头。否则, 如果液相倾向于在中间层材料一侧产生, 则液相只能依靠毛细作用来完成填充过程, 这样就难以发挥 CRB 工艺的优越性, 从而难以保证钎缝的致密性。

4 结论

Al/Cu, Al/Si 等接触反应偶中共晶液相的产生有明显的方向性。选择 CRB 中间层材料需满足的条件是: 在与基体构成的反应偶中, 保证共晶液相倾向于在基体一侧产生。这样才能发挥 CRB 工艺的优越性, 得到具有高致密性的接头。

[REFERENCES]

- [1] Frolov I A. Contact reactive brazing of copper to steel via a manganese interlayer [J]. Welding Production, 1972, 19(10): 28- 31.
- [2] Kruchinin V P, Metelkin I I. Contact reactive brazing of ceramics to metal [J]. Welding Production, 1972, 19(12): 68- 73.
- [3] 陈定华, 钱乙余, 李 严. 钎焊填缝机理的研究——不等间隙钎焊时钎料填缝过程研究 [J]. 焊接学报,

- 1981, 2(1): 1– 8.
- CHEN Ding-hua, QIAN Yǔyu, LI Yan. The mechanism of flow of filler metal into brazing space —investigating the flow characteristics of liquid filler metal in an unparallelled clearance [J]. Transaction of the China Welding Institution, 1981, 2(1): 1– 8.
- [4] Jacobson D M, Umpston G H. Diffusion solder [J]. Solder & Surface Mount Technology, 1992(10): 27– 32.
- [5] Takehiko W, Hiyasa S. Eutectic bonding of Al pipe to Cu pipe [J]. Journal of the Japan Welding Society, 1998, 16(1): 35– 44.
- [6] Jankowski A F, Hayes J P. Eutectic bonding of a Ti sputter coated carbon aerogel wafer to an Ni foil [J]. Surface & Coating Technology, 1994, 12: 68– 69.
- [7] Wu Y C. Eutectic bonding of nickel to yttria-stabilized zirconia [J]. Journal of Materials Science Letters, 1990, 9(5): 583– 586.
- [8] Ferro C, Derby B. Liquid phase bonding of siliconized silicon carbide [J]. Journal of Materials Science, 1995, 30(12): 6119– 6135.
- [9] Gale W F, Wen X, Shen Y, et al. Diffusion brazing of Titanium Aluminide wettability, microstructural development, and mechanical properties [A]. Paul T. Vianco, Mritujay Sinha ed. International brazing and Soldering conference Proceeding [C]. Albuquerque, New Mexico, 2000. 42– 49.
- [10] Niemann J T, Garrett R A. Eutectic bonding of Boron-Aluminum structural components: part 1 — evaluation of critical processing parameters [J]. Welding Journal, 1974, 53(4): 175s– 184s.
- [11] Niemann J T, Garrett R A. Eutectic bonding of Boron-Aluminum structural components: part 2 — development and application of the process [J]. Welding Journal, 1974, 53(8): 351s– 360s.
- [12] 陈定华, 钱乙余, 黄继华. Al/Cu 接触反应钎焊中反应铺展现象和氧化膜行为 [J]. 金属学报, 1989, 25(1): B42– B47.
- CHEN Ding-hua, QIAN Yǔyu, HUANG Jǐ-hua. Spreading phenomenon of Al/Cu contacting reaction brazing [J]. Acta Metall Sinica, 1989, 25(1): B42– B47.
- [13] QIAN Yǔyu, DONG Zhan-gui, MA Xin. Penetrating behavior of eutectic liquid during Al/Cu contact reactive brazing [J]. Trans Nonferrous Met Soc China, 2001, 11(5): 664– 666.
- [14] 卡扎柯夫 H Ф. 何康生译. 真空扩散焊接 [M]. 北京: 国防工业出版社, 1976. 9– 12.
- Kazakev H Ф. HE Kang-sheng transl. Vacuum Diffusion Welding [M]. Beijing: Defense Industry Press, 1976. 9– 12.

Law for selecting interlayer in contact reactive brazing

——Orientation of production of eutectic liquid in contact reaction

DONG Zhan-gui¹, QIAN Yǔyu¹, MA Xin^{1, 2}, SHI Su-qin¹

(1. National Key Laboratory of Welding, Harbin Institute of Technology, Harbin 150001, P. R. China;

2. National Key Laboratory of Reliability Physics of Electronic Product, Guangzhou 510610, P. R. China)

[Abstract] The production and spread behavior of the eutectic liquid in the contact reaction composing of different substrate and reactant was investigated by taking the example of Al/Cu and Al/Si contact reactive couple. Analysis results show that the production of the eutectic liquid has the orientation, and it prior to appear on the side of aluminum, which is caused by the difference between the diffusion coefficients of the diffusion couple. So, in order to gain good brazed joint in contact reactive brazing, the orientation of the eutectic liquid must be taken into account during selecting an interlayer.

[Key words] Al/Cu; contact reactive couple; eutectic reaction; interlayer selecting

(编辑 杨兵)