

文章编号: 1004 - 0609(2003) 02 - 0300 - 05

异种材料 TLP 扩散连接过程的非对称性^①

曲文卿, 庄鸿寿, 张彦华
(北京航空航天大学 机械工程学院, 北京 100083)

摘 要: 通过对 SiC 颗粒增强 Al 基复合材料与 Al 合金的 TLP 扩散连接试验, 对异种材料 TLP 扩散连接过程存在的非对称性进行了深入的研究, 并对异种材料 TLP 扩散连接过程的等温凝固动力学进行了数学建模, 且结合接头区域的成分分布进行了验证。研究表明: SiC 颗粒增强铝基复合材料与铝合金连接接头区域连接界面向铝合金一侧偏移, 接头区域溶质原子成分分布非常不均匀; 由于溶质原子扩散速度以及中间层和母材冶金反应的不同, 导致异种材料 TLP 扩散连接过程存在明显的非对称性。所建的等温凝固动力学模型能够用来解释异种材料 TLP 扩散连接过程, 对于异种材料连接具有重要的理论意义。

关键词: 异种材料; TLP 扩散连接; 非对称性

中图分类号: TG 456.9 **文献标识码:** A

近年来, 异种材料复合结构由于具有良好的综合性能, 在航空航天、空间技术以及微电子等工程领域得到了日益广泛的应用。但是由于异种材料性能差异较大, 采用常规焊接方法连接异种材料存在着严重的冶金不相容性^[1]。TLP (transient liquid phase) 扩散连接方法能够在低于母材熔点的温度下, 通过母材与中间层的冶金反应产生液相, 等温凝固后形成接头, 具有温度低、压力小以及不需要严格的表面加工等特点, 因而在耐热合金、异种材料和复合材料的连接中得到了广泛的应用^[2-11]。

作者通过 SiC 颗粒增强铝基复合材料与铝合金的 TLP 扩散连接试验, 分析了接头的微观组织和溶质原子浓度分布情况, 重点研究了异种材料 TLP 扩散连接过程的不对称性和等温凝固动力学机理, 对于异种材料的 TLP 扩散连接具有重要的实际工程意义。

1 实验

实验材料组合分别为 SiC 颗粒增强 Al 基复合材料 (SiC_p/Al) 与 5056 铝合金, 表 1 给出了复合材料的室温性能。

中间层为铜箔, 厚度为 30 μm; 试件尺寸为 22 mm × 90 mm × 1 mm。试件连接采用搭接方式。

连接之前, 首先用钢丝刷打磨掉氧化层, 然后

表 1 SiC 颗粒增强铝基复合材料的室温拉伸性能

Table 1 Room-temperature mechanical properties of SiC particle reinforced Al-base composite

Volume fraction of SiC particle/ %	Size of SiC particle/ μm	σ _b / MPa	σ _{0.2} / MPa	δ/ %
15	20	490.71	364.54	9.20

用酒精擦洗, 清除掉表面油污、残屑等杂质。TLP 扩散连接实验结束后, 对接头进行力学性能测试及微观组织观察。

2 分析与讨论

2.1 接头微观组织分析

图 1 给出了 5056 铝合金与 SiC 颗粒增强 Al 基复合材料的 TLP 扩散连接接头的微观组织(工艺参数: 连接温度 565 ℃, 时间 3 h)。从图中可以看出, 复合材料和 Al 合金已经完美地结合到一起, 看不到中间层 Cu 的存在, 这说明中间层已经完全扩散到连接界面两侧母材中, 从而形成了效果良好的连接。力学性能测试结果表明, SiC 颗粒增强 Al 基复合材料与 5056 铝合金的 TLP 扩散连接接头的平均剪切强度达到了 63 MPa。

其次, 应用扫描电镜观察接头微观组织, 发现接头区域的连接界面明显向 5056 铝合金一侧偏移,

① 基金项目: 国家自然科学基金资助项目(59971007)
收稿日期: 2002 - 05 - 17 修订日期: 2002 - 07 - 02 作者简介: 曲文卿(1972 -), 男, 博士研究生。
通讯联系人: 曲文卿, + 86 - 10 - 82317753, quwenqing@163.com

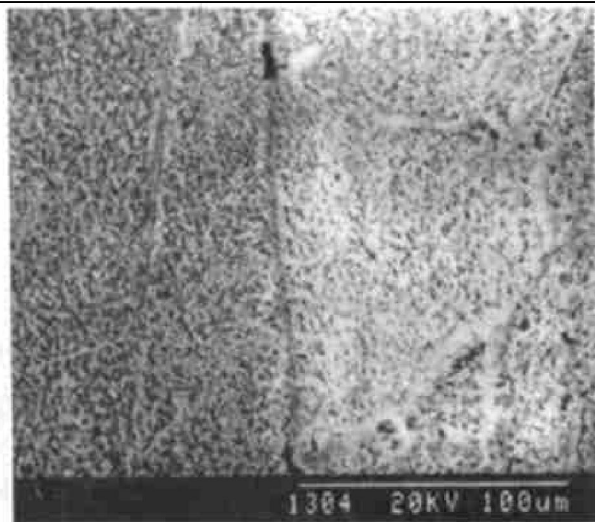


图 1 Al 合金与 SiC_p/Al 接头的微观组织

Fig. 1 Microstructure of aluminium alloy bonded to SiC particle reinforced Al-based composite (Bonding temperature 565 °C; copper foil interlayer; bonding time 3 h)

偏移量大约为 50 μm。异种材料 TLP 扩散连接界面向某一侧母材发生偏移可能是异种材料连接的固有现象, 因为溶质原子在界面两侧母材中的扩散能力不同, 使得液/固界面迁移速度也不同, 从而导致液相凝固速度不同, 最后发生界面向溶质原子扩散速度较低的母材一侧偏移。溶质原子 Cu 在铝合金与复合材料中的扩散速度显然不同, 从而导致界面向铝合金一侧偏移, 说明溶质原子在复合材料中的扩散速度要大于在铝合金中的扩散速度。

2.2 接头区域溶质原子的浓度分布

应用 S530 型扫描电镜对 SiC 颗粒增强 Al 基复合材料与 Al 合金的 TLP 扩散连接接头进行了成分分析。图 2 给出了在不同连接时间下(连接温度 565 °C)接头区域 Cu 元素的成分分布曲线。

由图 2 可以看出, 随着连接时间的增长, 界面上 Cu 元素的含量逐渐降低, 从连接 3 h 的 12.63% 降低到连接 9 h 的 7.1%。

图 2 中存在一个和同种材料 TLP 扩散连接明显不同的特点, 即 Cu 元素在界面两侧材料中的分布明显不均匀, 接头区域中 Cu 元素的最高含量(即连接界面)实际上位于原来铝合金一侧。在界面左侧(5056 铝合金一侧) Cu 元素含量非常低, 并且在距离界面非常近的位置 Cu 元素的含量就急剧下降到 1% 左右, 而在界面右侧(复合材料一侧) Cu 元素的成分分布相比于铝合金一侧则要高得多, 甚至距离界面 1 mm 以外的位置 Cu 元素的含量还保持在 4%

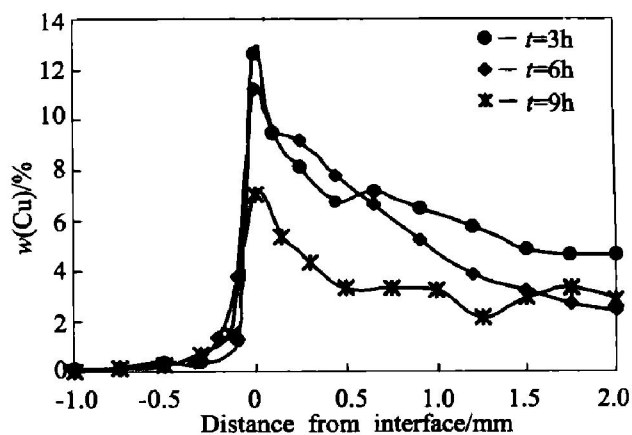


图 2 不同连接时间下接头区域 Cu 元素成分分布

Fig. 2 Content profile of copper element in 5056Al/ Cu/ SiC_p/ Al joint under different bonding times

左右。

上述分析表明, Cu 元素向铝合金的扩散能力远远低于向复合材料的扩散能力, 从而也能够解释连接界面向铝合金一侧偏移的现象。

3 异种材料 TLP 扩散连接机理

3.1 连接过程的非对称性

从 SiC 颗粒增强铝基复合材料与 5056 铝合金的 TLP 扩散连接接头的微观组织和元素成分分布可以看出, 异种材料的 TLP 扩散连接过程存在着明显的不对称现象。

图 3 示出了 SiC 颗粒增强铝基复合材料与 5056 铝合金 TLP 扩散连接过程的非对称性。为了便于理解, 以 Tuahr-Poku 等^[12]提出的 4 阶段方法来分析 TLP 扩散连接过程(4 个阶段都是在等温条件下完成的)。

1) 中间层熔化阶段 TLP 连接开始时, 母材和中间层都呈固态, 如图 3(a) 所示。当温度超过共晶温度, 达到连接温度之后, 接触界面处发生溶解现象, 由于铝合金中 Al 元素含量较复合材料中的含量高, 所以铝合金与中间层 Cu 箔之间产生的液相较多, 即铝合金母材熔化量较大, 如图 3(b) 所示, 当中间层材料完全溶解时(如图 3(c) 所示), 由于铝合金与复合材料的熔化量不同, 导致原始中心线向铝合金一侧偏移。

2) 液相均匀化阶段 由于液相中溶质原子 Cu 的浓度高于母材, 因而促使液相中 Cu 原子向固/液边界扩散, 铝合金材料中 Al 元素继续溶解, 使得

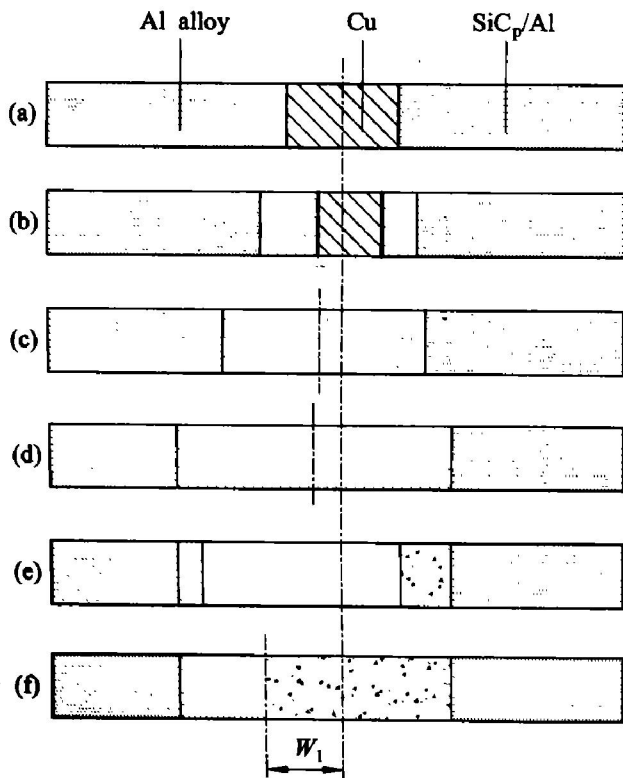


图 3 异种材料 TLP 连接过程的非对称性

Fig. 3 Dissymmetry of dissimilar materials in TLP diffusion bonding process

液相中溶质原子平均浓度不断降低,当液相与熔化边缘的固相成分达到平衡时,液相层达到了最大宽度,如图 3(d)所示。和第一阶段相似的是,铝合金的熔化量要大于复合材料的熔化量,这主要是由于复合材料中 Al 元素含量相对较低,因此形成的液相较少,所以最终导致在该阶段结束时,液相中心线继续向铝合金偏移。

3) 等温凝固阶段 液相和固相中 Cu 元素成分梯度的存在促使 Cu 原子继续向母材扩散,当 Cu 浓度小于固相线浓度时,开始等温凝固,使得液/固界面向液相中推进,如图 3(e)所示,由于 Cu 元素在复合材料中的扩散速度大于在铝合金中的扩散速度,因此导致复合材料一侧的液/固界面迁移速度较大。当液相完全消失时,等温凝固阶段结束,如图 3(f)所示。由于复合材料一侧液相的凝固速度大于铝合金一侧的,因此当该阶段结束时,形成的连接界面向铝合金偏移。

4) 接头均匀化阶段 在本研究中,等温凝固结束后,连接过程已经基本完成,可能还没有发生接头的均匀化。

从上述分析可以看出,连接界面向铝合金一侧的偏移量是由中间层熔化、液相均匀化和等温凝固 3 个阶段共同造成的,其主要原因在于复合材料中

Al 元素含量较少,导致液相产生和扩大阶段液相中心线向铝合金一侧偏移;而 Cu 元素在复合材料中的扩散速度较大,导致液相凝固时形成的连接界面继续向铝合金一侧发生偏移,从而产生了 SiC 颗粒增强铝基复合材料与铝合金 TLP 扩散连接过程的非对称性。

3.2 异种材料 TLP 扩散连接非对称模型

异种材料等温凝固过程中 t 时刻的情况如图 4 所示。在两个液/固界面上建立两个坐标系,坐标系原点分别为界面两侧母材与液相等温凝固开始时的原始界面,坐标系正方向都选择为溶质原子扩散的方向。图中 A 为铝合金, B 为复合材料。

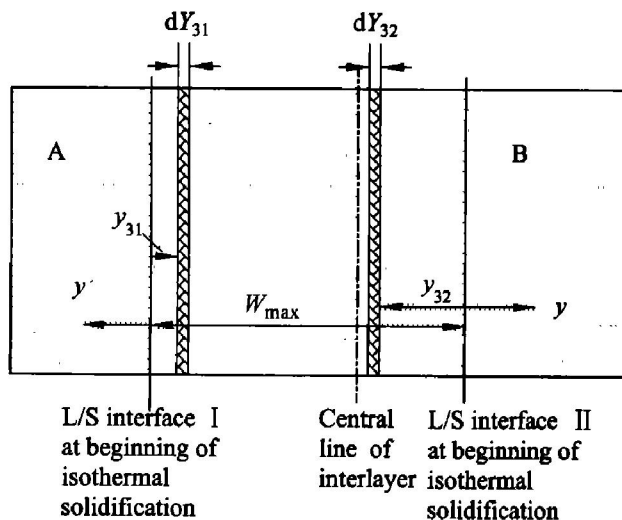


图 4 异材 TLP 连接等温凝固阶段示意图

Fig. 4 Schematic representation of isothermal solidification of TLP diffusion bonding process of dissimilar materials

对于坐标系 1,在 t 时刻液固界面迁移到 $-Y_{31}$ 位置,可以获得铝合金与液相的界面 1 的迁移^[13]为

$$\frac{dY_{31}}{dt} = \frac{-D_{Si}Q_S}{(c_{Al}Q_L - c_{AS}Q_S)} \cdot \frac{\partial c(y, t)}{\partial y} \bigg|_{Y=-Y_{31}} \quad (1)$$

初始条件和边界条件为

$$Y_{31}(t=0) = 0 \quad (2)$$

$$c(y, t=0) = c_0 \quad (3)$$

$$c(y = -Y_{31}, t > 0) = c_{AS} \quad (4)$$

$$c(y \rightarrow \infty, t) = c_0 \quad (5)$$

根据 Fick 扩散定律可知,溶质原子在固相中的浓度分布为

$$c(y, t) = U_1 + U_2 \cdot \operatorname{erf}\left(\frac{y}{\sqrt{4D_{Si}t}}\right) \quad (6)$$

由初始条件和边界条件可得:

$$c_0 = U_1 + U_2 \quad (7)$$

$$c_{aS} = U_1 + U_2 \cdot \operatorname{erf}\left(\frac{-Y_{31}}{\sqrt{4D_{S1}t}}\right) \quad (8)$$

由于 U_1 和 U_2 , c_0 和 c_{aS} 均为常数, 因此误差函数的解肯定也是常数。由此可以得到

$$Y_{31} = 2G_{31}\sqrt{D_{S1}t} \quad (9)$$

式中 G_{31} 为无量纲的扩展常数, 并且由于 $\operatorname{erf}(-x) = -\operatorname{erf}(x)$, 因此式 (8) 可以写为

$$c_{aS} = U_1 - U_2 \cdot \operatorname{erf}(G_{31}) \quad (10)$$

将式 (7) 和 (10) 相减可以得到

$$U_2 = \frac{c_0 - c_{aS}}{1 + \operatorname{erf}(G_{31})} \quad (11)$$

对式 (9) 进行微分获得液/固界面的迁移速度:

$$\frac{dY_{31}}{dt} = G_{31} \cdot \sqrt{\frac{D_{S1}}{t}} \quad (12)$$

通过微分式 (9) 获得的浓度梯度关于 y 的通用表达式为

$$\frac{\partial c(y, t)}{\partial y} = U_2 \frac{2}{\sqrt{\pi}} \exp\left[-\frac{y^2}{4D_{S1}t}\right] \frac{1}{2\sqrt{D_{S1}t}} \quad (13)$$

将式 (11~13) 代入式 (1) 中, 可以得到下面关于 G_{31} 的表达式:

$$G_{31} \left[1 + \operatorname{erf}(G_{31}) \right] \sqrt{\pi} \exp(-G_{31}^2) = \frac{c_{aS} - c_0}{c_{aL} - c_{aS}} \quad (14)$$

同理, 可以得到复合材料与液相等温凝固过程中关于 G_{32} 的表达式:

$$G_{32} \left[1 + \operatorname{erf}(G_{32}) \right] \sqrt{\pi} \exp(-G_{32}^2) = \frac{c_{aS2} - c_{20}}{c_{aL} - c_{aS2}} \quad (15)$$

当初始厚度为 $W_{\max}$ 的液相层在 t_3 时间内消耗完时, 等温凝固阶段结束。假设铝合金与液相的液/固界面迁移距离为 W_{31} , 复合材料与液相的液/固界面迁移距离为 W_{32} , 则分别有

$$W_{31} = 2G_{31}\sqrt{D_{S1}t_3} \quad (16)$$

$$W_{32} = 2G_{32}\sqrt{D_{S2}t_3} \quad (17)$$

$$W_{31} + W_{32} = W_{\max} \quad (18)$$

$$t_3 = \frac{W_{\max}^2}{4(G_{31}\sqrt{D_{S1}} + G_{32}\sqrt{D_{S2}})^2} \quad (19)$$

式中 $W_{\max}$ 为液相最大宽度, 通过质量守恒定律来确定, D_{S1} 和 D_{S2} 分别是溶质原子在铝合金和复合材料中的扩散系数。

由于溶质原子在铝合金和复合材料中的扩散系数存在 $D_{S1} < D_{S2}$, 造成等温凝固的非对称性, 连接界面向铝合金一侧的偏移量为

$$W_3 = G_{32}\sqrt{D_{S2}t_3} - G_{31}\sqrt{D_{S1}t_3} \quad (20)$$

3.3 数值模拟与实验结果的验证

图 5 给出了 SiC 颗粒增强铝基复合材料与铝合金的 TLP 扩散连接(连接温度为 565 °C, 连接时间为 12 h)接头区域 Cu 元素的成分分布实验结果与数值模拟结果的比较。

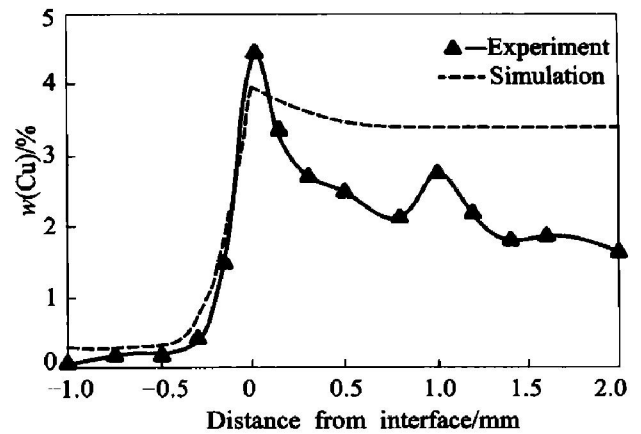


图 5 连接时间为 12 h 的接头区域 Cu 元素成分

Fig. 5 Content profile of copper element in 5056Al/Cu/SiCp/Al joint (Bonding time 12 h)

由于 Cu 原子在复合材料中的扩散系数未知, 所以本数值模拟结果首先通过计算最高溶质原子浓度由于等温凝固过程不对称性造成的偏移量, 然后求解出溶质原子在复合材料中的扩散系数, 并依此来计算等温凝固完成时间为 12 h 左右, 最后计算出溶质原子在接头中的成分分布情况。

从图 5 可以看出, 在铝合金一侧, 数值模拟结果和实验结果非常吻合, 说明本模型具有良好的准确性; 在复合材料与铝合金连接界面上, 溶质原子的最高成分分布的实测值稍高于数值模拟结果; 而在复合材料一侧, 数值模拟的数据要稍高于实际测量数据。分析认为, 数值模拟结果稍高可能主要是由以下两方面原因造成的: 1) 目前还没有准确的 Cu 元素在复合材料中的扩散系数; 2) 应用能谱分析技术来测量元素含量还不是非常精确, 存在着一定的误差。从图 5 可以看出溶质原子成分分布的模拟值和试验值总体的趋势是相同的, 从而证明了本模型是可靠的。

REFERENCES

- [1] 曲文卿. 异种材料 TLP 扩散连接过程及界面力学失配性研究[D]. 北京: 北京航空航天大学机械工程学院, 2000, 1-3.
QU Wenqing. The study on TLP diffusion bonding process

- and interfacial mechanical mismatch of dissimilar materials [D]. Beijing: School of Mechanical Engineering, Beijing University of Aeronautics and Astronautics, 2000, 1 - 3.
- [2] Guan Y, Gale W F. Transient liquid phase bonding of a Hf bearing single crystal nickel aluminide to MM247 superalloy [J]. Mater Sci & Tech, 1999, 15(2): 207 - 212.
- [3] Lehn R K. Joining of 6061 aluminium matrix-ceramic particle reinforced composites[D]. USA: MIT, 1991. 77.
- [4] Duvall D S, Owczarski W A. TLP Bonding: a new method for joining heat resistant alloys[J]. Welding Journal, 1974, 53(4): 203 - 214.
- [5] MacDonald W D, Eagar T W. Transient liquid phase bonding [J]. Annu Rev Mater Sci, 1992, (22): 23 - 46.
- [6] 陈 铮, 赵其章, 吴 斌, 等. $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Ti}/\text{Ni}/\text{Ti}/\text{Si}_3\text{N}_4$ 瞬间液相连接接头的强度与断裂[J]. 中国有色金属学报, 1999, 9(S1): 166 - 171.
- CHEN Zheng, ZHAO Qi-zhang, WU Bin, et al. The strength and fracture of partial transient liquid-phase bonding of $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Ti}/\text{Ni}/\text{Ti}/\text{Si}_3\text{N}_4$ [J]. The Chinese Journal of Non-ferrous Metals, 1999, 9(S1): 166 - 171.
- [7] 陈 铮, 楼宏青, 李志章. $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Ti}/\text{Cu}/\text{Ni}$ 二次部分瞬间液相连接[J]. 材料研究学报, 1999, 13(3): 313 - 316.
- CHEN Zheng, LOU Hong-qing, LI Zhi-zhang. Double partial transient liquid-phase bonding of $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Ti}/\text{Cu}/\text{Ni}$ [J]. Chinese Journal of Materials Research, 1999, 13(3): 313 - 316.
- [8] Zhai Y, North T H, Serrator-Rodrigues J. Transient liquid-phase bonding of alumina and metal matrix composite base materials[J]. Journal of Materials Science, 1997, 32: 1393 - 1397.
- [9] Sinclair C W, Purdy G R, Morral J E. Transient liquid-phase bonding in two-phase ternary systems[J]. Metall Mater Trans A, 2000, 31A: 1187 - 1192.
- [10] Zhou Y, Gale W Y, North T H. Modelling of transient liquid phase bonding [J]. Inter Mater Reviews, 1995(40): 181 - 196.
- [11] MacDonald W D, Eagar T W. Isothermal solidification kinetics of diffusion brazing[J]. Metall Mater Trans, 1998, 29A(1): 315 - 325.
- [12] Tuah-Poku I, Dollar M, Massalaki T B. A study of the transient liquid phase bonding process applied to Ag/Cu/Ag sandwich joint [J]. Metall Mater Trans, 1988, 19A(2): 675 - 686.
- [13] Liu S, Olsen D L. Modeling of brazing processes that use coatings and interlayers[J]. Welding Journal, 1991, 70(S.8): 207 - 215.

Dissymmetry of TLP diffusion bonding of dissimilar materials

QU Wen-qing, ZHUANG Hong-shou, ZHANG Yan-hua

(School of Mechanical Engineering, Beijing University of Aeronautics and Astronautics, Beijing 100083, China)

Abstract: Based on the experimental study on TLP diffusion bonding of SiC particle reinforced Al-based composite and aluminium alloy, the extensive study on the dissymmetry of dissimilar materials TLP diffusion bonding process was conducted, and the isothermal solidification kinetics of TLP diffusion bonding process of dissimilar materials was mathematical modeled. The numerical results were compared with the content profiles of each element in the joint area. The research indicates that the bonding interface departs from the original central line in the joint area of SiC particle reinforced Al-based composite and aluminium alloy, and the content profile of solute atoms distributes fairly asymmetrically. Because of difference of the solute atoms diffusion speeds and the metallurgical reaction between interlayer and base metal, the dissymmetry exists obviously in dissimilar materials TLP diffusion bonding process. And the isothermal solidification kinetics model can be used for illustrating TLP diffusion bonding process of dissimilar materials.

Key words: dissimilar materials; TLP diffusion bonding; dissymmetry

(编辑 杨 兵)