

压力钎焊改善 $\text{Si}_3\text{N}_4/40\text{Cr}$ 钢接头强度的试验研究^①

张春雷 施克仁

(清华大学机械工程系, 北京 100084)

郭 义

(中国科学院金属研究所, 沈阳 110015)

摘 要 分析了 $\text{Si}_3\text{N}_4/40\text{Cr}$ 钢钎焊接头缓冲层机制。利用压力钎焊促进缓冲层产生塑性变形, 降低了接头的残余应力, 提高了接头强度。软性缓冲层 Cu 和 Nb 易于产生较大的塑性变形, 接头强度有明显提高; 硬性缓冲层 Ta 不易产生塑性变形, 接头强度无明显提高。缓冲层塑性变形愈大, 接头强度愈高。使用 Cu 作缓冲层材料, 当外加压力为 27 MPa 时, 接头拉伸强度可达 62.3 MPa。EPMA 结果表明, 在加压和无压状态下, 接头中各元素在垂直界面方向上的总体分布不发生变化。加压可以减小接头钎缝宽度, 控制接头间隙。压力钎焊也有助于其它异种材料的连接。

关键词 $\text{Si}_3\text{N}_4/40\text{Cr}$ 钢 压力钎焊 残余应力 缓冲层

中图法分类号 TG454

在陶瓷/金属封接技术的早期发展过程中, 陶瓷基体都是作为功能陶瓷来使用。在功能陶瓷/金属接头中, 往往注重功能陶瓷所实现的某些使用功能, 同时对结构的密封性有较高要求, 但对接头强度要求有限。随着陶瓷粉体制备工艺和陶瓷烧结工艺的发展与完善, 结构陶瓷成了陶瓷/金属接头中的主体材料。对于结构陶瓷/金属接头, 更注重接头的机械强度和高温性能, 譬如用于热机部件、切削工具等方面的高温结构陶瓷/金属接头^[1], 一般不要求电气绝缘与气密, 而希望陶瓷/金属接头能有很高的连接强度。因此, 陶瓷/金属连接比传统意义的封接具有更新的意义。但是, 由于陶瓷/金属接头本质上是由两类性质迥异的材料构成的, 在接头中产生残余应力是不可避免的, 如何降低残余应力, 提高陶瓷/金属接头强度, 是亟待解决的问题之一。人们在降低陶瓷/金属接头残余应力方面做了大量的工作: (1) 改善接头设计, 控制钎料层厚度^[1]; (2) 采用中间层法^[2-5]; (3) 使用

功能梯度材料^[6-7]; (4) 利用缓冲层相变^[8]等。这些方法虽然在一定程度上提高了接头强度, 但是限于各种条件, 不能充分提高陶瓷/金属 (Ceramic/Metallized, 以下简作 C/M) 接头强度, 另外, 由于工艺和设计问题(如 FGM 制备和自身设计上的困难), 对于陶瓷金属接头的改善作用并没有取得太大的进展。

本文提出了利用压力钎焊促进接头缓冲层产生塑性变形, 降低 C/M 钎焊接头残余应力, 从而提高接头强度的方法。

1 实验

1.1 实验材料

1.1.1 基体材料

在 C/M 钎焊接头中, Si_3N_4 陶瓷是经常使用的结构陶瓷材料, 这主要是因为 Si_3N_4 陶瓷的高强度、高硬度、耐磨损、耐高温、耐腐蚀、抗氧化等优良性能, 及其热膨胀系数小、抗热震性

① 中国科学院金属研究所所长基金资助课题
张春雷, 男, 30 岁, 博士研究生

收稿日期: 1998-04-13; 修回日期: 1998-07-02

好的特点。本文使用的是反应烧结 Si_3N_4 ，其主要性能指标如表 1。

表 1 氮化硅陶瓷的主要性能指标

Table 1 Major properties of Si_3N_4

Density: 2 200~ 2 600 kg/ m ³ ;
Melting point: 2 173 K;
Coefficient of thermal expansion: (2. 5~ 3. 0) × 10 ^{- 6} K ^{- 1} ;
Elastic modulus: 147~ 216 GPa
Bending strength: 600~ 800 MPa
Tensile strength: 98. 1~ 14. 2 MPa

在实验中作为基体使用的金属材料是普通的 40Cr 钢，成分和性能见表 2。

表 2 40Cr 钢的化学成分和力学性能

Table 2 Chemical ingredients and mechanical properties of 40Cr steel

Chemical ingredients				Mechanical properties			
C	Si	Mn	Cr	σ_b / MPa	$\sigma_{0.2}$ / MPa	δ / %	ψ / %
0. 37~ 0. 45	0. 17~ 0. 37	0. 58~ 0. 80	0. 80~ 1. 10	980	980	9	45

1. 1. 2 活性钎料 AgCuTi

为了改善陶瓷的润湿性能，常在钎料中加入一些活性元素来分解陶瓷表面薄层，从而避免了陶瓷表面预先金属化的复杂工艺。常用的活性钎料主要有两类：一类是 Cu-X 或 Ag-Cu-X 系列(X 通常指 IVB 元素，主要是 Ti, Zr 和 Hf)，另一类是 Ti-Zr 合金(常添加 Be 元素)。在本实验中，我们选择了 AgCu 共晶加入 7% (质量分数) Ti 的钎料作为试验钎料。

1. 1. 3 缓冲层材料

在试验中使用的缓冲层材料为 Cu, Nb 和 Ta，其性能见表 3。

1. 2 实验设备

实验是在卧式压力真空钎焊炉中完成的。加压系统采用波纹管动密封滑动结构，可以根据钎焊过程中的实际需要施加一定的压力。

1. 3 实验方法

试验中的 C/M 接头都使用搭接接头，金属试样和陶瓷试样的尺寸都为 3 mm × 4 mm × (16 ~ 20) mm，钎焊面为 4 mm × 4 mm 的平面，如

图 1。

表 3 缓冲层物理性能和力学性能

Table 3 Physical and mechanical properties of buffers layer

Material	CTE / 10 ^{- 6} K ^{- 1}	Tensile strength / MPa	Hard- ness HV	Density / (kg• m ^{- 3})	Elastic modulus / GPa	Fusion point / K	Purity / %
Nb	8. 9	275	175	8 570	106	2 741	99. 90
Ta	7. 7	520	250	16 600	188	3 269	99. 90
Cu	17. 6	195	—	8 900	108	1 357	99. 99

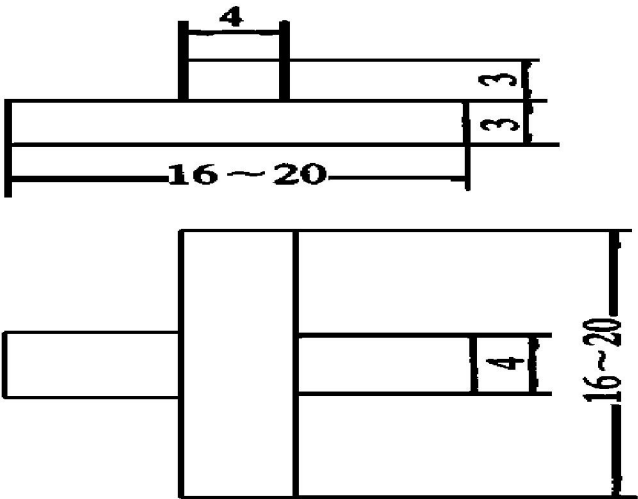


图 1 C/M 接头示意图

Fig. 1 Diagram of C/M joint
(Unit: mm)

1. 3. 1 C/M 接头的钎焊工艺

钎焊实验在压力真空钎焊炉中完成。要求 Si_3N_4 样品和 40Cr 钢样品的钎焊面平整洁净，无裂缝或豁口等缺陷。将两种样品按十字接头装配好，要求两个样品相互垂直。具体钎焊工艺如下：加热速度为 15 K/ min，炉中温度达到 1 053 K 时，保温 10 min，钎焊温度为 1 193 K，保温 10 min，随后缓冷，冷却速度为 10 K/ min。在冷却过程(低于 973 K)中，在垂直钎焊面方向施加 27 MPa 的压力。钎焊时热态真空度不低于 10^{- 1} Pa。有缓冲层的接头缓冲层两侧预置钎料层厚度均为 280 μm。

1. 3. 2 接头强度实验

接头强度的评价方法主要有拉伸试验、三点弯曲或四点弯曲试验和剪切试验等。拉伸试验操作比较难，但由于可信度高而成为重要构件的主要测试手段。本文即采用拉伸试验。

1.3.3 微观分析方法

在经过拉伸试验的 C/M 接头样品中, 选取包含整个接头信息的断裂部分(一般 C/M 钎焊接头都断在陶瓷上, 因此只要选取附着金属的那部分即可), 镶嵌成金相样品, 磨平, 在光学显微镜下测量中间缓冲层厚度, 再进行抛光, 然后喷碳处理, 用 EPMA 观察并分析加压对接头中元素在界面处分布的影响。

2 结果与讨论

2.1 $\text{Si}_3\text{N}_4/40\text{Cr}$ 钢无压直接钎焊

图 2 是 $\text{Si}_3\text{N}_4/40\text{Cr}$ 钢无压直接钎焊时接头强度和预置钎料层厚度的关系曲线。接头强度随着预置钎料层厚度的增大(140~420 μm)而增大, 但总保持在较低的水平。

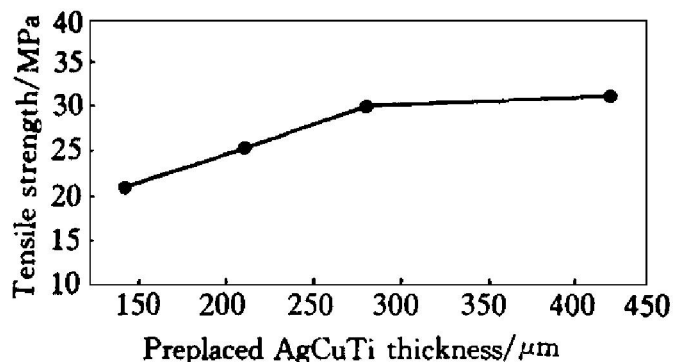


图 2 预置钎料层厚度与接头强度的关系

Fig. 2 Relation between preplaced AgCuTi thickness and joint tensile strength

在完全弹性范围内, 接头应力可由下式估计, 从中可以看出热膨胀系数失配程度对应力水平影响很大。

$$\sigma_i = -\sigma_j = (\alpha_i - \alpha_j) \times (T_2 - T_1) \times \frac{E_i E_j}{E_i + E_j} \quad (1)$$

式中 σ_i 和 σ_j 为两基体材料中的应力, E_i 和 E_j 为两基体材料的弹性模量, α_i 和 α_j 为两基体材料的热膨胀系数, $T_2 - T_1$ 为连接时的降温区间。

由于金属的热膨胀系数(40Cr 钢的热膨胀系数为 $12 \times 10^{-6} \text{K}^{-1}$) 高于陶瓷材料, 尤其是 Si_3N_4 这样的结构陶瓷热膨胀系数更小, 因此在

焊后冷却过程中金属收缩量比陶瓷大得多, 但是由于两者在钎焊时已经产生了冶金连接, 所以在陶瓷与金属界面(其实是陶瓷的端面)产生一个向心端面作用力, 这个端面作用力可以在陶瓷的近缝区引起径向压应力、剪应力和轴向拉应力。正是较大应力的存在使得接头强度很低。

2.2 $\text{Si}_3\text{N}_4/$ 缓冲层/40Cr 钢无压钎焊

图 3 是 $\text{Si}_3\text{N}_4/$ 缓冲层/40Cr 钢无压钎焊时, 以 Cu 和 Nb 作为缓冲层所测得的结果。以 Ta 为缓冲层时, 缓冲层厚度为 0.2~0.6 mm, 接头强度约 26 MPa, 与无缓冲层的接头强度相当(甚至略有降低)。

实验表明, 在陶瓷与金属的钎焊接头中加入缓冲层, 可在一定程度上改善接头的强度水平, 改善程度取决于缓冲层材料松弛应力的作用大小。Cu 和 Nb 对 $\text{Si}_3\text{N}_4/40\text{Cr}$ 钢钎焊接头强度有较好的改善作用, 而 Ta 作为 $\text{Si}_3\text{N}_4/40\text{Cr}$ 钢钎焊接头的缓冲层, 其作用较差。另外, 缓冲层材料, 尤其是软性缓冲层材料, 往往存在一个最佳厚度值, 用此厚度的材料作缓冲层, 接头强度最高。

当接头中热应力累积达到缓冲层材料的屈服点, 缓冲层材料就在热应力的作用下开始屈服, 经过一段屈服平台后, 缓冲层材料开始硬化。接头中应力大小由下式决定^[9]:

$$\sigma_i = -\sigma_j = \sigma_y + E_p(\alpha_i - \alpha_j) \times (T_2 - T_1) \quad (2)$$

式中 σ_y 为金属屈服极限, E_p 为线性应变硬化系数, 由于 $\sigma_y \gg E_p(\alpha_i - \alpha_j) \times (T_2 - T_1)$, 所以缓冲层屈服极限对接头应力水平具有决定作用。缓冲层材料屈服极限越低, 弹性模量越小, 则材料变形能力愈好, 松弛应力效果愈明显。当然, 选择的缓冲层如果太薄, 吸收的应变能也很小, 残余应力则不能有效地释放; 如果缓冲层太厚, 缓冲层材料本身对变形也起到一定的抑制作用, 同样阻碍应变能的吸收, 使接头强度下降。

2.3 $\text{Si}_3\text{N}_4/$ 缓冲层/40Cr 钢加压钎焊

图 4 是 $\text{Si}_3\text{N}_4/$ Cu(Nb, Ta)/40Cr 钢在施加

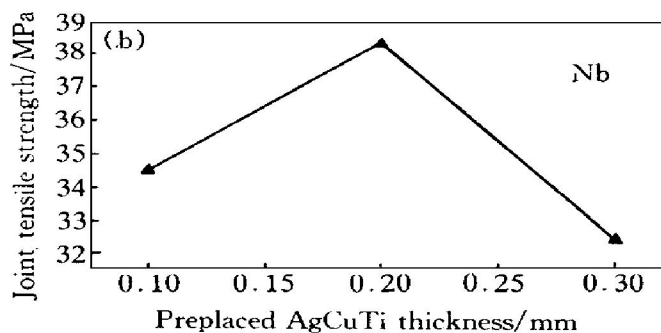
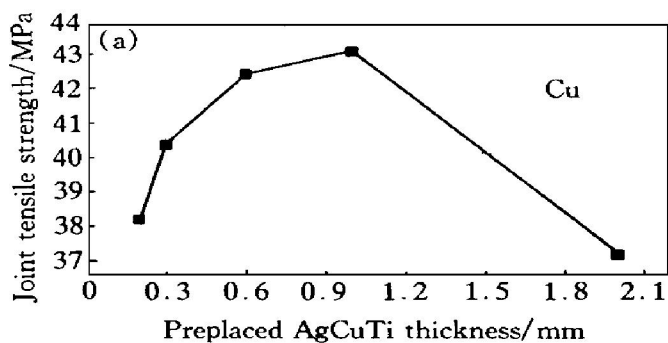


图3 缓冲层厚度与接头强度的关系

Fig. 3 Relation between preplaced AgCuTi thickness and joint tensile strength

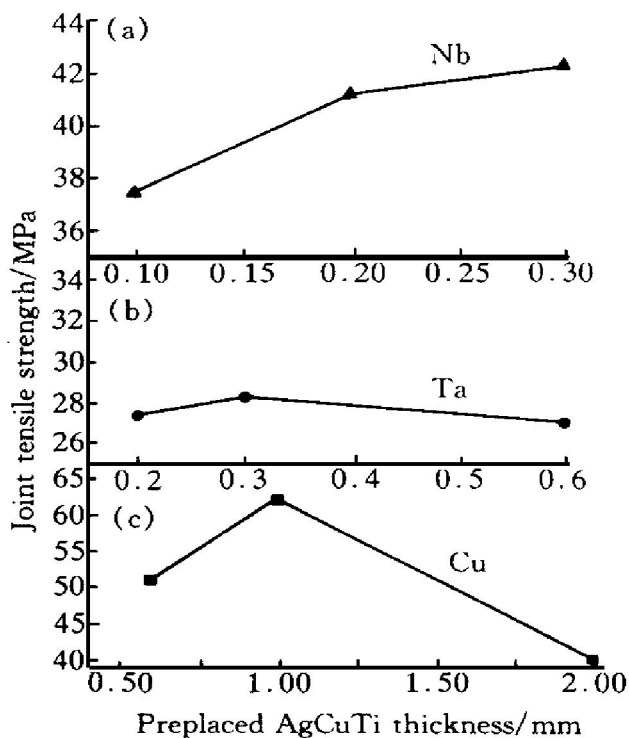


图4 缓冲层厚度与接头强度的关系

Fig. 4 Relation between preplaced AgCuTi thickness and joint tensile strength

27 MPa 外力时中间缓冲层厚度与接头性能的关系曲线。与图 3 比较可知, Cu 作为缓冲层时, 有无外力对接头性能影响很大, 施加 27 MPa 外力时接头强度可达 62.3 MPa, 而 Ta 作缓冲层时外力对接头强度几乎无改善。

热应力的产生是个累积的过程, 如果在接头中仅仅是加入缓冲层而不借助于外力, 那么接头的应力在材料的力学熔点之下是逐步增大的, 缓冲层材料不到一定的温度很难达到其屈服极限, 对于许多屈服极限比较高的缓冲层材

料, 从缓冲层材料的熔点一直冷却到室温都不会产生缓冲层材料的屈服现象, 而只能通过一定的高温蠕变来缓冲应力。

如果在钎焊过程中加压, 那么缓冲层材料会比在无压钎焊条件下提前达到屈服极限, 即在更高的温度时, 缓冲层材料开始屈服。在本试验中, 我们在垂直钎焊面方向施加 27 MPa 的压力。对于单向压缩的加载方式, 其最大剪应力为主应力的二倍, 处于软性应力状态的金属材料, 在剪应力作用下可产生充分的塑性变形而不会发生脆断, 此时的塑性变形是径向的, 这可以部分或完全抵消陶瓷金属性能失配所产生的应变。因此, 接头在整个冷却过程中一直处于低应力或无应力状态。根据材料在压缩应力下的变形理论, 当缓冲层厚度与直径比小于 1 时(这在一般情况下总是成立的), 缓冲层在整个界面上都发生变形, 在原有残余应力场的诱导下, 残余应力大的地方变形就大, 残余应力消除的就多, 所以在整个界面上应力分布也较均匀, 不易产生应力集中。

通过对拉伸试验破坏后的样品测试缓冲层厚度, 得到表 4。

结果表明, C/M 接头的强度和缓冲层的减薄量有关, 减薄量愈大, 接头的强度愈好。而缓冲层减薄量是材料塑性变形的另一种表现形式, 两者是统一的, 塑性变形愈多, 减薄量愈大。所以, C/M 接头强度和缓冲层材料塑性变形有关, 塑性变形大, 则接头强度高; 塑性变形小, 则接头强度低。

表 4 Cu 和 Ta 缓冲层厚度变化

Table 4 Changes of preplaced Cu, Ta thickness

Material	Original thickness / mm	Brazing without pressure		Pressure brazing	
		Thickness after brazing / mm	Percentage of thinned thickness / %	Thickness after brazing / mm	Percentage of thinned thickness / %
Cu	0.6	0.54	10	0.38	37
	1.0	0.86	14	0.50	50
	2.0	1.80	10	1.50	25
Ta	0.6	0.56	6.7	0.52	13

2.4 界面微观分析结果

图 5(a) ~ 5(d) 显示钎焊冷却过程中施加 27 MPa 外力和未加外力的 Si₃N₄/ Cu/ 40Cr 钢接头 Cu 缓冲层两侧各元素在垂直界面方向上的线扫描图。

EPMA 分析结果表明, 对于相同工艺参数下的 Si₃N₄/ Cu/ 40Cr 钢接头, 在加压和无压两种条件下, 界面(包括 Si₃N₄/ Cu 侧和 Cu/ 40Cr 侧)的元素分布基本相同。从图中还可以明显

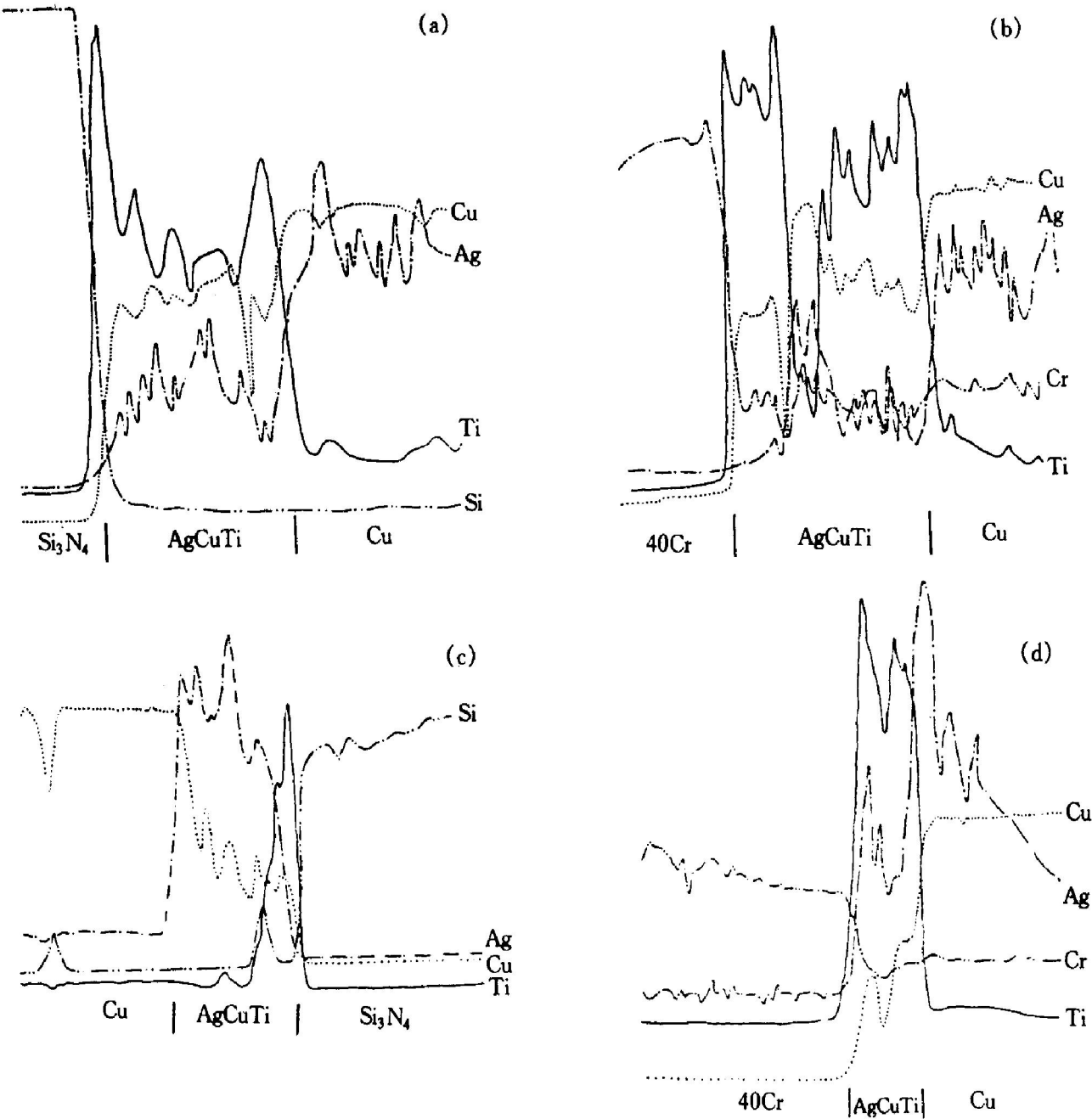


图 5 Si₃N₄/ Cu/ 40Cr 钢接头元素线扫描

Fig. 5 Line scanning of elements in interface of Si₃N₄/ Cu/ 40Cr steel(× 520)

(a) —Si₃N₄/ Cu (no pressure); (b) —Cu/ 40Cr (no pressure);
(c) —Si₃N₄/ Cu (27 MPa); (d) —Cu/ 40Cr (27 MPa)

地看出, 加压和无压对钎缝宽度影响很大, 表 5 是实测结果。

表 5 加压钎焊和无压钎焊条件下的钎缝宽度

Table 5 Seam width under pressure brazing and nonr pressure brazing

Position	Seam width/ μm	
	Brazing with 27 MPa	Brazing without pressure
$\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Cu}$ side	18	25
$\text{Cu}/40\text{Cr}$ side	15	32
Total seam	33	57

图 6(a) ~ 6(b) 显示钎焊冷却过程中施加 27 MPa 外力和未加外力的 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Ta}/40\text{Cr}$ 钢接头 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Ta}$ 侧各元素在垂直界面方向上的线扫描图。可以看出, 在无压和加压钎焊条件下, 在 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Ta}$ 一侧界面元素分布大体相同。通过实际测量, $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Ta}/40\text{Cr}$ 钢接头钎料层的厚度绝对改变量也和 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Cu}/40\text{Cr}$ 钢接头相当, 这说明在软、硬性材料作缓冲层时施加同样外力, 钎料层绝对变化量相当。

在实验中, 有缓冲层的接头缓冲层两侧预

置钎料层厚度都为 $280\ \mu\text{m}$ 。从上述的实验结果可以知道, 钎焊后的接头钎缝宽度与预置钎料层时的接头间隙是不同的。预置钎料层厚度相同的 C/M 接头采用不同的工艺, 钎缝宽度会产生不同的变化。在焊后冷却过程中加压可以降低接头钎缝宽度, 起到控制接头间隙的作用。虽然降低接头钎缝宽度在一定程度上可以提高接头强度, 可是钎料层厚度改变量相当的 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Cu}/40\text{Cr}$ 钢和 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Ta}/40\text{Cr}$ 钢接头强度相差很大。上述结果表明, 压力钎焊对 C/M 接头强度的改善主要是通过促进缓冲层的塑性变形、降低接头残余应力来达到的。

3 结论

(1) 在钎焊冷却过程中施加一定压力, 可以促进缓冲层的塑性变形, 提高接头强度。单向加压使得整个界面应力分布均匀, 不易产生应力集中。软性缓冲层 Cu 和 Nb 易于产生较大的塑性变形, 接头强度有明显提高。硬性缓

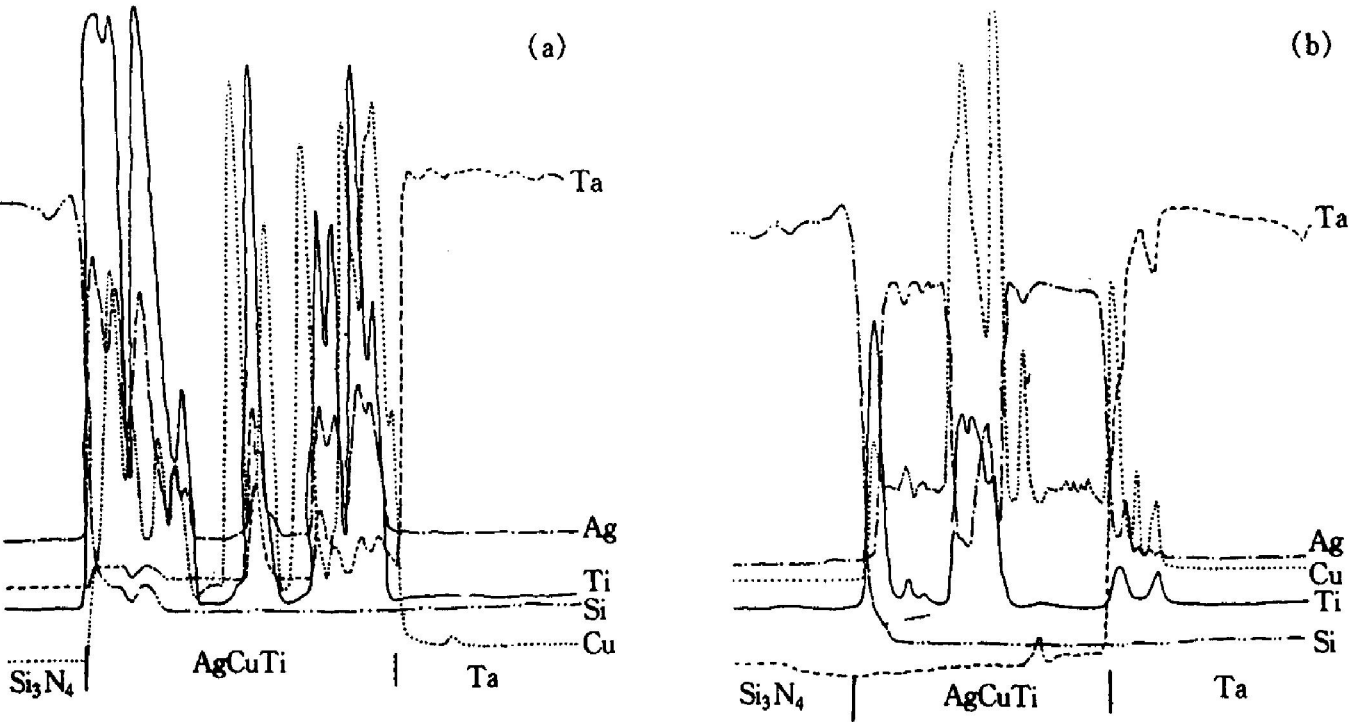


图 6 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Ta}/40\text{Cr}$ 钢接头元素线扫描

Fig. 6 Line scanning of elements in interface of $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Ta}/40\text{Cr}$ steel ($\times 240$)

(a) — $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Ta}$ (no pressure); (b) — $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Ta}$ (27 MPa)

冲层 Ta 不易产生塑性变形, 接头强度无明显提高。塑性变形愈大, 接头强度愈高。

(2) 在加压和无压状态下, 接头中各元素在垂直界面方向上的总体分布不发生变化。加压可以减小接头钎缝宽度, 起到控制接头间隙的作用。压力钎焊主要是通过促进缓冲层的塑性变形、降低接头的残余应力, 从而改善 C/M 接头强度。压力钎焊也有助于其它异种材料的连接。

REFERENCES

- 1 Liu L B (刘联宝), Yang J P (杨珏平), Ke C H (柯春和) *et al.* Technical Guide to Join Ceramic and Metal (陶瓷金属封接技术指南). Beijing: National Defense Industry Press, 1990.
- 2 Suganuma K, Okamoto T, Miyamoto Y *et al.* Mater Sci Tech, 1986, 2(11): 1156– 1161.
- 3 Chui You *et al.* Trans JWRI, 1993, 22(1): 121– 126.
- 4 Xian Aiping (洗爱平). PhD Dissertation, (in Chinese). Shenyang: Institute of Metal Research, Chinese Academy of Sciences, 1991: 202– 204.
- 5 Yamada T, Yokoi K and Kohno A. J Mater Sci, 1990, 25(4): 2188– 2192.
- 6 Toshiyuki A. Journal of the Materials Science Society of Japan, 1989, 26(5): 216– 224.
- 7 Rabin B H, Wiliamson R L and Suresh S. MRS Bulletin Jan, 1995, (1): 37– 39.
- 8 Nakamura Y *et al.* Advanced Materials & Processing, 1995, 1: 747.
- 9 Zhou Y, Bao F H, Ren J L and North T H. Mater Sci Tech, 1991, 17(9): 863– 867.

IMPROVEMENT OF $\text{Si}_3\text{N}_4/40\text{Cr}$ STEEL JOINT STRENGTH BY PRESSURE BRAZING

Zhang Chunlei and Shi Keren

Department of Mechanical Engineering,

Tsinghua University, Beijing 100084, P. R. China

Guo Yi

Institute of Metal Research,

Chinese Academy of Sciences, Shenyang 110015, P. R. China

ABSTRACT The buffer mechanism in the $\text{Si}_3\text{N}_4/40\text{Cr}$ steel joint was analyzed. Pressure brazing was employed to increase the joint strength by the plastic deformation of the buffer layer and the decrease of the residual stresses. The soft buffers such as Cu and Nb are apt to be deformed and result in increase of the joint strength, the hard buffers such as Ta are reversed. The larger the plastic deformation of the buffer layer, the higher the joint strength. As a result, the joint tensile strength is 62.3 MPa with Cu as a buffer and 27 MPa exterior pressure. It was drawn up from EPMA that the element distributions vertically along interface do not change whether with or without pressure and that the joining gaps decrease with pressure. Other dissimilar materials bonding can benefit by pressure brazing.

Key words $\text{Si}_3\text{N}_4/40\text{Cr}$ steel pressure brazing residual stress buffer

(编辑 彭超群)