

Si₃N₄陶瓷/Inconel 600 合金液相诱导扩散 连接接头的强度与断裂行为

杨 敏, 邹增大, 刘秀忠, 王育福*

(山东大学 材料科学与工程学院, 济南 250061)

摘要: 利用 Nb/Cu/Ni 复合层作中间层, 采用液相诱导扩散连接方法连接了 Si₃N₄ 陶瓷/Inconel 600 合金, 用剪切试验评价接头强度, 采用扫描电镜(SEM)观察接头的断口形貌, 系统地分析了连接压力、连接时间、连接温度对 Si₃N₄ 陶瓷/Inconel 600 合金液相诱导扩散连接接头的强度和断裂行为的影响。结果表明, 连接温度(在连接时间为 3 000 s 以及连接压力为 5 MPa 条件下)、连接压力(在连接温度为 1 130 °C 以及连接时间为 3 000 s 条件下)和连接时间(在连接温度为 1 130 °C 以及连接压力为 10 MPa 条件下)都与接头的剪切强度呈抛物线关系。

关键词: 液相诱导; 扩散连接; Si₃N₄ 陶瓷; Inconel 600 合金

中图分类号: TG454 文献标识码: A 文章编号: 0253-360X(2003)04-36-04

杨 敏



0 序 言

随着陶瓷制造技术的发展以及陶瓷在工程结构中的应用, 陶瓷/金属的连接技术, 特别是高温陶瓷接头的连接技术已经成为了人们研究的热点。液相诱导扩散连接方法是采用由不同厚度的低活性金属/低熔点金属/软金属组成的复合层作中间层, 可以在较低的连接温度、较短的连接时间以及较小的连接压力下获得陶瓷/金属高温接头的连接方法。连接温度、连接压力以及连接时间的变化对连接接头的性能有着重要的影响, 因此研究连接工艺参数对连接接头强度和断裂行为的影响有着重要的意义^[1~4]。

1 试验材料与试验方法

1.1 试验材料

试验用材料选用清华大学生产的 16 mm × 16 mm × 8 mm 热压烧结纯 Si₃N₄ 陶瓷以及 Inconel 600 Ni 基高温合金, 尺寸为 20 mm × 20 mm × 10 mm。中间层材料是化学分析纯度 99.9% 的纯 Nb 粉、多层 Cu 箔叠成的厚度 0.13 mm 的 Cu 层以及多层 Ni 箔叠成的厚度 0.12 mm 的 Ni 层。

1.2 试验方法

连接前, 将 Cu 箔、Ni 箔中间层材料分别剪成 20 mm × 20 mm 的试样, 并用 600 号的金相砂纸打磨。陶瓷连接面由金刚石研磨膏研磨并抛光, 被连接金属表面也经砂纸打磨并抛光, 然后将 Cu 箔、Ni 箔与被连接材料一起用丙酮仔细清洗干净; Nb 粉用丙酮调成浆料, 均匀地涂在陶瓷上, 厚度为 0.02 mm; 然后再按 Si₃N₄/Nb/Cu/Ni/Inconel 600 顺序装配好, 并放入真空炉中。改变连接时间、连接压力、连接温度, 在约 5 × 10⁻³ Pa 的真空中进行连接。采用剪切试验测定接头强度, 剪切时加载速度为 0.5 mm/min。用 SEM 观察接头断口形貌。

2 试验结果与分析

2.1 连接温度对接头强度的影响

当连接时间为 3 000 s、连接压力为 5 MPa 时, 得到的连接温度与接头剪切强度的关系曲线如图 1 所示。从图 1 中可以看出, 在这个连接时间和连接压力下, 当连接温度较低时, 随着连接温度的升高, 接头强度增加缓慢, 当达到某一温度以后, 随着温度的增加, 接头强度快速增加, 而当连接温度超过一定值后, 随着温度的增加, 接头强度反而降低。要获得最佳强度的接头存在最佳连接温度, 在上述连接压力和连接时间下, 连接温度为 1 130 °C 时, 接头剪切强度可以高达 87.058 MPa。观察接头的剪切断口发

收稿日期: 2002-12-24

基金项目: 山东省自然科学基金资助项目(Z2000F02)

* 参加此项研究工作的还有崔凤友、李春胜

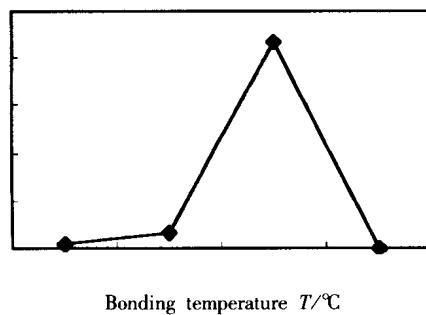


图 1 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Nb}/\text{Cu}/\text{Ni}/\text{Inconel 600}$ 接头
剪切强度与连接温度的关系

Fig. 1 Relationship between $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Nb}/\text{Cu}/\text{Ni}/\text{Inconel 600}$ joint shear strength and bonding temperature

$t = 3000 \text{ s}$, $P = 5 \text{ MPa}$, $\delta_{\text{Nb}} = 0.02 \text{ mm}$, $\delta_{\text{Cu}} = 0.13 \text{ mm}$, $\delta_{\text{Ni}} = 0.12 \text{ mm}$

现,当连接温度为 1090°C 时,接头断在陶瓷/金属界面, Cu 熔化量很少,在部分陶瓷表面粘有熔化的 Cu ,未粘部分无明显反应层,这表明因为温度低,中间层与陶瓷之间的扩散和界面反应进行得较差;当连接温度为 1110°C 时,接头在中间层 Cu 层中断开,陶瓷表面粘有 Cu 箔,这表明陶瓷与中间层金属已经形成了一定的界面反应层和扩散层。但由于在这个连接压力和连接时间下,连接温度还不够高,多层 Cu 箔组成的 Cu 层,熔化量少,层与层之间结合强度低,成为陶瓷/金属接头最薄弱的环节,此时陶瓷/金属的强度由 Cu 箔之间的结合强度决定。而且,此种工艺下得到的接头, Cu 未完全熔化,由于 Cu 的熔点不高,接头也不能耐高温。当温度为 1130°C 时,接头断在陶瓷/金属界面以及陶瓷上,并在金属上附着有大量陶瓷,在扫描电镜下观察断口发现,即使在起裂位置,在界面处的金属侧也粘有少量的陶瓷,如图 2 所示,这表明由于陶瓷脆,变形能力差,此时成为接头的薄弱环节,接头的剪切强度主要由陶瓷的剪切强度来决定。这是因为在此温度下, Cu 已经完全熔化,一方面,由于金属 Nb 在 Cu 中的溶解量大, Nb 的活度大大提高,能在陶瓷表面形成厚度合适的反应层和扩散层;另一方面,位于 Cu 层另一侧的 Ni ,也可以部分溶解于液态 Cu 中,并向陶瓷方向扩散。扩散的 Ni 在液态金属中,一部分与溶解的 Nb 结合,在液体金属中形成硬质质点,一部分扩散到陶瓷表面,与 Nb 一起和陶瓷反应形成反应层,其余的存在于液态 Cu 中,最终形成 $\text{Cu}-\text{Ni}$ 合金,从而在连接后, Cu 不再独立存在,使接头开始熔化的温度提高。当温度为 1150°C 时,接头在焊后的加工过程中断开,断裂发生在陶瓷/反应层界面,连接过程中形成的液态金属几乎全部流出结

合面,金属结合面表面大部分呈灰色。这表明由于温度过高, Cu 全部被熔化形成的液体粘度小,在压力的作用下很容易被挤出接头区,从而使接头区的活性金属大量减少,反应层厚度反而下降;此外,由于温度高, Ni 溶解得更快,更多, Ni 向陶瓷表面富集并与陶瓷反应形成脆性硅化物的速度更快,这样导致陶瓷界面的反应层和扩散层中的脆性增加,断裂发生在陶瓷/反应层界面,从而使接头的强度变低。

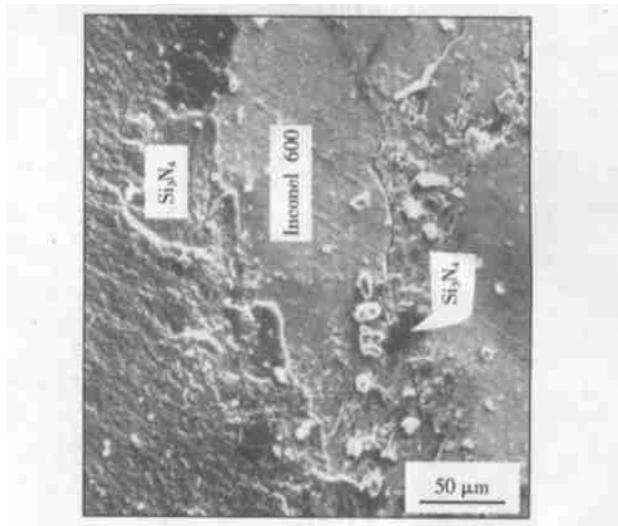


图 2 $T = 1130^{\circ}\text{C}$ 时, $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Nb}/\text{Cu}/\text{Ni}/\text{Inconel 600}$ 接头剪切断口扫描照片

Fig. 2 SEM graphs of shear fractured surface of $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Nb}/\text{Cu}/\text{Ni}/\text{Inconel 600}$ joint at 1130°C

2.2 连接压力对接头强度的影响

图 3 是当连接时间为 3000 s 和连接温度为 1130°C 时,连接压力与接头剪切强度之间的关系。从图中可以看出连接压力与接头剪切强度近似呈抛物线关系。在这个连接温度和连接时间下,当压力很低时,随着连接压力的增加,接头强度增加较缓慢,而当连接压力较大时,随着压力的增加,接头强度增加较快,但当压力超过一定值后,接头强度反而随着连接压力的增加而下降。要获得最大连接强度,存在最佳连接压力。从接头的剪切断口观察发现,当连接压力小时,断在中间层 Ni 层上,因为在保温阶段虽然 Cu 全部熔化,但是 Ni 箔并不熔化, Ni 箔与 Ni 箔之间、 Ni 与 Inconel 600 之间的连接是扩散连接。当压力较小时,它们之间接触不够紧密,存在间隙,这样连接时在整个面上就不容易形成没有缺陷的完整的扩散层,因此也就存在天然的空洞缺陷,接头的强度因此而低。随着压力的增加,间隙的减小,扩散层上的空洞缺陷也就越少,接头的强度也就增加。当压力达到一定值后,一方面,这种缺陷完全消失,另一方面,这种适当的压力不会将连接过程中形成的液态金属挤出连接处,而在陶瓷/中间层金

属界面能形成厚度合适的反应层,这样可使接头强度达到最大,此时的接头在剪切时,裂纹先从界面处起裂,然后向陶瓷中扩展,断裂发生在陶瓷/中间层金属界面以及陶瓷中。而当压力过大时,断裂一般发生在陶瓷/中间层金属界面处,这是因为随着压力的继续增加,过大的压力会将液态金属挤出连接面,从而在陶瓷/中间层金属界面不能形成合适的反应层,此外,压力过大,也容易使陶瓷中产生微裂纹,而使接头强度降低。

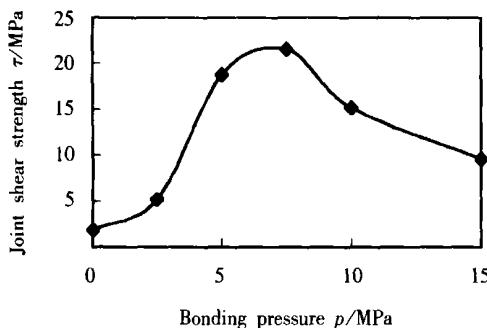


图3 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Nb}/\text{Cu}/\text{Ni}/\text{Inconel} 600$ 接头
剪切强度与连接压力的关系

Fig. 3 Relationship between $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Nb}/\text{Cu}/\text{Ni}/\text{Inconel} 600$ joint shear strength and bonding pressure

Note: $t = 3000 \text{ s}$, $T = 1130^\circ\text{C}$, $\delta_{\text{Nb}} = 0.02 \text{ mm}$,
 $\delta_{\text{Cu}} = 0.13 \text{ mm}$, $\delta_{\text{Ni}} = 0.12 \text{ mm}$

2.3 连接时间对接头强度的影响

图4是当连接温度为 1130°C ,连接压力为 10 MPa 时,连接时间与接头强度之间的关系。从图中可以看出在此温度和压力下,当连接时间较短时,随着时间的增加,接头强度提高;当达到一定时间时,接头强度达到最大;然后随着时间的增加,接头强度急剧降低。从接头的剪切断口也可以发现,当时间为 60 s 时, Cu 几乎未熔化,只在陶瓷表面的局部地方有很薄的扩散层,陶瓷与金属未能连上。当连接时间达到 1200 s 时, Cu 层已经熔化,但此时熔化的 Cu 粘度大,流动性差,而 Cu 层是由多层 Cu 箔叠加形成的, Cu 箔通过粘度大的液态 Cu 融合成一体困难较大,所需要的时间较长,短的连接时间,在层与层之间易形成未熔合缺陷,中间层的 Cu 层就成为了接头最薄弱的环节,断裂发生在 Cu 层中,接头强度仅为 7.78 MPa 。当连接时间达到 2700 s 时, Cu 层已经完全熔化, Nb 和 Ni 都向液态 Cu 中溶解,并都向陶瓷表面富集,在陶瓷表面产生厚度合适的反应层,部分 Nb 和 Ni 在液态 Cu 中形成硬质点, Ni 还和剩余的 Cu 结合形成 $\text{Ni}-\text{Cu}$ 合金,此时,接头剪切强度达到最大,达 70.113 MPa 。而且断裂时部分断在反应层与陶瓷的界面,部分断在陶瓷,呈

锯齿状断裂,陶瓷也破碎。当连接时间为 3600 s 时,接头断在反应层中;当连接时间为 5400 s 时,接头断在反应层/陶瓷界面和反应层中,反应层较厚;而当连接时间达到 7200 s 时,接头未能连上,在陶瓷连接面的中间部分有较厚的反应层,这主要是因为随着时间的延长,一方面,陶瓷连接表面的界面反应更充分,生成的反应层厚,而且此时的反应物是脆性化合物,在残余热应力的作用下,很容易产生裂纹。另一方面,随着时间的延长,液态金属流出结合面,使反应并不是在整个陶瓷连接面上产生,从而也削弱了陶瓷与金属的结合,接头的强度也就随着时间的延长而降低。

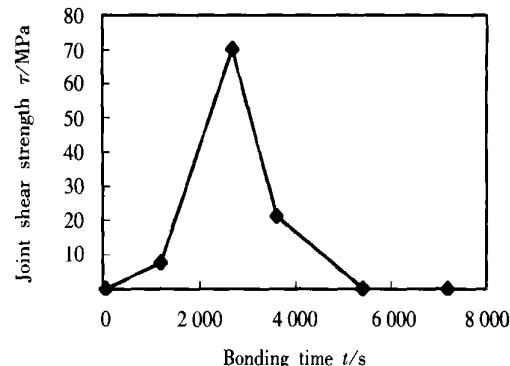


图4 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Nb}/\text{Cu}/\text{Ni}/\text{Inconel} 600$ 接头
剪切强度与连接时间的关系

Fig. 4 Relationship between $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Nb}/\text{Cu}/\text{Ni}/\text{Inconel} 600$ joint shear strength and bonding time

Note: $p = 10 \text{ MPa}$, $T = 1130^\circ\text{C}$, $\delta_{\text{Nb}} = 0.02 \text{ mm}$,
 $\delta_{\text{Cu}} = 0.13 \text{ mm}$, $\delta_{\text{Ni}} = 0.12 \text{ mm}$

3 结论

(1) 在连接时间为 3000 s 、连接压力为 5 MPa 的条件下,接头的剪切强度与温度呈抛物线关系。连接温度较低时,断裂发生在 Cu 层中;连接温度合适时,断裂发生在界面和陶瓷中;连接温度过高时,强度降低,断裂发生在陶瓷/反应层界面处。

(2) 在连接温度为 1130°C 、连接时间为 3000 s 的条件下,接头的剪切强度与连接压力呈抛物线关系。连接压力较小时,断裂发生在 Ni 层中;压力合适时,断裂发生在界面和陶瓷中;压力过大时,断裂发生在陶瓷/中间层界面。

(3) 在连接温度为 1130°C 、连接压力为 10 MPa 的条件下,接头的剪切强度与连接时间呈抛物线关系。连接时间较短时,断裂发生在 Cu 层中,温度合适时,断裂发生在界面和陶瓷中,温度过高时,强度降低,断裂发生在反应层中。

[下转第 42 页]

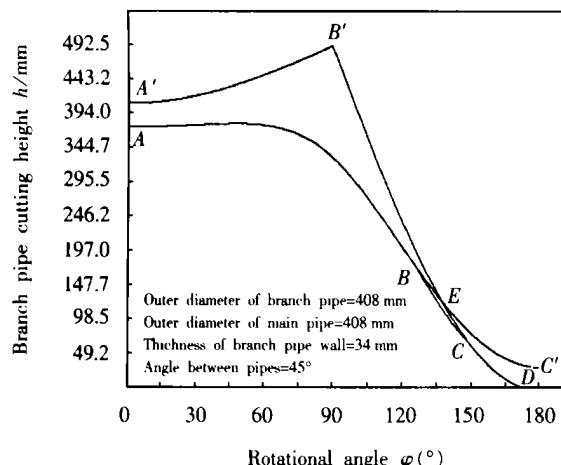


图 6 三种下料曲线

Fig. 6 Three kinds of branch pipe cutting curves

采用直径为 $\phi 408$ mm, 管壁厚度为 34 mm 的支管和直径为 $\phi 408$ mm 的主管, 在两管夹角为 45° 时进行切割试验。图 7 是支管与主管的实物装配图。



图 7 支管与主管装配照片

Fig. 7 Assembly between branch pipe and main pipe

[上接第 38 页]

参考文献:

- [1] 周飞, 李志章. 活性金属部分瞬间液相连接氮化硅陶瓷的研究[J]. 金属学报, 2000, 36(2): 171~176.
- [2] Osendar M I, Pablos A D, Miranzo P. Microstructure and mechanical strength of $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Ni}$ solid state bonded interfaces[J]. Materials Science and Engineering A, 2001, 308(1): 53~59.
- [3] 段辉平, 李树杰, 刘登科, 等. SiC 陶瓷与 GH128 镍基高温合金反应连接研究[J]. 航空学报, 2000, 21(增刊 4): s72~s75.

试验结果表明, 采用该模型计算的数据进行切割下料, 支管能全接触安装于主管上, 而且装配角度与相交两管的设计角度相等, 实现了准确装配。

以该理论为基础编制的软件已应用于大型海洋钻井平台建造中。结果表明, 它的应用大大提高了劳动生产率, 取得了较好的经济效益。

4 结 论

(1) 建立了相交双管焊接装配时, 沿径向切割的支管与非切割的主管密闭准确安装的数学模型。导出了相交双管装配接触线的计算解析式。

(2) 给出了相交双管相贯线上局部二面角的计算公式。

(3) 依据数学模型所计算的结果可用于工程实际中相交双管的焊接装配。

参考文献:

- [1] 虞维明, 周岳银, 陈秀妹. 海洋平台的建造与维修[M]. 北京: 海洋出版社, 1992.
- [2] 孔祥鼎, 夏炳仁. 海洋平台建造工艺[M]. 北京: 人民交通出版社, 1993.
- [3] 李小刚. 大型管道相贯线焊接坡口数据化开发研究报告[R]. 大连: 大连铁道学院焊接教研室, 2002.

作者简介: 李小刚, 男, 1966 年 2 月出生, 工学博士, 副教授。主要从事喷涂材料、焊接材料、结构计算及焊接应用软件等的研究。发表论文 10 篇。

Email: kg75@online.ln.cn

- [4] Martinelli A E, Drew R A L. Microstructure and mechanical strength of diffusion-bonded silicon nitride-molybdenum joints[J]. Journal of the European Ceramic Society, 1999, 19(12): 2173~2181.

作者简介: 杨敏, 女, 1967 年出生, 讲师, 博士研究生。研究方向为陶瓷与金属的连接、SMT 激光软钎焊过程自动控制及 SMT 焊点可靠性, 发表论文 10 余篇。

Email: miny@sdu.edu.cn