SiC/TiAl 扩散连接接头的界面 结构及连接强度

刘 会杰 冯吉才 钱乙 余 (哈尔滨工业大学现代焊接生产技术国家重点实验室)

摘 要 对常压烧结的 SiC 陶瓷与 TiAl 金属间化合物进行了真空扩散连接。采用扫描电镜、电子探针和 X 射线衍射分析等手段确定了反应产物的种类和接头的界面结构,并用拉剪试验评价了接头的连接强度。研究结果表明, SiC 与 TiAl 扩散连接中生成了 TiAl₂、TiC 和 Ti₃Si₃Cx 三种新相,接头的界面结构为 SiC/TiC/(TiC+Ti₅Si₃Cx)/(TiAl₂+TiAl)/TiAl。在 1573 K 和 1.8 ks 的连接条件下,接头室温剪切强度达到 240MPa,高温(973K)剪切强度达到 230 MPa。

关键词: SiC TiAl 扩散连接 界面结构 接头强度

0 序 言

SiC 陶瓷具有优异的耐高温、抗腐蚀和化学稳定性, 是一种很有发展前途的结构材料, 可望在 航空、航天、汽车和化工等领域获得广泛应用。然而, 由于其脆性较大且难于加工成形, 因而实际应 用时常常需要将陶瓷与金属连接起来, 以充分发挥它们各自的优良性能。但陶瓷与金属在物理和 化学性质方面存在很大差异, 难于采用常规的熔焊方法实现连接, 目前广泛采用的是扩散连接和钎 焊¹¹。钎焊所面临的问题是如何改善钎料对母材的润湿性和提高接头的高温强度和高温稳定性。 扩散连接被认为是陶瓷与金属连接的较佳方法, 但在高温和加压条件下, 陶瓷与金属之间会发生界 面反应, 生成各种化合物。这些化合物的种类、形态、厚度及分布情况直接影响接头的性能。因此, 为提高陶瓷与金属扩散连接接头的性能, 有必要对陶瓷与金属的界面反应、界面结构及生成相的成 长规律进行深入研究。目前, 在陶瓷与金属扩散连接研究中, 采用的金属主要为纯金属, 如 Ti^[2]、 Ta^[3]、Nb^[4]、Cr^[5]、Zr^[4]和 Mo^[3]等, 而对于陶瓷与金属间化合物的连接还鲜见报道。因此, 本文以具 有航天应用背景的 SiC 陶瓷与 TiAl 金属间化合物的连接为对象, 研究二者在扩散连接过程中所产 生的界面结构及其对接头强度的影响, 是具有学术和应用价值的。同时, 对此进行深入研究, 对于 发展 SiC 增强的 TiAl 基复合材料也具有重要的指导作用。

1 试验材料和方法

1.1 试验材料

SiC 陶瓷为日本京陶瓷公司生产的常压烧结棒材,其中含有 2%~3%的 Al₂O₃ 烧结剂。TiAl 金属间化合物为精密热加工国防科技重点实验室提供的棒状铸件,其中 Al 的含量为 53%。

采用金刚石砂轮片将 SiC 棒切成柱块(直径 6 mm,高 4 mm),并用金刚石研磨膏将柱块的待接 表面抛光。用电火花切割机将 TiAl 棒切成薄片(直径 10 mm,厚 1 mm),并用砂纸进行抛光。

^{*} 哈工大校管基金、国防科技预研基金和焊接国家重点实验室基金资助项目。

1.2 扩散连接

将试件的待接表面用丙酮擦洗干净,再用清水冲洗并风干。由下至上按照 SiC→TiAl→SiC 的 顺序将试件组装好,放入扩散焊机(Centorr 6—1650—15T)的真空室中。同时,在上下两个 SiC 的不 连接表面上要各放一片云母,以防止 SiC 与加压棒连接在一起。

采用电阻辐射加热方式进行扩散连接,具体连接工艺参数为:真空度 $V=6.6\times10^{-3}$ Pa,连接压力 P=35MPa,连接温度 T=1573K,连接时间 $t=1.8\sim28.8$ ks。

1.3 测试分析

将 SiC/TiAl 接头用 102 胶镶好,用金刚石砂轮片沿 SiC 的轴截面切开,用金刚石研磨膏进行表面抛光,并用清水冲洗并风干,最后形成分析试件。其中,用于扫描电镜分析的试件还要进行镀金 处理。

利用扫描电镜(S-750)确定界面生成相的形态和尺寸;通过 X 射线衍射仪(JDX-3530M)确定 界面生成相的种类和晶格常数;利用电子探针显微分析仪(JXA-8600)确定生成相的成分。

由于接头的尺寸较小,因而采用拉剪试验评价接头的强度。将待测接头放入特制的夹具内,在 电子万能试验机(Inston 1186)上进行拉剪测试,并用接头破坏时所施加的力除以接头的有效截面 积来计算接头的剪切强度。同时,借助电子探针成分分析(EPMA)和 X 射线衍射物相分析(XRD)来 判断接头的断裂位置。

2 试验结果与分析

2.1 界面结构

图 1 是 SiC/TiAl 扩散连接接头界面结构的背散射电子像。可以看出,在 SiC 与 TiAl 之间,明显 出现了三个反应层。为分析方便,称靠近 SiC 的一层为 *A* 层,中间的一层为 *B* 层,靠近 TiAl 的一层 为 *C* 层。

为进一步确定这三个反应层的相组 成,采用了逐层剥离并进行 X 射线衍射分 析方法,所得结果如图 2 所示。由图可 知,在 SiC 与 TiAl 扩散连接过程中,共生 成三种新相,即体心正方晶格的 TiAl₂、面 心立方晶格的 TiC 和六方晶格的 TisSi3Cx (x≤1)。

在图 2 中, 逐层剥离并分析是从 SiC 侧开始的, 亦即按 $A ext{ 层} ext{ B} ext{ 层} an C ext{ 层} 的顺$ $序进行的。由于 <math>A ext{ 层} an B ext{ 层} at <math>B ext{ }$,且 $X ext{ }$ 射线具有一定的穿透深度, 因而在 $A ext{ }$ 时线具有一定的穿透深度, 因而在 $A ext{ }$ 官中 检测到的相可能含有 $B ext{ }$ 层中的相, 甚至 含有 $C ext{ }$ 层中的相。同样, 在 $B ext{ }$ 层中 创相, 可能含有 $C ext{ }$ 层中的相。因此, 在 确定 $A ext{ }$ 层和 $B ext{ }$ 医的相组成时, 还必须结 合各层的化学成分分析结果来综合判断。



图 1 SiC/ TiAI 扩散连接接头界面结构的背散电子像 T=1573K, t= 14.4 ks

到的相,可能含有 C 层中的相。因此,在 Fig. 1 Backscattered electron image of cross-section of SiC/ TiAl 确定 4 尼和 P 尼的相组成时 还必须结 joint diffusion-diffusion-bonded at 1573 K for 14.4ks

表1是用电子探针显微分析得到的 各反应层的化学成分。综合分析各层的 X射线衍射类型(图 2)和各层的化学成 分(表 1)可以断定, A 层是 TiC 层, B 层 是 Ti₅Si₃C_X 层, C 层是 TiAl 与 TiAl₂ 的合 层。此外,在 B 层中还分布着一定数量 的粒状相(图 1),通过对该相成分的定 量分析(44.5Ti - 55.2C - 0.2Si - 0. 1Alat%)可知,该相为含碳量较高的 TiC。因此, B 层实际上是 Ti₅Si₃C_X 与 TiC 的混合层,只不过是 TiC 的数量较少 而已。也正因 B 层中 TiC 的数量少,才 未能在 B 层的X 射线衍射分析中探测 到它的存在(图 2b)。

表1反应层的化学成分(at%)

Table 1 Chemical compositions of

reaction layers(at%)

Layer	Ti	Al	Si	С	Cr
A	44.3	10.2	5.3	40.1	0.1
В	54.2	4.4	28.8	12.3	0.3
С	33.5	62.4	0.8	2.1	1.2

综合上述结果可以认为, SiC/TiAl 扩散连接接头的界面结构是 SiC/TiC/ (TiC+TisSi3Cx)/(TiAl2+TiAl)/TiAl, 而 且这种结构一旦形成, 其次序就不随连 接时间而变化, 只是随着连接时间的增 加, 各反应层的厚度增加, 并在一定时间 之后达到稳定状态。

2.2 接头强度

扩散连接工艺参数直接影响接头的界面结构及应力分布,从而对接头的强度和断裂位置产生 影响。图 3 是 SiC/TiAl 接头室温剪切强度的测试结果。由图可见,在 1573 K 的连接温度下,随连 接时间的增加,接头剪切强度开始时快速降低,而后减缓,并在 28.8 ks 后趋于稳定。在连接时间为 1.8 ks 时,接头剪切强度达到 240 MPa。借助 EPMA 和 XRD 对断口进行分析可知,接头的断裂位置 随连接时间而变化。连接时间为 1.8 ks 时,断裂是在(TiAl+TiAl2)与(Ti₅Si₃Cx+TiC)的界面附近发 生的;而连接时间为 28.8 ks 时,断裂则出现在 TiC 的单相层内。

剪切强度和断裂位置的变化主要与接头的界面结构有关。在所生成的三个反应层中, TiC 层本来是高强度层, 且与 SiC 晶格相容性好, 但当其厚度较大且溶解了一定数量的 Al 原子后, 其强度会降低, 并成为低强度层。当连接时间为 1.8 ks 时, 所形成的 TiC 层很薄(只有 0.58 \mu), 这时接头



的强度取决于(Ti₅Si₃C_X+TiC)层,因而强度较高,且断裂发生在(TiAl+TiAl₂)/(Ti₅Si₃C_X+TiC)界面 附近;当连接时间为 28.8 ks 时,所形成的 TiC 层达到了一定的厚度(2.75 μ m),且其内溶解了较多 的 Al 原子(最高达 16 at %),这时接头的强度由 TiC 层所决定,因而强度较低,且断口出现在 TiC 层 内。

采用室温剪切强度最高(240 MPa)接头的连接工艺参数,再进行扩散连接试验,得到用于短时 高温剪切强度测试的接头,其高温剪切测试结果如图 4 所示。由图可见,随测试温度的增加,接头 强度只是稍有降低。即使在 973 K 的测试温度下,接头强度仍维持在 230 MPa 以上。



SiC/TiAl 接头的高温剪切强度与室温剪切强度相差较小,这可从两个方面来解释。一方面,测 试温度的增加使接头中各反应层本身的强度有所降低;但另一方面,测试温度的增加反而使接头中 各个层间的热胀差异减小,于是导致接头中的残余热应力降低,促使接头强度提高。这两个方面的 综合作用,降低了接头剪切强度对测试温度的敏感性。

3 结 论

(1) 在 SiC 与 TiAl 扩散连接中, 共生成三种新相, 分别为体心正方晶格的 TiAl₂、面心立方晶格的 TiC 和六方晶格的 Ti₅Si₂Cx。

(2) SiC/TiAl 扩散连接接头的界面结构为SiC/TiC/(TiC+Ti₅Si₃C_x)/(TiAl₂+TiAl)/TiAl,并且这种结构次序不随连接时间的增加而改变,只是各反应层的厚度随连接时间的增加而增加。

(3) 在 1573 K 和 1.8~28.8 ks 的连接条件下,接头室温剪切强度随连接时间的增加而降低,并 在 28.8 ks 时达到稳定值。连接时间为 1.8 ks 时,接头室温剪切强度达到 240 MPa。

(4) SiC/TiA1扩散连接接头的高温剪切强度对测试温度并不敏感,在 973 K 时仍能达到 230 MPa,这主要是测试温度的升高使接头的残余热应力降低所致。

参考文献

- 1 Nakahashi M. Interfacial reactions between ceramics and metals. Weld. Int., 1996, 10 (10):765~770.
- 2 Naka M, et al. Phase reaction and diffusion path at the SiC/Ti system. Metall. Mater. Trans. 1997, 28A: 1385 ~ 1390.
- 3 Feng J C, et al. Phase formation and diffusion path of SiC/Ta/SiC joint. J. Mater. Sci. Lett., 1997, 16: 1116~1117.
- 4 冯吉才 等. SiC/Nb/SiC 扩散连接接头的界面构造及接合强度. 焊接学报, 1997, 18 (2): 86~90.
- 5 冯吉才 等. SiC/Cr 接合 层の构造と破断强度. 日本金属学会志, 1997, 61 (7): 636~642.
- 6 Fukai T, et al. Bonding and interfacial structures of SiC/Zr joint. Trans. JWRI, 1996, 25 (1): 59~62.
- 7 Martinelli A E, et al. Microstructural development during diffusion bonding of α— silicon carbide to molybdenum. Mater. Sci. Eng. 1995, A191: 239 ~ 247.

Interface Structures and Bonding Strength of SiC/ TiAl Joints in Diffusion Bonding

Liu Huijie, Feng Jicai, Qian Yiyu (National Key Laboratory of Advanced Welding Production Technology, Harbin Institute of Technology)

Abstract Diffusion bonding of Pressureless—sintered SiC ceramic to TiAl intermetallic compound was carried out. The kinds of the reaction products and the interface structures of the joints were investigated by SEM, EP-MA and XRD. The bonding strength of the joints was evaluated by tension—shear test. The experimental results showed that the three kinds of new phases, TiAl₂, TiC and TisSisCx, occur during the diffusion bonding of SiC to TiAl and that the interface structures of the joints can be expressed by SiC/TiC/(TiC+Ti₅Si₃C_X)/(TiAl₂+TiAl)/TiAl. The shear strength of the joint, which was bonded at 1573 K for 1.8 ks, is up to 240 MPa at room temperature and 230 MPa at the test temperature of 973 K. **Key words** SiC, TiAl, diffusion bonding, interface structure, bonding strength

作者简介 刘会杰, 男, 1962年11月生。工学硕士, 副研究员。从事异种材料的连接技术、焊接过 程的自动控制和弧焊设备的研制开发等工作。发表论文40余篇, 参编教材两本, 获实用新型专利 一项、部级科技进步奖两项和市级科技进步奖一项。