

粉末粒度对液膜溶解扩散连接特性的影响

徐锦锋¹, 翟秋亚¹, 杨宏城¹, 钱翰城²

(1. 西安理工大学 材料学院, 西安 710048; 2. 重庆大学 机械二系, 重庆 630044)

摘 要: 以铜基合金粉末为焊材, 对 ZCuBe2.5 合金进行了液膜溶解扩散连接。用铜基合金粉末所获得的焊缝组织由均匀细小的 α -Cu 等轴晶和晶间金属间化合物组成。界面母材仍保持其原始粗大的 α -Cu 树枝晶和晶间 γ 包晶相组织形貌。焊缝与母材结合良好, 通过原子互扩散形成了厚度约 $130 \sim 160 \mu\text{m}$ 的过渡固溶体结合界面。随着粉末粒度的减小, 焊缝中等轴晶尺寸逐渐减小, 焊缝组织得到明显的细化; 形成的扩散过渡层厚度减小, 组织更加致密, 接头抗拉强度增大; 热影响区变窄, 硬度分布更趋合理。扩散连接过程中温度梯度的存在可使液膜溶解扩散焊在很短的时间内实现高强度连接。

关键词: 液膜溶解扩散焊; 铜基粉末; 粒度; 组织与性能

中图分类号: TG457.13 文献标识码: A 文章编号: 0253-360X(2004)03-101-04



徐锦锋

0 序 言

扩散焊是一种通过原子互扩散而将分离材料连为一体的固态连接方法, 特别适合于金属、金属基复合材料的连接^[1~9]。近年来, 该法在 Ti/Al^[3]、Al 合金^[4]及金属基复合材料^[2, 5, 6]的连接方面获得巨大的成功。上世纪末, Assadi 和 Shirzadi 在瞬态液相扩散焊(TLP)^[7]的基础上提出了温度梯度瞬态液相扩散焊(TG-TLP)^[8, 9], 拓宽和提高了 TLP 扩散焊的工艺范围和水平。液膜溶解扩散焊(LFS)是集喷焊与 TG-TLP 扩散焊优点于一体的母材非熔化型焊接方法^[10]。在钢铁材料和铜合金制件的连接及缺陷修复等领域应用日趋广泛。然而, 有关粉末粒度对连接区组织和性能的影响的研究尚不多见。文中实验研究了粉末粒度对 ZCuBe2.5 合金 LFS 扩散连接接头组织和性能的影响, 并对界面原子的互扩散行为作了进一步理论分析。

1 试验方法

1.1 连接材料

焊接材料为自制铜基合金粉末, 其化学成分(质量分数, %, 下同)为: Fe 14.0~16.0, Sn 6.0~8.0, P 0.2~0.4, Sb 适量, 余量为 Cu。粉末呈不规则椭球状, 表面十分光滑, 长宽比约 1~4, 其

颗粒形貌如图 1a 示。较小的尺寸和光滑的表面使合金粉末在焊接喷敷过程中具有良好的流动性。XRD 分析结果表明, Cu 基合金粉末的凝固组织由 α -Cu 固溶体和 $\text{Cu}_{5.6}\text{Sn}$ 金属间化合物组成。

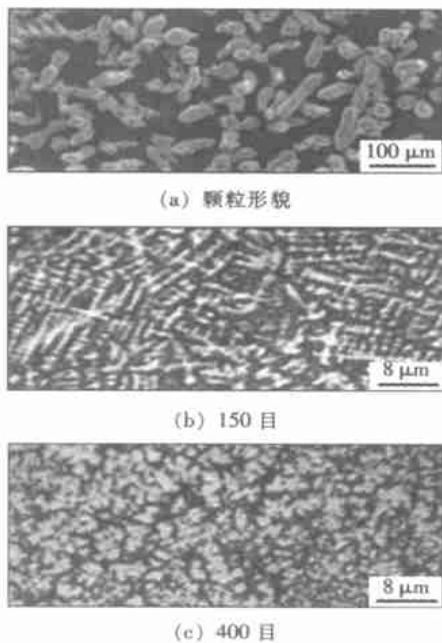


图 1 粉末形貌及凝固组织

Fig. 1 Morphology and solidification microstructure of powder

合金粉末为低维材料, 其在成形过程中冷却速率大, 具有典型的快速凝固组织特征。图 1b、c 分别

为粗粉和细粉末凝固组织。图中，浅灰色区域为 α -Cu 相，以均匀细小的等轴晶为特征，处于 α -Cu 枝晶间隙中的暗灰色区域为 α -Cu+Cu_{5.6}Sn 化合物相。随着粉末粒度(尺寸)的减小，晶粒尺寸显著减小，组织得以细化。初生 α -Cu 中固溶度的扩展及晶粒的显著细化使合金粉材处于较高的能量状态，这有利于降低粉材的熔点，提高液膜的流动性及其与母材界面的润湿性，同时，降低扩散连接时的能量输入，避免界面母材的高温氧化和焊件变形，从而在较短的时间内获得优良的连接接头。试验过程中合金粉末粒度取 150 目、275 目和 400 目三种水平，以便于对比分析。

1.2 连接方法

用氧乙炔火焰做热源，氧气压力：0.7~0.9 MPa，乙炔压力：0.05~0.08 MPa。在 13 mm×13 mm×130 mm 的 ZCuBe2.5 试样中部沿垂直于试样的长度方向打磨出宽 10 mm、深 10 mm 的 U 型坡口。用 Spray-1/H 喷焊炬在洁净的坡口表面进行液膜溶解扩散连接。ZCuBe2.5 合金化学成分为(质量分数，%)：Co 0.2~0.4，Fe<0.1，Cr<0.1，Si 0.81.2，Ni 0.2~0.5，Be 2.4~2.6，余为 Cu。按静镜面状液膜状态控制喷熔温度¹⁹。将焊好的试样加工成直径 ϕ 8 mm 单肩力学性能试棒，测试接头强度和硬度分布。按标准金相技术制取金相试样，用 Newphet-1 光学显微镜和 4AMRAY-1000B 型扫描电镜观察焊材和连接接头组织，用能谱仪(EDS)和 D/MAX-1200 型 X 射线衍射仪(XRD)分析微区化学成分及相结构。

2 连接接头组织与性能

2.1 焊缝的组织特征

不同粒度的 Cu 基粉材所形成的焊缝组织如图 2 所示。图 2a、b 对应的粉末粒度分别为 150 目和 400 目。从图中可知，焊缝组织由均匀细小的白色的 α -Cu 等轴晶和分布于晶间的深灰色 Cu_{5.6}Sn 相组成。随着粉末粒度(尺寸)的减小，焊缝中晶粒尺寸逐渐减小，焊缝组织得到明显的细化。如图 3 示。

XRD 衍射分析发现，焊缝金属的相结构与焊材基本相同，但焊缝中的金属间化合物含量明显高于焊材粉末。这主要与焊缝冷速相对较低有关。

2.2 结合界面的组织特征

图 4 为焊缝/母材结合界面组织。焊缝与母材结合良好，形成了一定厚度的原子扩散过渡层。在扩散过渡层中，焊缝金属以均匀细小的等轴晶为特

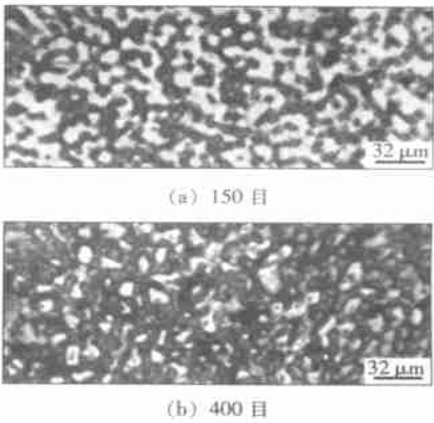


图 2 焊缝组织随粉末尺寸的变化
Fig. 2 Weld microstructure versus powder size

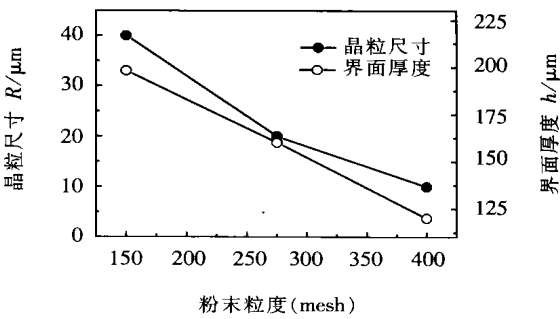


图 3 α -Cu 晶粒尺寸和界面厚度随粉末粒度的变化
Fig. 3 Grain size of α -Cu and interface thickness versus mesh size of powder

征，母材金属仍保持其原始的组织形貌，由粗大的 α -Cu 树枝晶加晶间分布的 γ 相组成。所不同的是，部分晶臂发生熔断，晶界钝化，晶粒尺度也有所减小。对比图 4a、图 4b 可知，随焊材颗粒的细化，形成的扩散过渡结合层组织更加致密，扩散过渡层厚度减小，由图 4a 的 160 μ m 减小到图 4b 的 130 μ m。

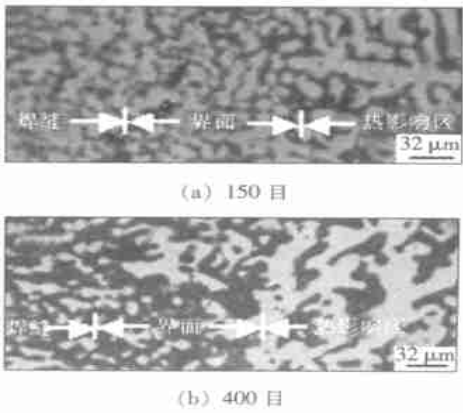


图 4 界面组织特征
Fig. 4 Characteristic of interface microstructure

2.3 接头的性能特点

粉末粒度对接头强度的影响如图 5 所示。可见,随粉末颗粒的减小,接头的抗拉强度增大,接头硬度分布趋于合理,如图 6 所示。在结合界面上偏向母材一侧约 0.08~0.1 mm 处存在一硬度峰值。对比图中三条硬度曲线发现,随粉末粒度的减小,焊缝硬度有所增高,热影响区变窄,峰值硬度有一定的降低。这主要与界面原子互扩散引起的固溶强化、细粉末带来的组织细化以及焊接热循环造成的热影响区晶粒过热粗化有关。

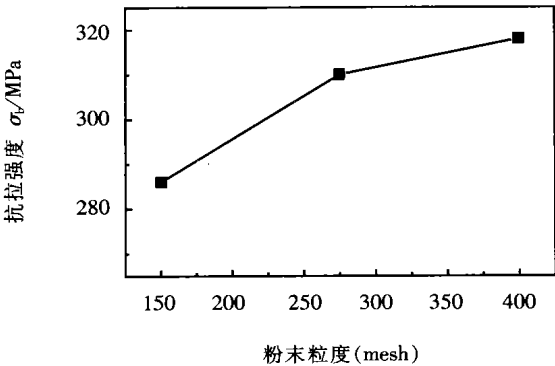


图 5 接头强度随粉末粒度的变化

Fig. 5 Joint strengths versus size of powder

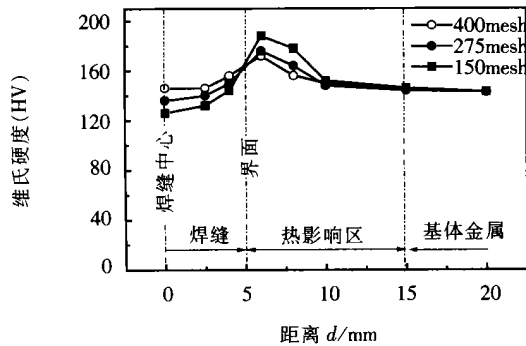


图 6 接头硬度分布

Fig. 6 Distribution of hardness in joint

3 界面原子的互扩散行为

3.1 界面原子的互扩散

液膜溶解扩散焊结合界面的 EDS 分析结果如图 7 示。不难看出, Cu 原子由母材向焊缝一侧扩散, 而 Fe 和 Sn 原子由焊缝向母材一侧扩散。Fe 原子扩散梯度较大, Cu、Sn 原子扩散梯度次之。因焊材和母材中 Co、Si 和 Ni 等合金元素含量较低, 界面处浓度起伏不大, 原子扩散不显著, 曲线比较平直。由于焊缝和母材金属均为铜基合金, 且两者所含合金元素总量均不超过 25%, 再加上 Cu、Fe、Sn 原子

半径相差不大, 原子置换性好, 扩散激活能小, 因此, 很容易实现液固相之间的瞬态溶解扩散连接。

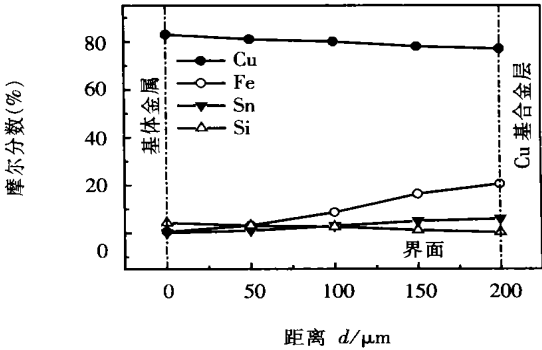


图 7 界面原子互扩散

Fig. 7 Mutual diffusion of atoms at interface

3.2 粉末粒度的影响

TLP 扩散连接中的扩散主要是液相中溶质的扩散^[7]。扩散系数 D 是温度 T 的函数, 可由下式表示

$$D=D_0\exp(-E/RT), \tag{1}$$

式中: D_0 为常数, E 为扩散激活能, R 为气体常数, T 为扩散温度。从式 (1) 可以看出, 随着温度的升高, 扩散系数增大, 界面原子扩散程度增强。粉末愈细小, 表面效应愈显著, 愈容易液化, 在过热度相同的条件下, 连接温度随之降低。因此, 粉末粒度的大小间接的反映了温度对界面扩散行为的影响。界面厚度随粉末粒度的变化如图 3 所示。随粉末粒度的减小, 焊接温度降低, 界面厚度明显减小。

3.3 温度梯度的影响

与 TLP^[7] 相比较, LFS 过程具有较高的温度梯度, 并且焊接温度场以焊缝中心为几何对称。在理论分析时, 可采用坐标原点接头中心标注法, 仅考虑单侧扩散即可求解界面扩散的特性值。假定温度场不随时间而变, 那么, 在高的温度梯度下, 固/液界面原子扩散控制方程为^[9]

$$\frac{G}{2m}x^2+(C_0-C_0)x+D\frac{G}{m}t-(C_0-C_0)\varphi_0-\frac{G}{2m}\varphi_0^2=0 \tag{2}$$

式中: G 为温度梯度; m 为液相线斜率; C_0 为母材的溶质浓度; C_{10} 为焊缝中心液相的平衡浓度; D 为溶质扩散系数; x 为界面离开坐标原点的距离; t 为扩散时间; φ_0 为界面位置 x 的初值。据此, 可计算出双组分单相固溶体扩散界面的迁移速度、位置和扩散时间。然而, 焊材和母材均属多元铜基合金, 用之很难进行精确地计算。因其除含 Fe 量较高之外, 其它合金元素含量均较低。为使问题简化, 计算时仅考虑了 Fe 在 Cu 中的扩散。上式中各热物性参数为, $D=3.0\times 10^{-5}\text{ cm}^2/\text{s}$, $m=-5\text{ }^\circ\text{C}/\text{质量分数}\%$, $\varphi_0=30\text{ }\mu\text{m}$, $C_0=0.15$, $C_{10}=15$, $G=100\text{ }^\circ\text{C}/\text{cm}$ 。计

算得到的连接时间 t 随温度梯度 G 的变化如图 8 所示。可见, $t-G$ 曲线呈双曲函数关系。随温度梯度的增大, $G < 20\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{cm}^{-1}$ 段为时间陡降区; $20\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{cm} \leq G \leq 60\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ 段为时间下降区; 而 $G > 60\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ 段出现了时间平稳区, 在该区内, 时间随 G 的增加变化不大。亦即, 在 $G \leq 60\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ 范围, 连接时间受温度梯度影响非常明显。说明, 欲获得等同的扩散连接效果, TG-TLP 法比 TLP 法可大大缩短焊接时间。界面厚度 λ 随连接时间 t 和温度梯度 G 的变化如图 9 所示。在温度梯度保持不变的情况

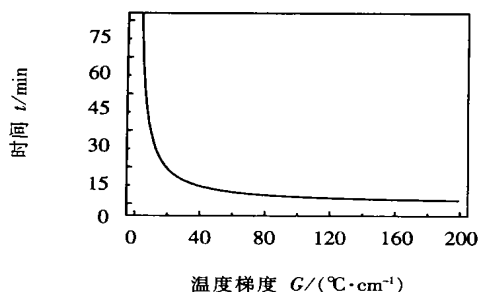


图 8 连接时间与温度梯度之间的关系

Fig. 8 Relationship between bonding time and temperature gradient

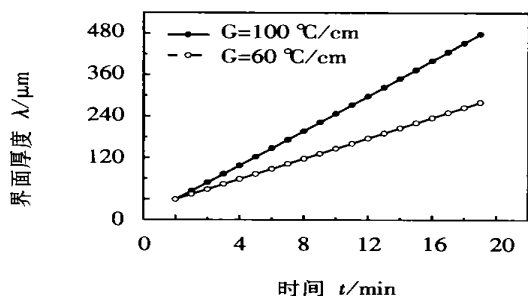


图 9 界面厚度随时间的变化

Fig. 9 Interface thickness versus bonding time

下, 扩散层厚度随连接时间的延长呈线性增大。在相同的连接时间下, 界面厚度随温度梯度的增大呈增大趋势, 而且, 随连接时间延长, 该趋势趋于增强。因此, 温度梯度对连接时间和界面厚度有着显著的影响。尽管减小粉末粒度会引起焊接温度的降低, 从而使连接时间有所延长, 然而, 在实际的液膜溶解扩散连接过程中, 连接界面处的温度梯度往往超过了 $60\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{cm}$, 即只需约 6 min (图 8) 的时间即可达到原子之间的扩散连接。LFS 不仅具有 TLP 扩散焊接特性, 而且具备比 TG-TLP 扩散焊更高的温度梯度, 界面原子的互扩散能力强, 能够在很短的时间内实现高强度连接。

4 结 论

(1) Cu 基粉材液膜溶解扩散焊获得的焊缝组织由均匀细小的 $\alpha\text{-Cu}$ 等轴晶和晶间金属间化合物组成。界面母材仍保持其原始粗大的 $\alpha\text{-Cu}$ 树枝晶和晶间 γ 相组织形态。焊缝与母材结合良好, 通过原子互扩散形成了厚度约 $130 \sim 160\text{ }\mu\text{m}$ 的过渡固溶体结合层。

(2) 粉末粒度对原子扩散行为及接头组织形态具有显著的影响。随着粉末粒度的减小, 焊缝中等轴晶尺寸逐渐减小, 组织得到明显的细化; 形成的扩散过渡层厚度减小, 组织更加致密。

(3) 随粉末粒度的减小, 接头抗拉强度增大, 热影响区变窄, 硬度分布更趋合理。扩散连接过程中温度梯度的存在可使 LFS 扩散焊在很短的时间内实现高强度连接。

参考文献:

- [1] Yilmaz O, Celik H. Electrical and thermal properties of the interface at diffusion-bonded and soldered 304 stainless steel and copper bimetal [J]. Journal of Materials Processing Technology, 2003, 141(1): 67~76.
- [2] Liu Liming, Zhu Meili, Pan Longxiu, et al. Studying of micro-bonding in diffusion welding joint for composite [J]. Materials Science and Engineering, 2001, A315(1-2): 103~107.
- [3] Ren Jiangwei, Li Yajiang, Feng Tao. Microstructure characteristics in the interface zone of Ti/Al diffusion bonding [J]. Materials Letters, 2002, 56(5): 647~652.
- [4] Zuruqi A S, Li H, Dong G. Effects of surface roughness on the diffusion bonding of Al alloy 6061 in air [J]. Materials Science and Engineering, 1999, A270(2): 244~248.
- [5] Shinji Fukumoto, Akio Hirose, Kojiro F, et al. Evaluation of the strength of diffusion bonded joints in continuous fiber reinforced metal matrix composites [J]. Journal of Materials Processing Technology, 1997, 68(2): 184~191.
- [6] Ellis M B D. Joining of aluminium based metal matrix composites [J]. International Materials Reviews, 1996, 41(2): 41~58.
- [7] Cain S R, Wilcox J R, R Venkatraman. A diffusion model for transient liquid phase bonding [J]. Acta Mater, 1997, 45(2): 701~707.
- [8] Assadi H, Shizadi A A, Wallach E R. Transient liquid phase diffusion bonding under a temperature gradient: modeling of the interface morphology [J]. Acta Mater., 2001, 49(1): 31~39.
- [9] Shizadi A A, Wallach E R. Analytical modeling of transient liquid phase (TLP) diffusion bonding when a temperature gradient is imposed [J]. Acta Mater., 1999, 47(13): 3551~3560.
- [10] 翟秋亚, 徐锦锋, 钱翰城. 钢铁材料溶解扩散焊界面组织及性能 [J]. 焊接学报, 2002, 23(5): 84~86.

作者简介: 徐锦锋, 男, 1963 年 2 月出生, 副教授, 博士。主要从事先进材料及其微连接技术方面的研究, 发表论文 30 余篇。

Email: xu-jin-feng@xaut.edu.cn