

电场作用下 SiC 与 Ti 扩散连接界面结构及力学性能

王 清, 李其海, 孙东立, 韩秀丽, 田 倩

(哈尔滨工业大学, 黑龙江 哈尔滨 150001)

摘 要: 对电场作用下 SiC 与 Ti 扩散连接接头界面结构及力学性能进行了分析测试。研究发现, 当金属、陶瓷分别连接电场正、负极时, 电场可促进界面扩散反应层厚度增加, 而电压极性相反时, 促进作用明显减弱; 连接界面发生原子扩散及化学反应, 生成相主要为: Ti_5Si_3 与 TiC, 从 SiC 侧到 Ti 侧界面相结构依次为 SiC/TiC/(Ti_5Si_3 +TiC)/Ti; 性能测试结果表明, 1000 °C/2 h/7.5 MPa 下获得的接头剪切强度为 66.4 MPa, 950 °C/1.5 h/7.5 MPa/400 V 电场作用下扩散连接接头剪切强度为 69.6 MPa, 即在其他连接工艺参数相同情况下, 施加电压可以增大剪切强度, 提高连接效率。

关键词: SiC; Ti; 扩散连接; 电场; 界面结构; 力学性能

中图分类号: TG453^{+.9}

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2016)07-1749-06

在材料的热加工过程中, 电场作为一种重要的物理场, 能加速材料中原子的扩散及空位的迁移, 从而影响材料的组织和性能^[1]。目前, 电场处理技术在热处理和扩散连接等领域都有一定的应用, 并且受到越来越广泛的重视^[2-5]。

扩散连接是陶瓷与金属采用连接方法之一。扩散连接接头具有质量稳定, 高温性能好, 耐腐蚀等优点。但是, 扩散连接对设备要求严格, 需要在保护气氛或真空条件下进行, 连接温度高, 产生的残余应力较大^[6,7]; 扩散连接要求良好的表面加工状态, 连接时间较长, 故生产效率低^[8,9]; 陶瓷与金属连接时其界面是否添加中间层以及中间层种类, 对陶瓷/金属扩散连接界面组织结构及界面强度有很大影响^[10,11]。在电场作用下进行扩散连接, 能够加快界面原子扩散, 促进界面反应, 从而降低连接温度, 缩短连接时间, 提高效率^[12-15]。

1 实 验

本试验所用材料为常压烧结碳化硅陶瓷、工业纯钛和 40 μ m 的钛箔。SiC、Ti 样品尺寸分别为 5 mm×5 mm×3 mm、10 mm×6 mm×3 mm, 其中 5 mm×5 mm、10 mm×6 mm 面为扩散连接面, 连接面分别用金刚石磨盘、砂纸进行打磨, 用 0.5 μ m 的金刚石抛光剂抛光。采用 SiC/Ti 箔/SiC 叠合的方式进行连接以分析电压极性对扩散连接的影响, 电场方向从 SiC 到 Ti, 规定

SiC/Ti 箔界面为电压正极界面, Ti 箔/SiC 界面为电压负极界面; 用 SiC/Ti 箔/Ti 块叠合形式的扩散连接接头进行剪切强度测试, 连接界面相当于电压负极界面。扩散连接工艺如图 1 所示, 连接温度为 950 和 1000 °C, 经一定时间保温后随炉冷却; 外加直流电压为 0~500 V, 扩散过程中施加不同电压值, 并保持该值恒定。

利用场发射扫描电子显微镜 Quanta 200FEG 观察分析扩散连接界面结构; 采用 D/max-rb 型 X 射线衍射仪进行界面相分析; 用 FIB 制样法制取透射电镜分析试样, 由 CM12 透射电子显微镜进行组织结构分析; 剪切强度测试利用自制夹具, 在万能试验机上完成。其中, 剪切强度值为 3~4 个试样的平均值, 反应层厚度采用 Photoshop 软件中测量工具多次测量, 取其平均值。

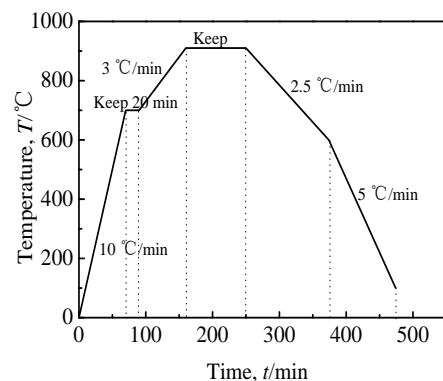


图 1 扩散连接工艺示意图

Fig.1 Schematic diagram of the diffusion bonding process

收稿日期: 2015-07-21

基金项目: 国家自然科学基金 (51172051)

作者简介: 王 清, 男, 1956 年生, 博士, 副教授, 哈尔滨工业大学材料科学与工程学院, 黑龙江 哈尔滨 150001, 电话: 0451-86413922, E-mail: wqhit@hit.edu.cn

2 结果与分析

2.1 扩散连接接头显微组织与界面结构

2.1.1 连接界面形貌

图 2 为 SiC/Ti/SiC 扩散连接接头的显微组织和能谱分析结果。表 1 为正负极界面反应层厚度的测量值。分析可知，从界面反应层厚度来看，施加正向电场（即电场方向由 Ti 指向 SiC）能够促进界面原子扩散及反应进行；相对正电场而言，反向电场（即电场方向由 SiC 指向 Ti）对界面元素扩散的促进作用明显减弱，并且随着外加电压的增大，正、负极电场的促进作用出现显著差异。正向电场对扩散连接具有明显促进作用，能够通过施加电压来提高连接效率。

2.1.2 界面反应相及界面结构

为确定界面反应产生新相的种类，对 1000 °C/2 h/7.5 MPa/200 V 下扩散连接接头右侧界面（电场方向由 Ti 指向 SiC 的界面）反应层逐层剥离并进行 XRD 分析。图 3 为 1000 °C/2 h/7.5 MPa 条件下无电场和施加 200 V 电压时扩散连接接头反应层的 XRD 图谱。分析结果表明，SiC 侧界面主要为 SiC 和 TiC 相，即 SiC 侧界面处生成相为 TiC。靠近 Ti 侧界面区的物相分析表明，生成相主要为 TiC 及 Ti_5Si_3 （见图 3c）。

综合上述分析结果初步确定，SiC/Ti 扩散连接接头界面相结构为 SiC/TiC/(Ti_5Si_3 +TiC)/Ti，此结果与 M. Naka 研究结果基本一致^[16]。

为了更深入地分析 SiC/Ti 界面微观结构，采用 FIB 制样技术，从 1000 °C/1 h/7.5 MPa/300 V 工艺下的 SiC/Ti 扩散连接接头界面上截取样品，对其进行 TEM 观察分析。

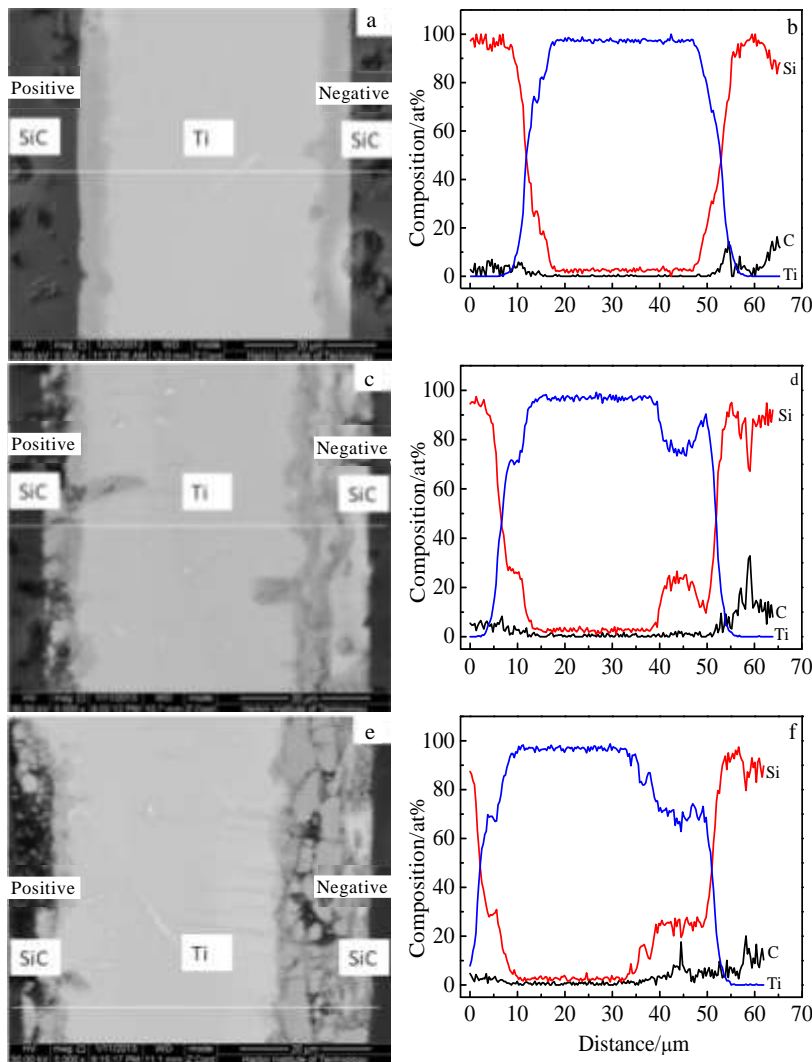


图 2 1000 °C/2 h/7.5 MPa 工艺下施加不同电压时 SiC/Ti/SiC 接头 SEM 照片及 EDS 元素线扫描

Fig.2 SEM images (a, c, e) and EDS element line scanning (b, d, f) of the SiC/Ti/SiC joint under 1000 °C/2 h/7.5 MPa with

different electric field applied: (a, b) 0 V, (c, d) 200 V, and (e, f) 300 V

表 1 1000 °C/2 h/7.5 MPa 工艺下施加不同电压时 SiC/Ti/SiC 接头反应层厚度

Table 1 Thickness of reaction layer of SiC/Ti/SiC joint welded at the condition of 1000 °C/2 h/7.5 MPa at different electric voltages

Voltage/V	Anode layer thickness/ μm	Cathode layer thickness/ μm
0	4.517	4.614
200	6.619	11.857
300	7.526	15.33

图 4 为 SiC/Ti 连接接头界面形貌。从图中可以明显观察到界面较平直，无孔隙、裂纹等缺陷，说明连接质量较好。根据图中所示界面形貌差异将界面划分成如图所示的 A、B、C、D 区。A 区的晶粒最大，D 区次之，B 区最小。对各区域进行形貌和衍射花样分析，结果如图 5、图 6 所示。图 5b 为图 4 中 D 区的放大形貌，经过衍射斑点的标定可知：图 4 中 A 区为基

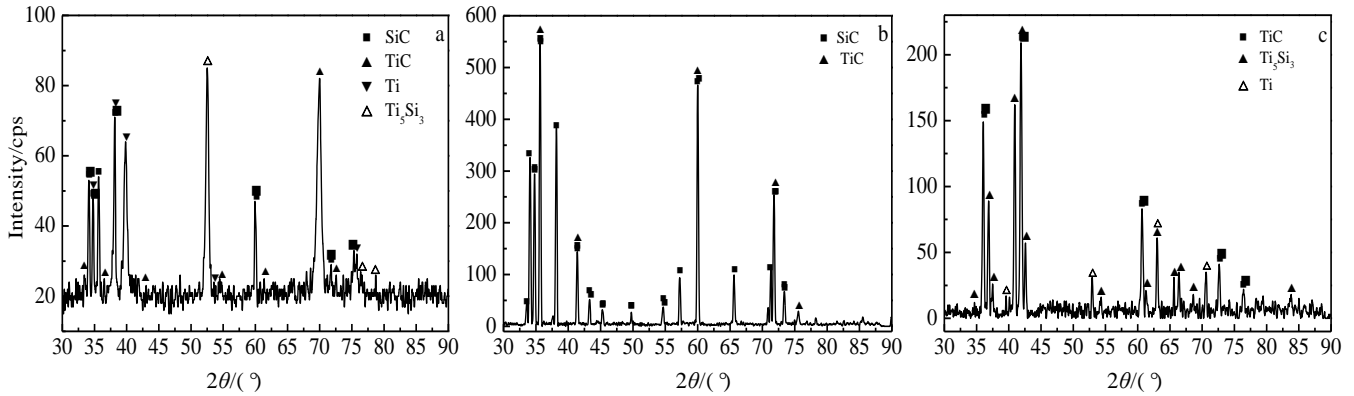


图 3 1000 °C/2 h/7.5 MPa 条件下界面 XRD 图谱

Fig.3 XRD patterns of diffusion interface at the condition of 1000 °C/2 h/7.5 MPa: (a) 0 V, Ti side; (b) 200 V, SiC side; (c) 200 V, Ti side

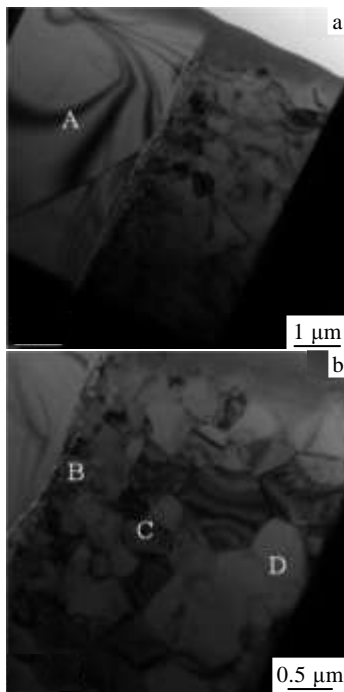


图 4 SiC/Ti 连接界面的 TEM 形貌

Fig.4 TEM images of SiC/Ti bonding interface: (a) morphology of interface and (b) enlarged morphology of the right side of interface

体 SiC，D 区以 Ti 为主。图 6a 和 6b 分别为图 4b 中所示 B 区和 C 区的放大形貌像，图 6c、6d 分别为图 6a、6b 所示晶粒的衍射斑点。通过衍射花样标定可以确认 B、C 区为界面扩散反应层，界面反应生成 TiC 和 Ti_5Si_3 相。B 区的细晶粒层主要为 TiC 相（见图 6a，C 区主要为 Ti_5Si_3 相，即界面反应区的相结构从 SiC 到 Ti 为 SiC/TiC/(TiC+ Ti_5Si_3)/ Ti_5Si_3 /Ti。SiC 陶瓷界面附近的细晶 TiC，是由于在 Ti 的扩散最前端，刚形成的 TiC 还未来得及长大所致。

2.2 电压对 SiC/Ti 接头力学性能的影响

图 7 为连接温度 1000 °C、保温 2 h、压力 7.5 MPa、电压 0~500 V 时，获得的连接接头剪切强度。不施加电压（即电压为 0 V）时，扩散连接接头的剪切强度为 66.4 MPa；施加电压进行扩散连接，接头剪切强度随电压升高而降低，当电压增加到 500 V 时，强度下降到 11.6 MPa。由 XRD 分析可知，施加电压后，界面处生成相含量的强度信号明显增大，即反应产物增多，TiC 生成量多于不加电压时，各相含量比例发生明显变化，如图 2 所示。由于扩散连接温度过高，并且增大电压对界面原子扩散和界面反应产生促进作用，因此反应剧烈，生成大量脆性相，从而使接头强度降低。

在温度 950 °C、保温 1.5 h、压力 7.5 MPa、电压区间为 200~400 V 时，扩散连接接头的剪切强度随电

压的变化曲线如图 8 所示。剪切强度随电压值的增大 而逐渐增大, 从 54.1 MPa 升高到 69.6 MPa; 继续提高

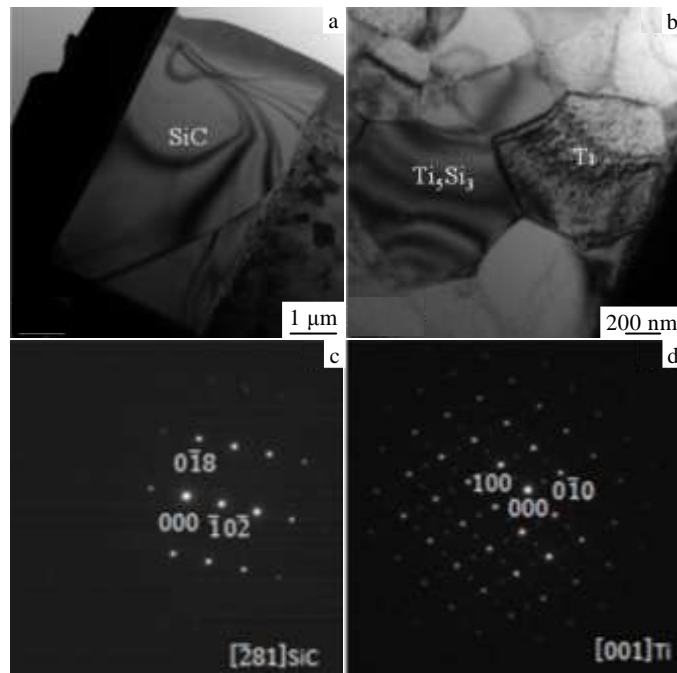


图 5 SiC/Ti 连接接头组织结构的 TEM 照片

Fig.5 TME images of the SiC/Ti diffusion bonding joint: (a, c) morphology and diffraction pattern of SiC in zone A of Fig.4a and (b, d) morphology and diffraction pattern of Ti in zone D of Fig.4b

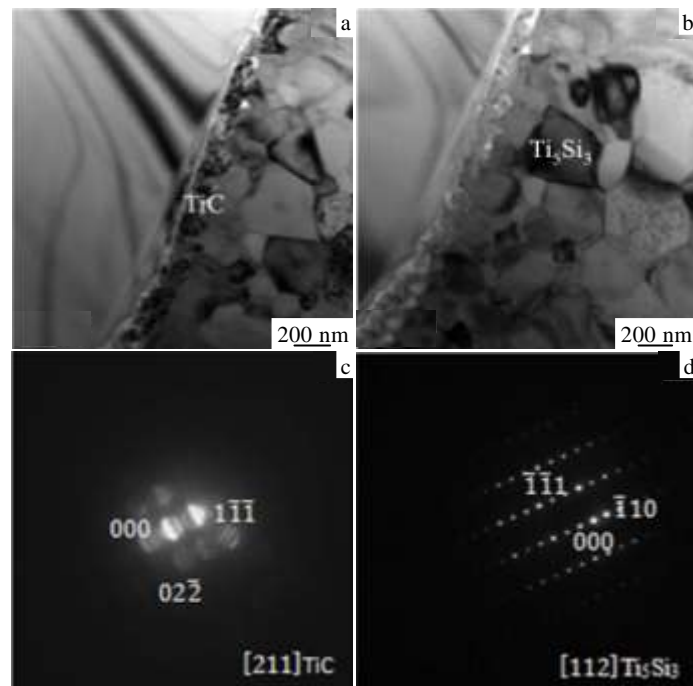


图 6 SiC/Ti 连接接头组织结构的 TEM 照片

Fig.6 TME images of the SiC/Ti diffusion bonding joint: (a, c) morphology and diffraction pattern of TiC in zone B of Fig.4b and (b, d) morphology and diffraction pattern of Ti₅Si₃ in zone C of Fig.4b

电压值, 当电压升高到 500 V 时, 接头强度降低, 仅为 48.5 MPa。试验结果表明, 电压对接头负极界面的

剪切强度影响不是单调的, 与连接温度等参数有关。在较高温度(如 1000 °C)时, 接头强度随电压增大而

降低; 在稍低温度下(如 950 °C), 接头强度随电压升高先增大后降低, 存在最大值。

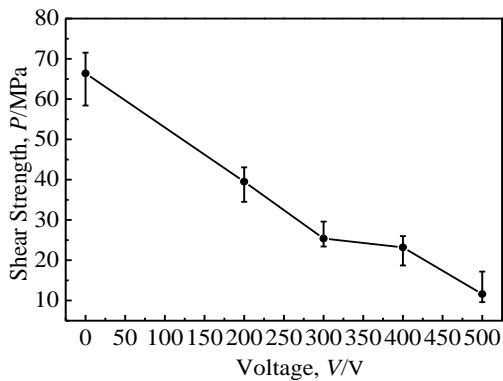


图7 1000 °C/2 h/7.5 MPa 时剪切强度与电压的关系曲线

Fig.7 Relationship curve of shear strength vs voltage in joints bonded at 1000 °C/2 h/7.5 MPa

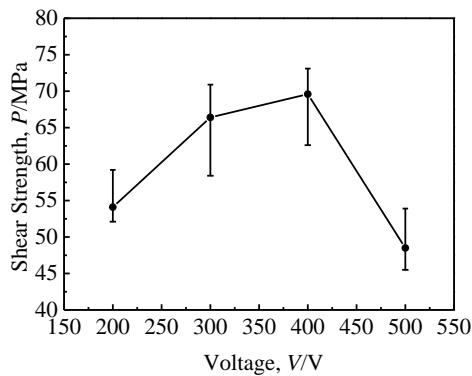


图8 950 °C/1.5 h/7.5 MPa 时剪切强度随电压变化关系曲线

Fig.8 Relationship curve of shear strength vs voltage in joints bonded at 950 °C/1.5 h/7.5 MPa

SiC 与 Ti 扩散连接过程中, 温度、电压等参数之间相互影响, 具有交互作用。1000 °C/2 h/7.5 MPa 工艺下, 不施加电压时接头的剪切强度为 66.4 MPa, 而 950 °C/1.5 h/7.5 MPa 工艺下, 施加 400 V 电压时接头强度达到 69.6 MPa。研究结果证明, 电场作用下扩散连接可以实现在不降低接头强度的前提下, 降低连接温度, 缩短连接时间, 从而提高连接效率。

3 结 论

1) 当金属 Ti 接正极, 陶瓷 SiC 接负极时, 施加电压能显著促进界面反应层厚度增加, 而正负极反接时促进作用明显减弱。

2) SiC 与 Ti 的扩散连接界面处发生原子扩散及化学反应, 反应生成相主要为: TiC 和 Ti_5Si_3 , 界面相结构为 SiC/TiC/(Ti_5Si_3 +TiC)/Ti。

3) 不同连接温度下, 负极电压对 SiC 与 Ti 扩散连接接头的性能影响规律是, 在较高连接温度(1000 °C下), 施加电压促进脆性相的生成, 使接头强度降低; 在连接温度较低时(950 °C), 接头强度随电压的增大先升高后降低。因此, 选择合适的连接参数能够实现在不降低接头性能的前提下, 提高连接效率。

参考文献 References

- [1] Varsanik J S, Bernstein J J. *J Micromech Microeng*[J], 2012, 22: 1
- [2] Cheng Xingde(程兴德), Wang Minli(王敏莉), Zhang Kaijian(张开坚) et al. *Iron Steel Vanadium Titanium*(钢铁钒钛)[J], 2005, 26(3): 37
- [3] Chen L D, Huang M L, Zhou S M. *Journal of Alloys and Compounds*[J], 2010, 504(2): 535
- [4] Kai Xu, Jone Heo. *Journal of Non-Crystalline Solids*[J], 2013, 377: 254
- [5] Conrad H, Di Yang, Becher P. *Materials Science and Engineering A*[J], 2008, 477(2): 358
- [6] Liu Huijie(刘会杰), Feng Jicai(冯吉才), Li Guang(李 广) et al. *Welding & Joining*(焊接)[J], 2000 (9): 7
- [7] Smith D S, Smith A. *Journal of Materials Science Letters*[J], 1986 (5): 349
- [8] Huang Li(黄 利), Sheng Guangmin(盛光敏), Luo Jun(罗 军) et al. *Journal of Central South University, Science and Technology*(中南大学学报, 自然科学版)[J], 2012, 43(3): 864
- [9] Li Haixin(李海新), Lin Tiesong(林铁松), He Peng(何 鹏) et al. *Transactions of the China Welding Institution*(焊接学报)[J], 2012(6): 43
- [10] Zhang Jian(张 建), Luo Guoqiang(罗国强), Li Meijuan(李美娟) et al. *Materials Science and Technology*(材料科学与工程)[J], 2012, 20(4): 61
- [11] Meng Xianlin(孟宪林), Hu Rui(胡 锐), Tang Bin(唐 斌) et al. *Materials Science and Technology*(材料科学与工程)[J], 2013, 21(3): 41
- [12] Bertolino N, Garay J, Ansel-Tanmburini U et al. *Philosophical Magazine*[J], 2002, 82(8): 969
- [13] Tang Wenming(汤文明), Zheng Zhixiang(郑治祥), Ding Houfu(丁厚福) et al. *Journal of the Chinese Ceramic Society*(硅酸盐学报)[J], 2003, 31(3): 283
- [14] Huang Wanqun(黄万群). *Thesis for Doctorate*(博士论文)[D]. Jinan: Shandong University, 2012
- [15] Wang Zhongjin, Song Hui. *Journal of Alloys and Compounds* [J], 2009, 470: 522

[16] Naka M, Feng J C, Schuster J C. *Metallurgical and Materials*

Transactions A[J], 1997, 28A: 1385

Microstructure and Mechanical Properties of SiC/Ti Diffusion Bonding Joints under Electric Field

Wang Qing, Li Qihai, Sun Dongli, Han Xiuli, Tian Qian

(Harbin Institute of Technology, Harbin 150001, China)

Abstract: The diffusion bonding of SiC to Ti under electric field was carried out, and the microstructure and mechanical properties of SiC/Ti diffusion bonding joints were investigated. Results show that when the metal and ceramic connect the positive and negative of the electric field, respectively, the electric field will increase the thickness of interface diffusion layer, but reversed connection can weaken the promotion of interface diffusion layer thickening significantly. Atom diffusion and reactions occur at the SiC/Ti interface, new phases generated at the interface are mainly Ti_5Si_3 and TiC, and the interface structure from SiC to Ti is SiC/TiC/(Ti_5Si_3 +TiC)/Ti. Mechanical properties testing results show that the shear strength of the joint at 1000 °C/2 h/7.5 MPa is 66.4 MPa, but the shear strength of the joint at 950 °C /1.5 h/7.5 MPa/400 V is 69.6 MPa. Therefore, applying voltage during the bonding process can increase the shear strength and improve the efficiency of the bonding.

Key words: SiC; Ti; diffusion bonding; electric field; interface microstructure; mechanical properties

Corresponding author: Sun Dongli, Ph. D., Professor, Harbin Institute of Technology, Harbin 150001, P. R. China, Tel: 0086-451-86418635, E-mail: sundl_54321@163.com