

有机溶剂保护对 Al/Ni 扩散连接的影响规律研究

李 瑞, 曹 健, 王义峰, 代翔宇, 冯吉才

(哈尔滨工业大学 先进焊接与连接国家重点实验室, 黑龙江 哈尔滨 150001)

摘 要: 采用有机溶剂保护实现了纯铝和纯镍的扩散连接。利用扫描电子显微镜、能谱分析以及 X 射线衍射等分析手段, 确定了 Al/Ni 扩散连接接头典型的界面结构为 Al/Al₃Ni₂/Ni。在扩散连接过程中利用有机溶剂防止铝表面发生二次氧化, 相比直接扩散连接可得到更好的焊接质量。研究了连接温度对 Al/Ni 接头界面结构的影响规律, 随着连接温度的升高各反应层厚度逐渐增加。当连接温度为 490 °C, 连接时间为 60 min, 连接压力为 2 MPa 时, 接头抗剪强度达到最大值, 为 17.83 MPa, 比该工艺下直接扩散连接得到的焊接接头强度提高了约 55%。

关键词: 扩散连接; 表面保护; 界面结构; 力学性能

中图分类号: TG454

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2017)12-3849-04

铝及铝合金具有比强度高、比刚度大, 阻尼减震性、高导热性、机械加工性好等优越性能, 在汽车制造业、国防和航空航天、容器制造、娱乐和体育器材业等制造领域具有广泛的应用^[1-4]。在工业生产中, 纯镍是一种适用于各种苛刻腐蚀环境的金属材料。极端环境条件下, 镍及镍基合金具有广泛的应用^[5,6]。铝与镍的连接在航空航天、国防建设等领域具有较大的应用需求, 因此实现铝和镍的可靠连接具有重要意义。

目前广泛应用于铝及铝合金的连接方法主要为熔焊、搅拌摩擦焊等去膜效果比较好的焊接技术^[7-10]。而扩散连接工艺简单, 接头质量好, 结构变形小, 可连接大面积接头, 是一种极具实用价值的高质量连接方法。但纯铝表面极易形成一层致密的氧化铝薄膜, 并且氧化铝的物理化学性质稳定, 在扩散连接过程中很难自发分解或溶解于金属中。一般采用提高扩散焊接温度、延长焊接时间或提高焊接压力的方式来克服氧化膜的负作用实现有效的扩散连接, 但较高的温度及较长的焊接时间往往会大幅降低其材料自身的性能, 而较高的压力会导致焊后接头变形较大, 从而不利于获得优良的焊接接头^[11-13]。为了得到优良的连接质量, 避免因实现直接扩散连接而造成的母材性能下降, 本研究采用有机溶剂保护扩散连接方法进行了铝和镍的连接, 优化了扩散连接工艺参数, 从而实现铝与镍的可靠连接。

1 实 验

收稿日期: 2016-12-10

基金项目: 国家自然科学基金 (51275133)

作者简介: 李 瑞, 男, 1991 年生, 硕士, 哈尔滨工业大学先进焊接与连接国家重点实验室, 黑龙江 哈尔滨 150001, 电话: 0451-86418882, E-mail: lrhit@foxmail.com

实验采用的材料分别为纯铝板材 (99.9 at%) 和纯镍板材 (99.5 at%)。根据试验要求, 对纯铝、纯镍板材进行线切割加工, 分别制成 9 mm×12 mm×3 mm 和 8 mm×8 mm×3 mm 尺寸的组织试样。直接扩散连接时纯镍待焊接表面由 80#~1200#水砂逐次打磨, 连接前用丙酮超声清洗, 干燥。纯铝待焊接表面由 80#~1200#水砂逐次打磨, 用 40~60 °C 的 5%~10%NaOH 溶液碱洗 3~7 min, 流动清水冲洗, 接着用 40~60 °C 的 30%HNO₃ 溶液酸洗 1~3 min, 流动清水冲洗, 再用丙酮超声清洗 2 min 后干燥。并放入真空扩散焊设备中进行焊接实验。而有机溶剂保护扩散连接时, 在乙醇中打磨试样, 打磨后的试样转移到特殊的试样卡具中, 图 1 是试样在真空炉中装卡的示意图。实验采用哈尔滨工业大学自行研制的真空扩散焊设备, 设备为真空辐射加热, 工作时真空度为 3×10⁻³ Pa。连接过程中首先以 15 °C/min 的速率分别升至 430~490 °C 内的几个不同的扩散连接温度, 保温 60 min, 随后炉冷至室温。采用扫描电子显微镜 (SEM)、能谱分析 (EDS)、X 射线衍射 (XRD) 观察和分析接头界面结构, 选取同一工艺规范下连接的 3 个试样采用 Instron-5569 型万能试验机测试接头的抗剪强度, 加载速度为 0.5 mm/min。

2 结果与讨论

图 2 所示为直接扩散连接和有机溶剂保护扩散连接得到的接头界面微观结构照片。由图 2a 可以看出,

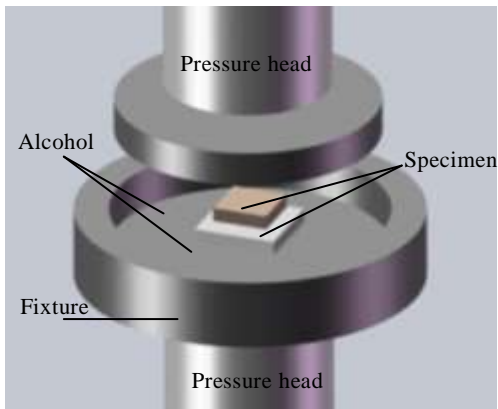


图 1 样品在真空炉中的装卡示意图

Fig.1 Schematic representation of specimen fixation in the vacuum furnace

直接扩散连接得到的连接接头质量较差。界面处产生了 1 层厚度大约为 2 μm 的扩散反应层。反应层上有大量的显微裂纹，局部反应相沿显微裂纹从母材上断裂并呈块状脱落。反应层与铝基体结合界面处较平直，结合紧密无缺陷。反应层与镍基体结合界面处有一定起伏，且存在较多的间隙和孔洞缺陷，结合不紧密。而图 2b 表明有机溶剂保护扩散连接可以获得良好的接头组织，界面上无显微裂纹，整个接头组织致密，无明显缺陷。对比直接扩散连接得到的接头，有机溶剂保护扩散连接接头界面更紧密且没有缺陷。说明针对具有不易去除的氧化铝膜的母材的扩散连接工艺时，有机溶剂保护扩散连接方法能够得到优质的连接接头。这是由于待焊接样品从去膜到开始焊接均在乙醇中进行，整个过程不会接触到空气，避免了焊接过程中铝表面二次氧化的发生。

为了确定接头反应层中相的成分，对接头剪切断裂的断口进行 XRD 分析，XRD 分析结果如图 3 所示。断口处共存在 Al, Ni 以及 Al_3Ni_2 3 种相。其中 Ni 和 Al_3Ni_2 相出现在 Ni 侧，Al 相出现在 Al 侧。这表明断裂发生在 Al_3Ni_2 和 Al 之间，反应层与铝母材之间的结合是接头的薄弱环节。

图 4 所示为在不同温度条件下对 Al/Ni 进行有机溶剂保护扩散连接获得接头界面背散射电子照片。由图 4a 可以看出，当温度为 430 $^{\circ}\text{C}$ 时，接头无中间相生成，接头没有形成有效连接。当温度为 460 $^{\circ}\text{C}$ 时，很明显地观察到 1 层铝镍反应层，反应层较薄，接头有明显缺陷，如图 4b 所示。当温度达到 490 $^{\circ}\text{C}$ 时，接头反应层厚度增加，缺陷消失，结合良好。

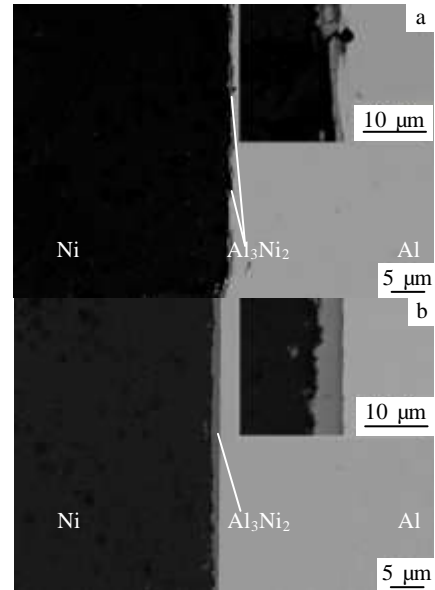


图 2 采用常规扩散连接方法和有机溶剂保护扩散连接方法获得的接头界面微观结构

Fig.2 Interfacial microstructures of the joints bonded by conventional diffusion bonding (a) and diffusion bonding with organic solvent surface protection (b) ($T=490\text{ }^{\circ}\text{C}$, $P=2\text{ MPa}$, $t=60\text{ min}$)

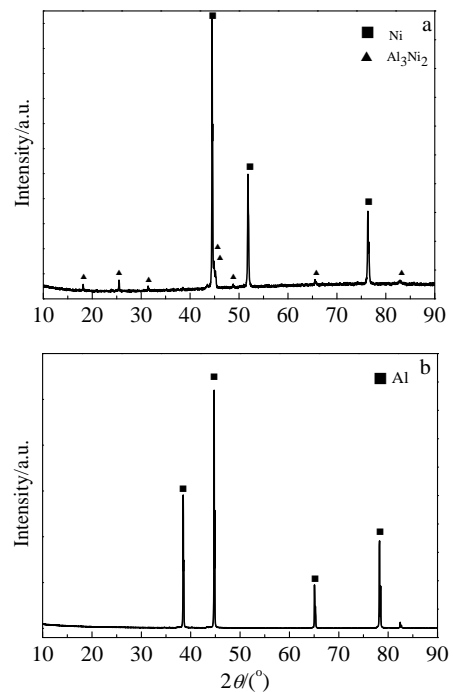


图 3 Al/Ni 接头断口 XRD 图谱

Fig.3 XRD patterns of the fracture of the Al/Ni joint: (a) in the Ni side and (b) in the Al side

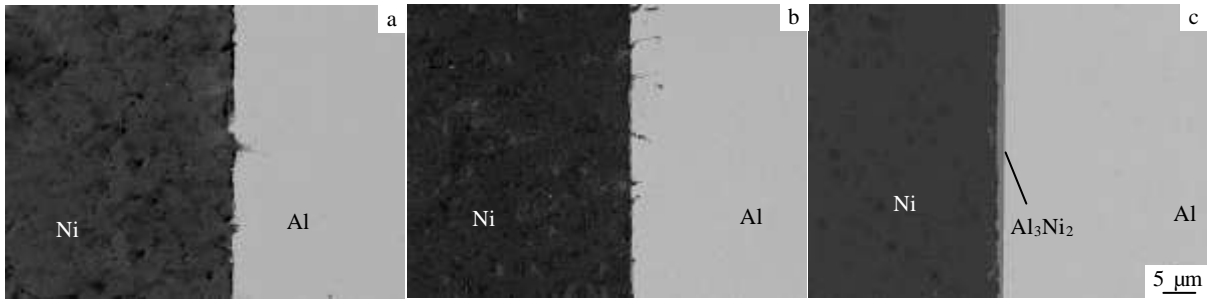


图 4 用有机溶剂保护扩散连接方法在不同焊接温度下获得的 Al/Ni 接头界面组织

Fig.4 Interfacial microstructures of the joints bonded by diffusion bonding with organic solvent surface protection at different temperatures: (a) 430 °C, (b) 460 °C, and (c) 490 °C

图 5 所示为采用有机溶剂保护扩散连接方法和直接扩散连接方法在不同的焊接温度下对铝镍焊接 60 min 获得的接头抗剪强度，焊接压力为 2 MPa。从图中可以看出，当焊接温度为 400 °C 时，接头的强度只有 2.50 MPa，随着焊接温度的提高，接头抗剪强度逐渐升高，当焊接温度为 490 °C 时，接头抗剪强度约为 17.83 MPa。相对于采用常规扩散连接获得的接头强度，当焊接温度为 400 及 430 °C 时，2 种方法获得的接头强度区别不大；而当温度为 490 °C 时，接头强度有一定提高，相比常规扩散连接提高了 55% 左右。

对优化工艺参数下的连接接头进行显微硬度测试，结果如图 6 所示，母材铝和镍拥有较低的硬度值，而反应层由于形成金属间化合物 Al_3Ni_2 ，使硬度值在反应层附近显著提高。同时可以发现 Ni 侧靠近反应层附近区域硬度有明显升高，这是由于在扩散连接过程中原子扩散对母材产生一定强化的缘故。

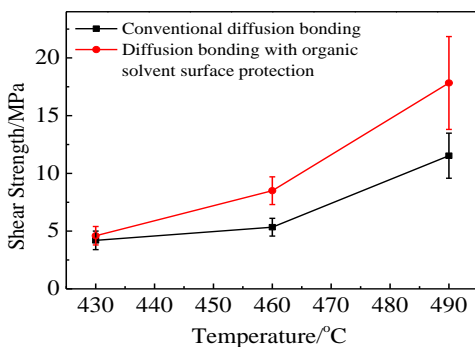


图 5 连接温度对铝/镍接头抗剪强度的影响

Fig.5 Effect of bonding temperature on the shear strength of the Al/Ni joint

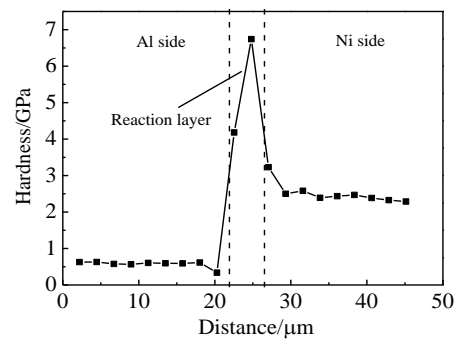


图 6 Al/Ni 接头界面附近区域的硬度

Fig.6 Hardness profile of the joint at Al/Ni interface

研究表明氧化膜去除是易氧化材料低温扩散连接成功与否的关键^[14]。相比直接扩散连接，采用有机溶剂保护扩散连接可以极大地降低氧化膜对连接质量的影响。这种方法在易氧化材料的连接中具有广阔的应用前景。

3 结 论

1) 采用有机溶剂保护扩散连接的方式实现了纯铝与纯镍的可靠连接，相比直接扩散连接，它得到的接头充分扩散，焊合率高，接头未焊合较少。这是由于有机溶剂保护扩散连接可以极大地降低氧化膜对连接质量的影响。有机溶剂保护扩散连接接头典型的界面结构为 Al/ Al_3Ni_2 /Ni。

2) 接头抗剪强度随着连接温度的升高而增大。且随着连接温度升高，反应层厚度逐渐增加。

3) 当工艺参数 $T=490\text{ °C}$ ， $t=60\text{ min}$ ， $P=2\text{ MPa}$ 时，接头抗剪强度最大，可达 17.83MPa，相比常规扩散连接提高了 55% 左右。反应层与铝母材之间的结合是接头的薄弱环节。有机溶剂保护有助于防止连接过程中界面的二次氧化，提高接头性能。

参考文献 References

- [1] Shen Baoluo(沈保罗). *Rare Metal Materials and Engineering* (稀有金属材料与工程)[J], 1996, 25(6): 46
- [2] Mondolfo L F. *Aluminum Alloys: Structure and Properties*[M]. London: Butter Worths, 1976: 651
- [3] Starke E A, Staley J T. *Progress in Aerospace Sciences*[J], 1996, 32(2-3): 131
- [4] Rajakumar S, Muralidharan C, Balasubramanian V. *Materials & Design*[J], 2011, 32(2): 535
- [5] Liu H S, Yan B H, Huang F Y *et al. Journal of Materials Processing Technology*[J], 2005, 169(3): 418
- [6] Carroll L J, Cabet C, Carroll M C *et al. International Journal of Fatigue*[J], 2013, 47: 115
- [7] Mahoney M W, Rhodes C G, Flintoff J G *et al. Metallurgical & Materials Transactions A*[J], 1998, 29(7): 1955
- [8] Peng Yongyi, Yin Zhimin, Lei Xuefeng *et al. Rare Metal Materials and Engineering*[J], 2011, 40(2): 201
- [9] Zhao Zheng(赵 征), Li Jinglong(李京龙), Li Ming(黎明). *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2008, 37(3): 525
- [10] Xue P, Ni D R, Wang D *et al. Materials Science and Engineering A*[J], 2011, 528(13-14): 4683
- [11] Mahendran G, Balasubramanian V, Senthilvelan T. *Materials & Design*[J], 2009, 30(4): 1240
- [12] Bushby R S, Scott V D. *Composites Engineering*[J], 1995, 5(8): 1029
- [13] Sunwoo A. *Scripta Metallurgica et Materialia*[J], 1994, 31(4): 407
- [14] Shirzadi A A, Assadi H, Wallach E R. *Surface and Interface Analysis*[J], 2001, 31(7): 609

Influence of Organic Solvent Surface Protection on Diffusion Bonding of Pure Aluminum to Pure Nickel

Li Rui, Cao Jian, Wang Yifeng, Dai Xiangyu, Feng Jicai

(State Key Laboratory of Advanced Welding and Joining, Harbin Institute of Technology, Harbin 150001, China)

Abstract: Diffusion bonding of pure aluminum to pure nickel by organic solvent surface protection was investigated at various temperatures. The interfacial microstructure of Al/Ni diffusion bonded joint was confirmed to be Al/Al₃Ni₂/Ni by scanning electron microscope, energy spectrum analysis and X-ray diffraction (XRD) analysis. The organic solvent was used to protect the "clean surface" against re-oxidation prior to diffusion bonding. Under optimum conditions, the joints with higher shear strength were obtained. As the temperature increases, the thickness of the reaction layers increases gradually. The highest shear strength obtained by organic solvent surface protection bonding is 17.83 MPa under 2 MPa for 60 min at 490 °C, which is 55% higher than those obtained by conventional diffusion bonding.

Key words: diffusion bonding; surface protection; interfacial microstructure; mechanical properties

Corresponding author: Cao Jian, Ph. D., State Key Laboratory of Advanced Welding and Joining, Harbin Institute of Technology, Harbin 150001, P. R. China, Tel: 0086-451-86418146, E-mail: cao_jian@hit.edu.cn