

# AgCu+nano-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 复合钎料钎焊 TC4 合金与 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷：界面结构及接头性能

赵一璇<sup>1</sup>, 王美荣<sup>2</sup>, 宋晓国<sup>2</sup>, 唐冬雁<sup>2</sup>, 冯吉才<sup>2</sup>, 王昕<sup>1</sup>

(1. 中国海洋大学, 山东 青岛 266100)

(2. 哈尔滨工业大学, 黑龙江 哈尔滨 150001)

**摘要:** 通过向 AgCu 共晶钎料中添加 nano-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 增强相(2%, 质量分数)并采用高能球磨的方法获得了 AgCu+nano-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 复合钎料 (AgCu<sub>C</sub> 钎料)。采用 AgCu<sub>C</sub> 钎料实现了 TC4 合金与 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷的高质量钎焊连接, 确定了 TC4/AgCu<sub>C</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 钎焊接头的典型界面组织结构为: TC4/ $\alpha$ -Ti+Ti<sub>2</sub>Cu 扩散层/Ti<sub>3</sub>Cu<sub>4</sub> 层/Ag<sub>(s,s)</sub>+Ti<sub>3</sub>Cu<sub>4</sub>+TiCu/Ti<sub>3</sub>Cu<sub>4</sub> 层/Ti<sub>3</sub>(Cu,Al)<sub>3</sub>O 层/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>。Nano-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 的添加抑制了钎缝中连续的 Ti-Cu 化合物层的生长, 同时在钎缝中形成了颗粒状 Ti-Cu 化合物相增强的 Ag 基复合材料, 改善了钎焊接头的界面组织。随着钎焊温度的升高, 各反应层厚度逐渐增加, 颗粒状 Ti-Cu 化合物不断长大, Ag 基复合材料组织逐渐细小。当钎焊温度  $T=920$  °C, 保温时间  $t=10$  min 时接头抗剪强度达到最大为 67.8 MPa, 典型断口分析表明: 压剪过程中, 裂纹起源于钎角处并沿钎缝扩展后转入 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷, 最终在 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷母材侧发生断裂。

**关键词:** TC4 合金; 复合钎料; Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷; 钎焊; 界面结构

中图分类号: TG454

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2015)04-0922-05

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷以其耐高温、高强度、耐磨损、抗腐蚀等优异的综合性能在航空航天、电力电子、能源交通等领域获得了广泛应用, 已成为应用最广的氧化物陶瓷材料<sup>[1,2]</sup>。然而, 由于 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷的本质脆性决定了其加工性能较差, 难以制成结构复杂的构件, 在 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷的实际应用中往往需要实现其与金属材料的连接制成陶瓷-金属复合构件。因此, 实现 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷与金属材料的可靠连接已成为拓宽 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷应用领域的重要基础<sup>[3,4]</sup>。

活性钎焊技术采用含 Ti、Zr 等活性元素的钎料实现 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷与金属材料的可靠连接以其工艺适应性强、操作简单、成本低廉等优势一直受到国内外学者的广泛关注和研究<sup>[5,6]</sup>。然而, 由于 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷与金属材料热膨胀系数、弹性模量等物理性能的差异, 导致在钎焊接头区域存在大的残余应力, 显著降低了接头性能<sup>[7]</sup>。近年来, 国内外学者在活性钎焊技术基础上, 通过复合材料技术控制或调整钎缝组织, 改善其性能, 以实现陶瓷-钎缝-金属三者间的良好匹配, 降低接头残余应力, 取得了一定的研究成果<sup>[8,9]</sup>。本工作将 nano-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷引入商用 AgCu 共晶钎料制备了 nano-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 增强的 AgCu 复合钎料 (AgCu<sub>C</sub>), 并采用

该复合钎料实现了 TC4 合金与 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷的钎焊连接, 表明了 nano-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 对接头界面组织的改善机制, 重点研究接头钎焊温度对接头界面组织结构和力学性能的影响规律。

## 1 实验

试验采用上海泛联科技生产的热压烧结 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷 (多晶 95 瓷), 其化学成分见表 1 所示。TC4 合金由西北有色金属研究院提供, 名义成分为 Ti-6Al-4V。连接前将 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷加工成 6 mm×6 mm×5 mm 大小的试样, 钎焊面积为 6 mm×6 mm。将 TC4 合金分别加工成 20 mm×10 mm×2 mm (性能测试) 和 8 mm×8 mm×2 mm (组织观察) 2 种规格的待焊试样。采用 QM-SB 行星式高能球磨机将 196 g 商用 AgCu 共晶钎料及 4 g 大小为 20 nm 左右的 nano-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 混合球磨 2 h 制备 AgCu<sub>C</sub> 钎料。焊前将 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷及 TC4 合金钎焊面打磨并抛光, 然后将待焊试样放入丙酮中超声清洗 15 min, 按照 TC4/AgCu<sub>C</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 的顺序装配好后放入真空度约为  $1.33 \times 10^{-3}$  Pa 的真空钎焊炉中进行钎焊, 焊件上放置一石墨块以保证焊接过程中 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷与 TC4 合金的良好接触。

收稿日期: 2014-04-21

基金项目: 国家自然科学基金 (51405099); 中国博士后科学基金 (2013M531032); 山东省优秀中青年科学家科研奖励基金 (BS2013CL028)

作者简介: 赵一璇, 女, 1992 年生, 硕士, 中国海洋大学材料科学与工程学院, 山东 青岛 266100, 电话: 0532-66781321, E-mail: zhaoyx92@163.com

表 1 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷的化学成分

Table 1 Chemical composition of Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ceramic (ω/%)						
Phase	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	SiO <sub>2</sub>	CaO	MgO	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Na <sub>2</sub> O
Content	95.42	2.23	1.67	0.05	0.04	0.04

钎焊过程中首先以 30 °C/min 的速率升温至 750 °C, 保温 5 min, 再以 10 °C/min 的速率升温至钎焊温度, 保温 10 min, 然后以 5 °C/min 的速率降温到 300 °C 后炉冷至室温取出。分别采用 X-射线衍射仪 (Bruker-D8) 及热分析仪 (TGA/SDTA851E) 对 AgCu<sub>C</sub> 钎料的物相及熔化特性进行分析; 采用 SEM、EDS 观察和分析 AgCu<sub>C</sub> 形貌、接头界面组织及断口形貌; 选取同一工艺规范下连接的 5 个试样采用 Instron-5569 型万能试验机对接头的抗剪强度进行测试, 加载速度为 0.5 mm/min。

## 2 结果与分析

### 2.1 AgCu<sub>C</sub> 钎料物相及熔化特性分析

图 1 所示为 AgCu 及 AgCu<sub>C</sub> 粉末钎料的二次电子照片, 从图 1a 中可以看出商用 AgCu 共晶钎料由尺寸小于 50 μm 的钎料球组成, 且钎料球表面较为光滑。图 1b 所示为经高能球磨后的 AgCu<sub>C</sub> 钎料的形貌, 由图可见, 经球磨后 nano-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 颗粒将 AgCu 钎料球包裹起来, 导致钎料球表面变得粗糙, 但钎料球的尺寸及形状在球磨过程中无明显变化。

图 2 中 a 和 b 谱线分别为 AgCu 钎料及 AgCu<sub>C</sub> 钎料的 X 射线衍射分析结果, 由图可见, 在 高能球磨过程中, nano-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 颗粒未与 AgCu 钎料发生冶金反应, 导致 AgCu 钎料及 AgCu<sub>C</sub> 钎料具有相似的 XRD 图谱。另外, 由于 AgCu<sub>C</sub> 中 nano-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 含量较少, 导致在 AgCu<sub>C</sub> 钎料的衍射图谱中除了在 2θ 为 20° 左右处出现微小的漫散射峰外无明显的 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 衍射峰出现。

图 3a 和 3b 所示分别为 AgCu 钎料及 AgCu<sub>C</sub> 钎料的 DTA 分析曲线。从图中可以看出, 2 种钎料具有相同的熔化温度, 约为 781 °C。也就是说复合钎料中

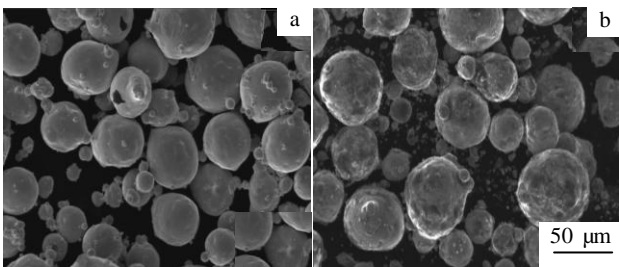


图 1 粉末钎料微观形貌照片

Fig.1 Microographies of powder fillers: (a) AgCu powder filler and (b) AgCu<sub>C</sub> powder filler

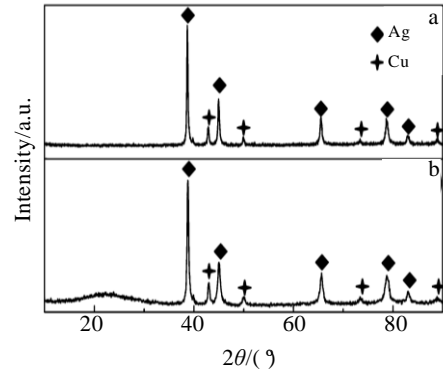


图 2 粉末钎料 XRD 图谱

Fig.2 XRD results of powder fillers: (a) AgCu powder filler and (b) AgCu<sub>C</sub> powder filler

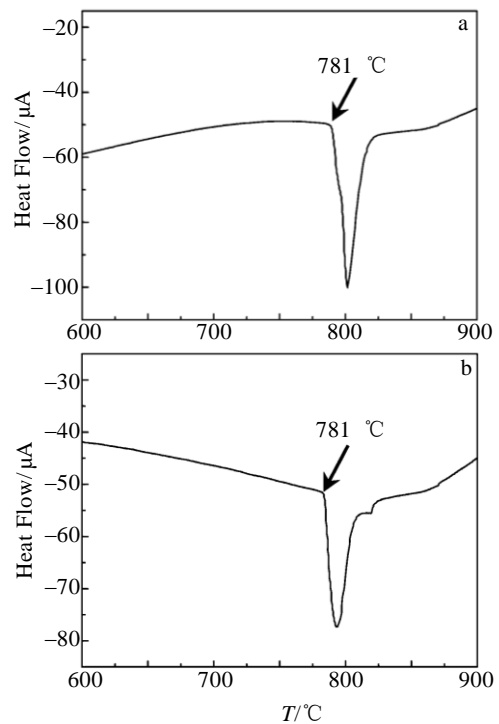


图 3 粉末钎料 DTA 曲线

Fig.3 DTA curves of powder fillers: (a) AgCu powder filler and (b) AgCu<sub>C</sub> powder filler

nano-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 颗粒的添加对 AgCu 钎料的熔点没有明显影响。

### 2.2 TC4/AgCu<sub>C</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 钎焊接头界面组织结构分析

图 4a 和 4b 所示为钎焊温度 920 °C、保温 10 min 工艺条件下, 分别采用 AgCu 及 AgCu<sub>C</sub> 钎料获得的 TC4/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 钎焊接头的典型界面结构。从图中可以看出, nano-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 的添加抑制了 TC4 侧连续的 Ti-Cu 化合物层的生长, 同时, 在钎缝中形成了颗粒相增强的复合材料组织。采用 AgCu<sub>C</sub> 钎料较好地实现 TC4 合金和 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷的钎焊连接; 钎焊过程中, 熔融钎

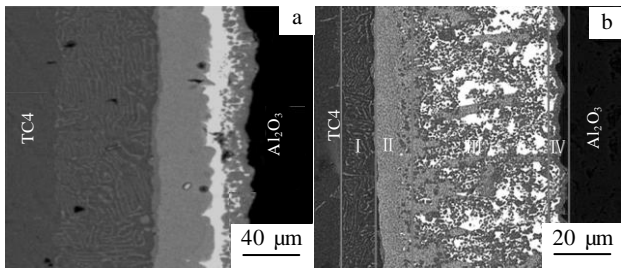


图 4 采用不同钎料获得的 TC4/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 接头界面组织

Fig.4 Interfacial microstructure of TC4/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> joints brazed at 920 °C for 10 min using AgCu powder filler (a) and AgCuC powder filler (b)

料与两侧母材均发生反应，生成了多种反应产物(层)，并按一定顺序分布在接头界面上。为方便叙述，将接头界面分为 I、II、III、IV 4 个反应区，如图 4b 所示；反应区 I 为钎料扩散进入母材形成的扩散层，反应区 II 为钎料靠近 TC4 合金侧的化合物层，反应区 III 为钎缝中间区域，主要由白色基体和分布于其中的 2 种灰色颗粒相组成，而反应区 IV 则为靠近 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷母材侧的连续反应层。

图 5 所示为图 4b 中各反应区的高倍照片，为确定接头界面反应产物，对图 5 中所示 A-G 各点进行了能谱 (EDS) 分析，表 2 列出了各点化学成分及对应的反应相。从图 5a 中可以看出，在 TC4 母材侧形成 α-Ti+Ti<sub>2</sub>Cu 的扩散层 (反应区 I)，该扩散层的形成主要是由于熔融钎料中的 Cu 元素向 TC4 母材扩散导致 β-Ti 中 Cu 含量增加后转变为 Ti<sub>2</sub>Cu 所致。反应区 II 为紧靠扩散层形成的连续的浅灰色 Ti<sub>3</sub>Cu<sub>4</sub> 化合物层，该化合物层是钎焊过程中熔融钎料中的 Cu 元素与 TC4 母材直接反应形成的。对比图 4a 及 4b 中 Ti<sub>3</sub>Cu<sub>4</sub> 化合物层可以看出，nano-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 的添加在一定程度上阻碍了钎料中 Cu 元素向 TC4 母材的扩散，从而抑制了 Ti<sub>3</sub>Cu<sub>4</sub> 化合物层的生长，导致在相同的钎焊条件下，采用 AgCuC 钎料获得的钎缝中 Ti<sub>3</sub>Cu<sub>4</sub> 化合物层厚度较薄。

图 5b 所示为反应区 III 的形貌，由图可见，在白色的 Ag 基固溶体上分布着浅灰色 Ti<sub>3</sub>Cu<sub>4</sub> 和深灰色 TiCu 2 种颗粒状化合物，形成了颗粒增强 Ag 基复合材料组织。颗粒状 Ti-Cu 化合物的形成是由从 TC4 母材溶解到液相钎料中的 Ti 元素与 Cu 反应所致。在钎焊保温过程中，液相钎料中弥散分布着 nano-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 粒子，这些弥散分布的 nano-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 粒子可以为 Ti-Cu 化合物的形成提供形核质点，这样 Ti<sub>3</sub>Cu<sub>4</sub> 和 TiCu 化合物便会依附 nano-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 析出长大成颗粒相弥散分布于

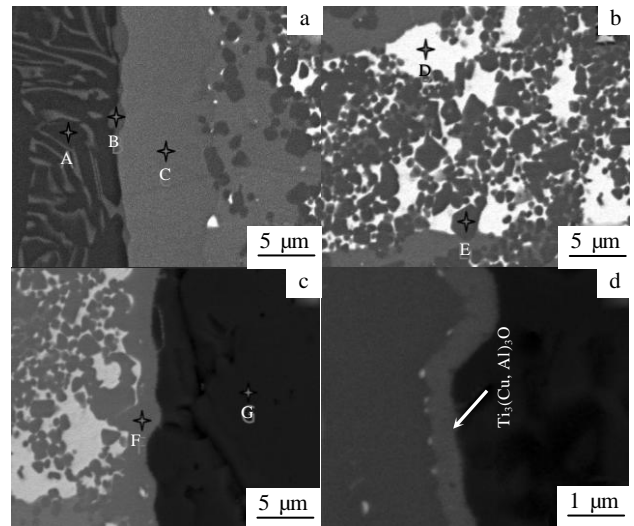


图 5 图 4b 中各区组织高倍照片

Fig.5 High magnification images of interfacial microstructure of each zone in Fig.4b: (a) Zone I and II, (b) Zone III, (c) Zone IV and (d) Ti<sub>3</sub>(Cu,Al)<sub>3</sub>O reaction layer

Ag 基固溶体中。由此可见，AgCuC 钎料中 nano-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 的添加促使钎缝中形成了 Ag 基复合材料，改善了其组织结构。图 5c 所示为反应区 IV 的形貌，由图可见，靠近 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 母材侧形成了连续的 Ti<sub>3</sub>Cu<sub>4</sub> 化合物层，该化合物层的形成是由溶解在液相钎料中的 Ti 元素与 Cu 反应并依附 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷长大的。实际上，在 Ti<sub>3</sub>Cu<sub>4</sub> 化合物层与 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 母材之间形成了一层极薄的 Ti<sub>3</sub>(Cu,Al)<sub>3</sub>O 化合物层，如图 5d 所示。Laik<sup>[7]</sup>和 Kozlova<sup>[10]</sup>详细研究了 AgCuTi 活性钎料钎焊 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷过程中 Ti<sub>3</sub>(Cu,Al)<sub>3</sub>O 的形成机制。

综上所述可知，采用 AgCuC 钎料实现了 TC4 合金与 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷的可靠连接，TC4/AgCuC/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 钎焊接头典型界面结构为：TC4/α-Ti+Ti<sub>2</sub>Cu 扩散层/Ti<sub>3</sub>Cu<sub>4</sub> 层/Ag<sub>(s,s)</sub>+Ti<sub>3</sub>Cu<sub>4</sub>+TiCu/Ti<sub>3</sub>Cu<sub>4</sub> 层/Ti<sub>3</sub>(Cu,Al)<sub>3</sub>O 层/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>。

表 2 图 5 中 A~G 点的能谱 (EDS) 分析结果

Fig.2 EDS results of each spot in Fig.5 (at%)

Spot	Ag	Cu	Ti	Al	V	O	Phase
A	1.32	4.26	87.81	5.32	1.29	-	α-Ti
B	4.25	28.64	61.24	2.67	3.20	-	Ti <sub>2</sub> Cu
C	5.66	51.24	36.54	2.23	4.33	-	Ti <sub>3</sub> Cu <sub>4</sub>
D	83.68	7.66	6.52	1.26	0.88	-	Ag <sub>(s,s)</sub>
E	8.66	45.56	43.76	1.06	0.96	-	TiCu
F	7.94	52.53	36.77	2.32	0.74	-	Ti <sub>3</sub> Cu <sub>4</sub>
G	2.22	3.01	4.23	44.36	0.68	45.5	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>

### 2.3 钎焊温度对 TC4/AgCu<sub>C</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 接头界面结构的影响

图 6 所示为钎焊时间 10 min 时, 在不同钎焊温度条件下获得的 TC4/AgCu<sub>C</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 接头界面组织照片。EDS 分析表明钎焊温度的变化对界面反应产物的类型没有影响。同上述分析一致, 扩散区由 α-Ti+Ti<sub>2</sub>Cu 组成, 钎缝则包含 Ti-Cu 化合物及 Ag 基固溶体。

然而, 随钎焊温度的升高, 接头界面结构也呈现出一定规律的变化, 即 Ti-Cu 化合物层厚度增加, 颗粒状 Ti-Cu 化合物尺寸不断增大, Ag 基固溶体含量减少。当钎焊温度较低时 (880 和 900 °C), 由于反应不充分, 在图 6a 和 6b 所示的钎缝中可以观察到黑色的未参与反应的 nano-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 团簇; 而当钎焊温度较高时 (940 和 960 °C), 由图 6c 和 6d 可见, 粒状 Ti<sub>3</sub>Cu<sub>4</sub> 及 TiCu 化合物不断粗化连成一体并逐渐充满整个钎缝。

### 2.4 钎焊温度对 TC4/AgCu<sub>C</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 接头性能的影响

图 7 所示为采用 AgCu<sub>C</sub> 钎料在不同钎焊温度条件下钎焊 TC4 合金与 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷获得的钎焊接头的抗剪强度。从图中可以看出, 随钎焊温度升高, 接头抗剪强度先升高后降低, 当钎焊温度为 920 °C 获得的接头抗剪强度最大为 67.8 MPa, 比单纯采用 AgCuTi 活性钎料直接钎焊 TC4 与 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷获得的接头最高抗剪强度(41.6 MPa)提高 60% 以上<sup>[11]</sup>。结合前面对接头界面组织的分析可知, 采用 AgCu<sub>C</sub> 钎料提高 TC4/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 钎焊接头性能的原因主要是由于 nano-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 的添加一

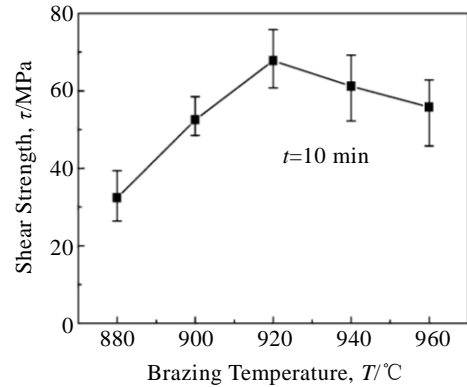


图 7 不同钎焊温度条件下 TC4/AgCu<sub>C</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 接头抗剪强度  
Fig.7 Shear strength of TC4/AgCu<sub>C</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> joints brazed at different temperatures for 10 min

方面抑制了脆性 Ti-Cu 化合物的生长, 另一方面在钎缝中形成了颗粒增强 Ag 基复合材料, 改善了钎缝组织, 在一定程度上降低接头残余应力。

图 8 所示为 920 °C/10 min 条件下获得的钎焊接头经压剪试验后得到的断口照片。由图可见, 压剪过程中, 裂纹起源于钎角处并沿钎缝扩展后转入 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷, 最终在 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷母材侧发生断裂, 断裂方式属于脆性断裂。

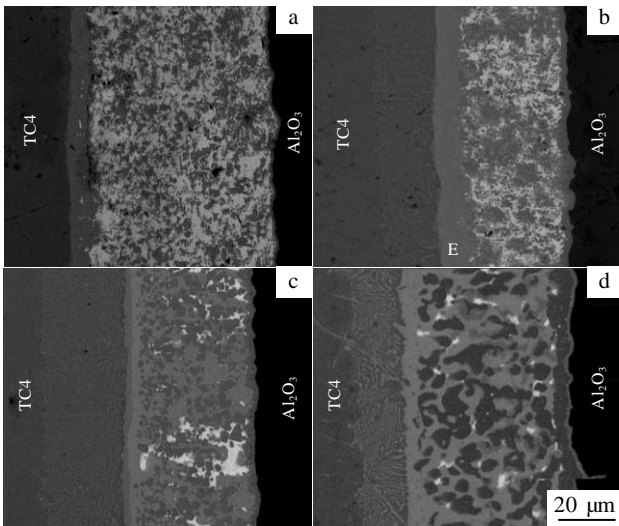


图 6 不同钎焊温度条件下 TC4/AgCu<sub>C</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 接头界面结构  
Fig.6 Interfacial microstructure of TC4/AgCu<sub>C</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> joints brazed at 880 °C (a), 900 °C (b), 940 °C (c), and 960 °C (d) for 10 min

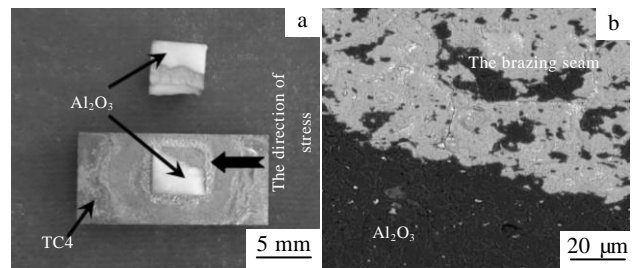


图 8 TC4/AgCu<sub>C</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 钎焊接头断口形貌  
Fig.8 Fractography of TC4/AgCu<sub>C</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> brazed joint: (a) macro photograph and (b) micro photograph

## 3 结 论

1) 采用高能球磨方法将 nano-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 引入商用 AgCu 共晶钎料中制备了 nano-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 增强的 AgCu 复合钎料 (AgCu<sub>C</sub> 钎料); 球磨时 nano-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 未与 AgCu 发生冶金反应, 且对其熔化行为无明显影响。

2) 采用 AgCu<sub>C</sub> 钎料实现了 TC4 合金与 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷的可靠连接, 接头典型界面结构为 TC4/α-Ti+Ti<sub>2</sub>Cu 扩散层/Ti<sub>3</sub>Cu<sub>4</sub> 层/Ag<sub>(s,s)</sub>+Ti<sub>3</sub>Cu<sub>4</sub>+TiCu/Ti<sub>3</sub>Cu<sub>4</sub> 层/Ti<sub>3</sub>(Cu, Al)<sub>3</sub>O 层/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>; nano-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 的添加抑制了 Ti-Cu 化合

物层的生长, 同时在钎缝中形成了 Ti-Cu 颗粒相增强的 Ag 基复合材料组织。

3) 随钎焊温度的升高, 接头内各反应层厚度逐渐增加, Ti-Cu 颗粒状化合物不断长大, Ag 基复合材料组织逐渐细小; 接头抗剪强度先升高后降低, 当钎焊温度为 920 °C, 接头抗剪强度最高可达 67.8 MPa; 断口分析表明: 压剪过程中, 裂纹起源于钎角处并沿钎缝扩展后转入 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷, 最终在 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷母材侧发生断裂。

#### 参考文献 References

- [1] Zhu Zhibin(朱志斌), Guo Zhijun(郭志军), Liu Ying(刘英) *et al. Ceramics(陶瓷)*[J], 2003(1): 5
- [2] Zhang Xiao(张笑), Lü Lingtao(吕令涛), Yang Jianfeng(杨建峰) *et al. Rare Metal Materials and Engineering(稀有金属材料与工程)*[J], 2013, 42(1): 145
- [3] Wang Bo(王波), Ning Xiaoshan(宁晓山), Li Sha(李莎). *Rare Metal Materials and Engineering(稀有金属材料与工程)*[J], 2011, 40(S1): 518
- [4] Wang Yifeng(王义峰), Cao Jian(曹健), Song Xiaoguo(宋晓国) *et al. Rare Metal Materials and Engineering(稀有金属材料与工程)*[J], 2013, 42(3): 598
- [5] Li Feibin(李飞宾), Wu Aiping(吴爱萍), Zou Guisheng(邹贵生) *et al. Transactions of the China Welding Institution(焊接学报)*[J], 2008, 29(3): 53
- [6] Ning Honglong, Geng Zhiting, Ma Jusheng *et al. Ceramics International*[J], 2003, 29: 689
- [7] Laik A, Mishra P, Bhanumurthy K *et al. Acta Materialia*[J], 2013, 61: 126
- [8] Lin G B, Huang J H, Zhang H. *Journal of Materials Process and Technology*[J], 2007, 189: 256
- [9] Chen Zhenzhen(陈珍珍), Xu Jiuhua(徐九华), Ding Wenfeng(丁文峰) *et al. Rare Metal Materials and Engineering(稀有金属材料与工程)*[J], 2009, 38(8): 1398
- [10] Kozlova O, Braccini M, Voytovych R *et al. Acta Materialia*[J], 2010, 58: 1252
- [11] Yang Minxuan(杨敏璇). *Microstructure and Properties of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/TC4 Brazed Joint Reinforced by In Situ Synthesized TiB Whiskers(原位自生 TiB 晶须增强 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/TC4 钎焊接头组织结构及性能研究)*[D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2012

## Brazing TC4 Alloy to Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Ceramic Using Nano-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Reinforced AgCu Composite Filler: Interfacial Microstructure and Joining Property

Zhao Yixuan<sup>1</sup>, Wang Meirong<sup>2</sup>, Song Xiaoguo<sup>2</sup>, Tang Dongyan<sup>2</sup>, Feng Jicai<sup>2</sup>, Wang Xin<sup>1</sup>

(1. Ocean University of China, Qingdao 266100, China)

(2. Harbin Institute of Technology, Harbin 150001, China)

**Abstract:** A nano-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> reinforced AgCu composite filler (named AgCu<sub>C</sub>) was developed by introducing nano-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (2 wt%) into AgCu eutectic powder filler and then by high-energy ball milling. High-quality brazing of TC4 alloy to Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ceramic was achieved using the AgCu<sub>C</sub> filler. The typical interfacial microstructure of TC4/AgCu<sub>C</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> joint was TC4/ $\alpha$ -Ti+Ti<sub>2</sub>Cu diffusion layer/Ti<sub>3</sub>Cu<sub>4</sub> reaction layer/Ag<sub>(s,s)</sub>+Ti<sub>3</sub>Cu<sub>4</sub>+TiCu/Ti<sub>3</sub>Cu<sub>4</sub> reaction layer/Ti<sub>3</sub>(Cu,Al)<sub>3</sub>O reaction layer/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. The addition of nano-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> in AgCu<sub>C</sub> filler could improve the interfacial microstructure by constraining the growth of continuous Ti-Cu intermetallic layers. Moreover, granular Ti-Cu phases reinforced Ag based composite is formed in brazed joint. Both the thickness of reaction layers and the size of granular Ti-Cu phases increase with an increasing brazing temperature, while the content of Ag based composite decreases. The highest shear strength of 67.8 MPa is achieved when brazed at 920 °C for 10 min. Typical fracture analyses show that the crack originates in the fillet, extends along the brazing seam and then transforms into Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ceramic, and finally fractures in the Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> substrate side.

**Key words:** TC4 alloy; composite filler; Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ceramic; brazing; interfacial microstructure

Corresponding author: Wang Xin, Ph. D., Professor, Institute of Materials Science and Engineering, Ocean University of China, Qingdao 266100, P. R. China, Tel: 0086-532-66781321, E-mail: wangxinhd@ouc.edu.cn