

(20) 879-882

Cu/Al₂O₃ 扩散焊接头界面晶体位向关系 对断裂能量的影响*

刘伟平

(大连铁道学院材料科学与工程系, 大连 116028)

G. Elssner, M. Rühle

(Max-Planck Institute for Metal Research, Stuttgart, Germany)

Elssn., G ✓

摘 要 以单晶 α -Al₂O₃ 陶瓷 (蓝宝石) 和单晶 Cu 为母材, 采用真空扩散焊接获得具有两种不同的界面晶体位向关系的 Cu/Al₂O₃ 扩散焊接头以及带 Nb 膜中间层的 Cu/Nb/Al₂O₃ 扩散焊接头, 研究了界面晶体位向关系对接头断裂能量的影响。结果表明, 陶瓷-金属界面的晶体位向关系影响界面粘功 (W_{ad}) 和断裂过程中金属侧所消耗的塑性变形功 (W_p), 从而显著影响接头的断裂能量。界面位向关系为 (100)[011]_{Cu} // (0001)[11 $\bar{2}$ 0]_{Al₂O₃} 的 Cu/Al₂O₃ 接头断裂能量值最低, 而具有相同位向关系的带 Nb 膜中间层的 Cu/Nb/Al₂O₃ 接头的断裂能量值则最高。

关键词 陶瓷 / 金属焊接, 界面位向关系, 断裂能量

中图法分类号 TG457, TG496.7

文献标识码 A

文章编号 0412-1961(2000)08-0879-04

EFFECTS OF THE CRYSTAL ORIENTATION RELATIONSHIP AT THE INTERFACE OF Cu/Al₂O₃ JOINTS ON FRACTURE ENERGY

TQ174.1
TG407

LIU Weiping

Department of Materials Science and Engineering, Dalian Railway Institute, Dalian 116028

G. Elssner, M. Rühle

Max-Planck Institute for Metal Research, Stuttgart, Germany

Correspondent: LIU Weiping, professor. Tel: (0411)4604323-2835, Fax: (0411)4606139,

E-mail: lwp@dlrin.edu.cn.

Manuscript received 1999-11-24, in revised form 2000-04-28

ABSTRACT Single crystalline Cu and α -Al₂O₃ (sapphire) with different crystallographic orientation relationships at the interface were diffusion-welded in vacuum with and without a thin film Nb interlayer. Effects of the orientation relationship at the interface on the fracture energy of Cu/Al₂O₃ and Cu/Nb/Al₂O₃ diffusion-bonded joints were studied. Results show that the orientation relationship between Cu and α -Al₂O₃ single-crystals at the interface remarkably influences the fracture energy of the metal/ceramic joint by changing both the work of adhesion of the metal-ceramic interface and the dissipated energy caused by plastic deformation of the metal side of the joint. The Cu/Al₂O₃ joints with the orientation relationship (100)[011]_{Cu} // (0001)[11 $\bar{2}$ 0]_{Al₂O₃} have the lowest fracture energy values, while the Cu/Nb/Al₂O₃ joints with the same orientation relationship between Cu and Al₂O₃ are the toughest among the tested joints.

KEY WORDS ceramic/metal welding, interface orientation relationship, fracture energy

随着高科技与经济建设的发展, 高性能陶瓷材料的应

用受到世界各国的日益普遍重视。据估测, 全世界高性能陶瓷的销售额从 1995 到 2000 年的 5 年内增加了一倍, 至 2000 年约 530 亿美元^[1]。高性能陶瓷的应用可带来巨大的经济效益, 如果在发动机上使用陶瓷材料, 可使耐温性能从 900℃ 提高到 1200—1300℃, 提高发动机效率

* 国家留学基金委员会资助项目

收到初稿日期: 1999-11-24, 收到修改稿日期: 2000-04-28

作者简介: 刘伟平, 男, 1963 年生, 教授, 博士

45%，节能 30%—50%。陶瓷材料虽然具有许多独特的优点，但存在脆性大的致命弱点。将陶瓷和金属连接构成各种类型的复合结构或复合材料，是使材料和结构既具有陶瓷耐热、耐磨和耐蚀的优越性，又保持金属材料高韧性的有效途径。因此，结构陶瓷的工程应用在很大程度上取决于它与金属的连接问题。另外，陶瓷与金属连接及其界面结合的研究也是金属—陶瓷复合材料研究中的重要研究内容之一。

陶瓷—金属接头界面的晶体结构、化学成分和原子键合不同于界面两侧的陶瓷和金属，界面的性质与界面两侧的基体有很大差别。陶瓷—金属界面的性质是决定其复合材料或连接接头使用性能的重要因素之一。 Al_2O_3 陶瓷与金属 Cu 的连接在工业应用中具有重要意义^[2]，文献^[3]曾研究了加 Nb 膜中间层对 $\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 界面接合强度的影响，结果表明，Nb 膜中间层的加入显著地提高了 $\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 扩散焊接头的断裂能量。在此基础上，本文以单晶 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 陶瓷和单晶 Cu 为母材，研究了 $\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 扩散接头以及带 Nb 膜中间层的 $\text{Cu}/\text{Nb}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 扩散接头界面晶体位向关系对接头断裂能量的影响。

1 实验材料及方法

实验材料为单晶 Cu 和单晶 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (即蓝宝石，纯度大于 99.99%)。两种晶体在扩散焊接实验时采用的界面位向关系为 $(100)[011]_{\text{Cu}} // (0001)[11\bar{2}0]_{\text{Al}_2\text{O}_3}$ (简称 A) 和 $(111)[1\bar{1}0]_{\text{Cu}} // (0001)[11\bar{2}0]_{\text{Al}_2\text{O}_3}$ (简称 B)。为了获得足够长的试样用于 4 点弯曲实验，在单晶 Cu 一侧用多晶 Al_2O_3 接长，而在单晶 Al_2O_3 一侧连接多晶 Cu 片再用多晶 Al_2O_3 接长，试样装配如图 1 所示。

整个试样包含 4 个扩散焊界面，一次焊接完成。扩散焊接实验是在德国 Max-Planck 金属研究所一台超高真空扩散焊机上的。该机具有可以独立工作的样品表面清理室 (preparation chamber)、表面蒸镀或掺杂室 (doping chamber) 以及扩散焊接室 (bonding chamber)，如图 2 所示。

被焊试样首先分别在丙酮和甲醇液中进行超声波清洗，并用高纯氮气吹干后装入焊机。在样品表面清理室，采用 Ar 离子轰击对所有待焊表面进行清理。对 Cu 表面采用 1.5 keV 能量 Ar 离子轰击 25 min，对 Al_2O_3 表面采用 3 keV 能量 Ar 离子轰击 30 min。

为了获得带 Nb 膜中间层的 $\text{Cu}/\text{Nb}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 扩散焊接头，在表面蒸镀室采用电子束蒸镀法 (功率 9 kW) 在与单晶 Cu 相连接的单晶 Al_2O_3 表面上蒸镀一层厚度为 30—180 nm 的 Nb 膜作中间层。膜厚由石英晶体振荡器测定，蒸镀速率约为 0.2 nm/s。试样在焊接室装配定位时，为保证单晶 Cu 与单晶 Al_2O_3 在界面上的晶体位向关系，采用激光束对晶体抛光侧面进行反射监控，可将位向误差控制在 $\pm 0.1^\circ$ 范围内。扩散焊接规范系数为：焊接温

度 900 $^\circ\text{C}$ ，保温时间 120 min，压力 8 MPa，加热和冷却速率分别为 15 和 5 $^\circ\text{C}/\text{min}$ ，真空度优于 1×10^{-6} Pa。焊后将试样切割成 2 mm \times 4 mm \times 36 mm (每组 5 个试样) 后用于 4 点弯曲实验，并在试样的单晶 Cu 与单晶 Al_2O_3 界面上用金刚石锯片开一宽度约为 140 μm 的缺口，所有试样缺口方向均沿单晶 Al_2O_3 的 $[11\bar{2}0]$ 晶向。缺口深度与试样高度之比为 0.5。弯曲实验时加载头位移速率为 96.8 $\mu\text{m}/\text{min}$ 。通过 4 点弯曲实验获得具有不同位向关系的 $\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 和带 Nb 膜中间层的 $\text{Cu}/\text{Nb}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 扩散接头界面断裂能量数据，并对 Nb 膜中间层的影响进行了分析。

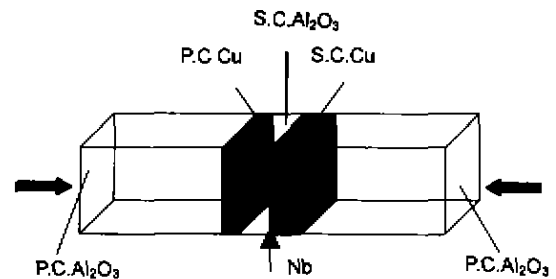


图 1 焊接试样装配示意图

Fig. 1 Schematic of sample assembly for diffusion welding (P.C.—polycrystalline, S.C.—single-crystalline)

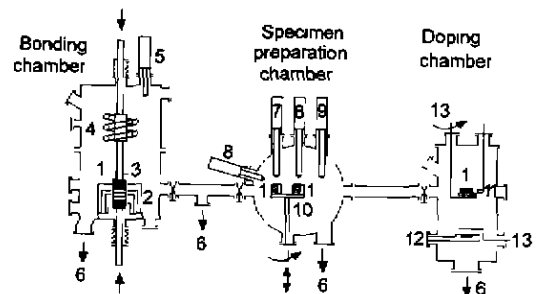


图 2 超高真空扩散焊机示意图

Fig. 2 Schematic of the ultra-high vacuum diffusion welding apparatus

1. Specimens 2. Orientation device 3. Ceramic anvil 4. Heating zone 5. Mass spectrometer 200 u 6. Pumping unit 7. Auger spectrometer 8. Ion sputter guns (5° and 90°) 9. Mass spectrometer 100 u 10. Carousel 11. Thickness monitor 12. Electron beam evaporator 13. Shutter

2 实验结果及讨论

对无中间层具有两种不同界面位向关系的 $\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 扩散焊接头的弯曲实验结果表明，界面位向关系为 A 的接头断裂能量值为 70—152 J/m^2 ，平均值为 110 J/m^2 。界面位向关系为 B 的接头断裂能量值为 98—176 J/m^2 ，平均值为 135 J/m^2 ，略高于界面位向关

系为 A 的接头断裂能量。

图 3 为两种不同界面位向关系的 Cu/Nb/Al₂O₃ 扩散焊接头断裂能量与 Nb 膜中间层厚度的关系。当 Nb 膜中间层厚度为 30—180 nm 时, 界面位向关系为 A 的 Cu/Nb/Al₂O₃ 接头的平均断裂能量值为 2180—3602 J/m², 而界面位向关系为 B 的焊接接头平均断裂能量值仅为前者的 1/2 左右。在两种位向关系条件下, Cu/Nb/Al₂O₃ 接头的断裂能量值均随 Nb 膜厚度的增加而降低。

由上述实验结果可见, 陶瓷-金属界面的晶体位向关系对断裂能量有显著影响。已知陶瓷-金属界面总的断裂能量 G_c 是界面粘功 (W_{ad}) 和金属侧所消耗的塑性变形功 (W_p) 之和。可以用下式表示

$$G_c = W_{ad} + W_p \quad (1)$$

根据文献 [4], W_p 与 W_{ad} 之间存在如下幂指数关系

$$W_p = a(W_{ad})^n \quad (2)$$

其中 a 为系数。

对于具有低粘功的弱界面, 塑性变形仅发生在裂纹尖端附近的微观区域内, 界面断裂为脆性。当界面粘功超过某一值后, 由金属侧塑性变形而消耗的断裂能量以幂指数速度迅速增长。一方面, 两种材料在界面的不同晶体位向关系对应不同的界面粘功; 另一方面, 界面的晶体位向关系决定了金属侧晶体的滑移系与断裂时作用应力方向间的夹角, 从而也必然影响到断裂过程中金属侧所消耗的塑性变形功。

面心立方晶体 Cu 的 III 晶面以及密排六方 Al₂O₃ 晶体的 0001 晶面均为各自晶体的密排面。Mulder 等 [5]

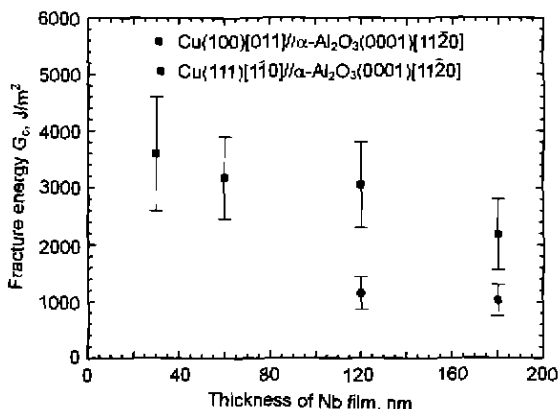


图 3 不同界面位向关系的带有不同厚度 Nb 膜中间层的 Cu/Nb/Al₂O₃ 接头断裂能量比较

Fig.3 Comparison of fracture energies of Cu/Nb/Al₂O₃ joints for two different orientation relationships as a function of Nb interlayer thickness

研究了在 1067 °C 扩散连接的单晶 Al₂O₃ 与多晶 Cu 的接头界面, 发现经扩散焊后在界面上多晶 Cu 的 111 面平行于 Al₂O₃ 的基面 0001。

Dehm [6] 的研究也表明通过分子束外延 (MBE) 方法在单晶 Al₂O₃ 的 0001 基面上获得的 Cu 膜也具有相同的晶面取向关系。由此可以推知, 本研究中的界面位向关系 B 应为能量最低的界面位向关系, 其界面粘功应大于界面位向关系 A 的粘功值。

再从金属侧的塑性变形来分析。由于弯曲实验时应力方向与界面垂直, 可以计算出界面位向关系为 A 的 Cu 侧可能开动的滑移系有 8 个, 其 Schmid 因子 (取向因子) 是 $1/\sqrt{6}$ (Schmid 因子值越大, 越有利于塑性变形)。而对于界面位向关系为 B 的 Cu 侧, 可能开动的滑移系只有 6 个, 其 Schmid 因子是 $2/(3\sqrt{6})$ 。因此, 界面位向关系为 A 的接头更有利于金属侧的塑性变形。但是, 塑性变形功 W_p 对断裂能量的实际贡献还与粘功的大小有关。由于上述多方面综合作用的结果, 在无 Nb 膜中间层的条件下, 界面位向关系为 B 的接头断裂能量仅稍高于界面位向关系为 A 的接头断裂能量。

对于带 Nb 膜中间层的 Cu/Nb/Al₂O₃ 接头, 陶瓷-金属的界面粘功变为 Al₂O₃ 与 Nb 膜中间层的界面粘功。过去研究曾表明 [3], 在单晶 Al₂O₃ 的 0001 面上蒸镀的 Nb 膜具有织构, 其密排面 110 平行于 Al₂O₃ 的 0001 基面。

对于 Cu 与 Al₂O₃ 具有不同晶体位向关系的 Cu/Nb/Al₂O₃ 接头, 粘功 (W_{ad}) 是相同的, 即为 Nb(110)/Al₂O₃(0001) 界面粘功。同时, 粘功对塑性变形的影响也是相同的。由于界面位向关系为 A 的金属侧更有利于塑性变形, 其塑性变形功 W_p 对断裂能量的贡献更大, 因此界面位向关系为 A 的 Cu/Nb/Al₂O₃ 接头的断裂能量值大于位向关系为 B 的接头断裂能量。

值得指出, 带 Nb 膜中间层的 Cu/Nb/Al₂O₃ 接头的断裂能量显著高于无中间层的 Cu/Al₂O₃ 接头。这是由于 Nb 与 Al₂O₃ 的界面粘功大于 Cu 与 Al₂O₃ 的粘功, 而且由于 Nb 与 Al₂O₃ 较强的键合使断裂时金属侧所消耗的塑性变形功以幂指数速度迅速增长。

图 4 示出带有 60 nm 厚的 Nb 膜中间层的 Cu(100)/Al₂O₃(0001) 接头断口形貌。由图可见, 在 Cu 侧的断口表面 (见图 4b) 以及在陶瓷侧的残留 Cu 点上 (见图 4a) 存在大量浅韧窝, 表明界面断裂为韧性断裂。这种界面断裂机理示意如图 5a 所示, 表现为在界面处的金属中微孔形成和聚集连接直至断裂的过程。而由于 Cu 与 Al₂O₃ 的界面结合强度较弱, 无 Nb 膜中间层的 Cu/Al₂O₃ 接头的断裂则表现为较脆性的界面分离, 如图 5b 所示。在这种情况下, 塑性变形仅限于裂纹尖端附近塑性区。因此, 断裂所消耗的塑性变形功大大低于前者。

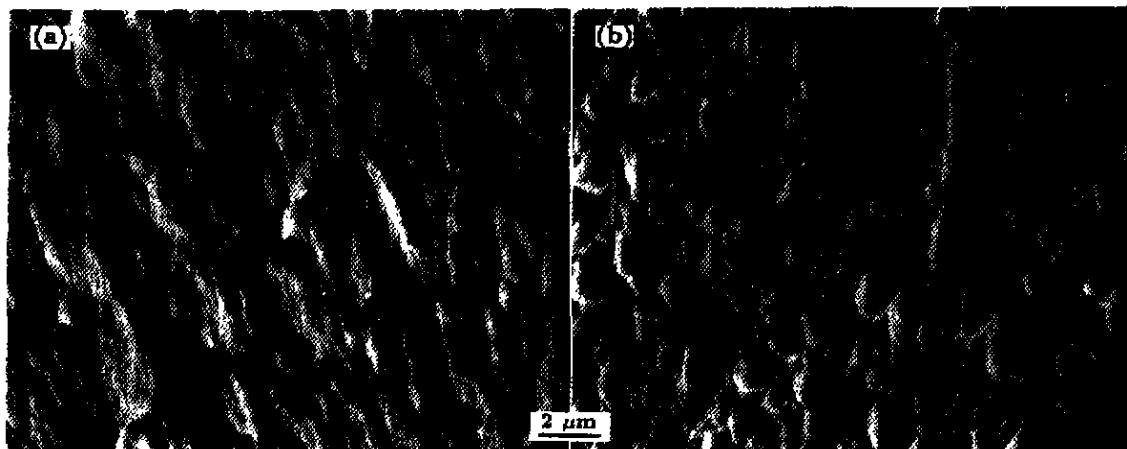


图4 带有60 nm厚的Nb膜中间层的Cu/Nb/Al₂O₃接头断面形貌
 Fig.4 SEM micrographs of fracture surfaces from a Cu/Nb/Al₂O₃ joint with 60 nm thick Nb interlayer
 (a) the Al₂O₃ side where residual Cu was residing (b) the Cu side

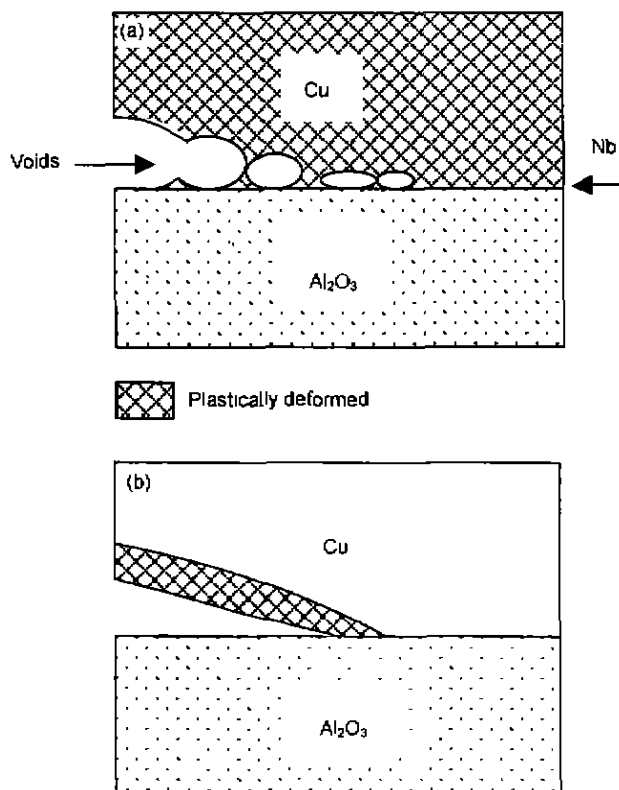


图5 两种陶瓷-金属界面断裂形式示意图
 Fig.5 Schematic of two types of interface fracture in metal/ceramic joints
 (a) ductile fracture (b) brittle fracture

3 结论

(1) 陶瓷-金属界面的晶体位向关系影响界面粘功和断裂时金属侧所消耗的塑性变形功, 从而影响其接头断裂能量值.

(2) 具有 $\{111\} [1\bar{1}0]_{Cu} \parallel (0001) [11\bar{2}0]_{Al_2O_3}$ 界面位向关系的 Cu/Al₂O₃ 扩散焊接头的断裂能量高于位向关系为 $(100) [011]_{Cu} \parallel (0001) [11\bar{2}0]_{Al_2O_3}$ 的接头断裂能量.

(3) 具有 $\{100\} [011]_{Cu} \parallel (0001) [11\bar{2}0]_{Al_2O_3}$ 界面位向关系的 Cu/Nb/Al₂O₃ 扩散焊接头的断裂能量显著高于位向关系为 $\{111\} [1\bar{1}0]_{Cu} \parallel (0001) [11\bar{2}0]_{Al_2O_3}$ 的 Cu/Nb/Al₂O₃ 接头断裂能量.

本研究工作是在德国 Max-Planck 金属研究所完成的, 特此致谢.

参考文献

- [1] Huang Y, Wu J G. *Mater Sci Prog*, 1990; 4(2): 150 (黄勇, 吴建光. 材料科学进展, 1990; 4(2): 150)
- [2] Beraud C, Courbiere M, Esnouf C, Juve D, Treheux D. *J Mater Sci*. 1989; 24: 4545
- [3] Liu W, Elssner G, Rühle M. *Mater Sci Eng*, 2000 (in press)
- [4] Jokl M L, Vitek V, McMahon Jr C J. *Acta Metall*, 1980; 28: 1479
- [5] Mulder C A M, Klomp J T. *J Phys*, 1985; C4: 111
- [6] Dehm G. *Ph D Dissertation*, University of Stuttgart, Stuttgart, 1995