

高氮钢/氧化铝陶瓷异质钎焊界面组织与力学性能分析

常嘉硕^{1,2}, 王星星¹, 吴港¹, 王帅¹, Rocco Lupoi³, Mohamed Rachik⁴, 张冠星⁵,

常云峰⁵

(1. 华北水利水电大学 河南省高效特种绿色焊接国际联合实验室, 河南 郑州, 450045)

(2. 华北水利水电大学 水利学院, 河南 郑州, 450045)

(3. 爱尔兰都柏林圣三一大学, 都柏林, D02 PN40)

(4. 法国贡比涅技术大学, 贡比涅, 60200;)

(5. 中国机械总院集团郑州机械研究所有限公司 高性能新型焊接材料全国重点实验室, 河南 郑州, 450001)

摘 要:为实现热电器件领域高氮钢热沉基板与氧化铝陶瓷异质接头的可靠连接, 采用 AgCuTi 钎料对 P580 高氮钢与氧化铝陶瓷进行真空钎焊, 系统分析钎焊温度对接头界面组织与力学性能的影响规律。研究表明, 在 910 °C、10 min 工艺下获得最佳接头, 接头剪切强度最高达 53.74 MPa, 其界面结构为 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}/\text{Ag}(\text{s},\text{s})+\text{Cu}(\text{s},\text{s})+\text{TiCu}/\text{TiN}/\text{高氮钢}$, 陶瓷侧形成连续致密的 $\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}$ 反应层, 高氮钢侧生成 TiN 化合物。此时断裂发生于陶瓷近钎缝区, 温度过高或过低均导致反应层不连续或破碎, 降低接头强度。Ag 与 Cu 固溶体具有良好的塑性, 有助于缓解残余应力, 而 $\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}$ 反应层的厚度与连续性对界面应力状态及接头性能具有关键影响。本研究为高氮钢与氧化铝陶瓷功能性连接提供了一种高可靠钎焊工艺方案。

关键词: 高氮钢; 氧化铝陶瓷; 异质钎焊; 银基钎料; 界面组织

中图法分类号: TG454

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2017)0?-0??-0?

1 引言

热电转换技术作为一种绿色能源、环保型新能源技术, 在新能源汽车、空间探测等领域广泛应用, 其器件通常由热电材料、电极材料、互联导电片、绝缘陶瓷片及热沉板等有序连接制造^[1-2]。高氮钢以氮元素替代镍元素, 具备高强度、无磁性、经济性、耐腐蚀等特点, 在医疗器械、能源化工与航空航天等领域中应用广泛^[3-5], 是热沉板的最佳选择材料之一。氧化铝、氮化铝等陶瓷具有出色的强度、硬度、耐高温性、耐蚀性、耐磨性等优点, 但高硬度、脆性使其加工性差, 通常需与金属材料连接应用^[6-7]。在热电器件制造中, 高氮钢与氧化铝陶瓷凭借其优异的理化特性, 成为热沉板与绝缘陶瓷片的理想材料。目前, 钎焊因其能够实现陶瓷与金属高强度、高密封性的冶金结合, 被认为是实现该类异质连接的首选方法^[8]。

对于热电转换器件中热沉板与绝缘陶瓷片的异质连接, 钎料需同时满足低温连接、良好润湿、界面反应

可控、热传导性能优良及残余应力缓解等要求。AgCuTi 活性钎料具有较低的熔化温度和良好的流动性, 其中 Ti 元素可与陶瓷发生界面反应, 形成 Ti-O 或 Ti-Cu-O 活性反应层, 从而改善陶瓷润湿性并实现冶金结合。Ag-Cu 基体具有良好的塑性和热传导能力, 有利于缓解金属/陶瓷热膨胀失配产生的残余应力。此外, Ti 还可与钢中的 C 或 N 元素反应形成反应层, 增强钢侧界面结合。因此, AgCuTi 体系钎料适用于高氮钢/ Al_2O_3 陶瓷热电构件的可靠连接^[9,10]。

金属/陶瓷钎焊连接存在钎料与陶瓷不润湿、金属与陶瓷热膨胀系数差异大、界面残余应力等瓶颈问题^[11], 连接界面反应是国内外学者研究的热点。Lv 等^[12]开发新型 TiN/AgCuTi 复合钎料, 成功实现了 AlN 陶瓷与铜箔的高强度连接, 其中 TiN 颗粒的添加显著优化了界面反应层结构, 并促进了细小的 TiCu 相形成, 提升了接头的力学性能与热匹配性。Yang 等^[13]采用石墨烯增强 Ag-Cu-Ti 复合钎料, 成功实现了 17-4PH 不锈钢与 Al_2O_3 陶瓷的高可靠连接, 其中石墨烯的添加显著促进了钎缝

收到初稿日期:

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(52475347); 河南省重点研发计划项目(251111222600); 中原科技创新领军人才项目(254200510047); 河南省基础研究专项(26ZX018); 河南省高端外国专家引进项目(HNGD2025026); 河南省国际科技合作项目(242102521057)

作者简介: 常嘉硕, 男, 1998 年生, 博士研究生, 华北水利水电大学河南省高效特种绿色焊接国际联合实验室, 河南 郑州 450045,

E-mail: ncwuchangjiashuo@163.com

通讯作者: 王星星, 男, 1984 年生, 博士, 教授, 华北水利水电大学河南省高效特种绿色焊接国际联合实验室, 河南 郑州 450045,

E-mail: wangxingxing@ncwu.edu.cn

中 TiC 颗粒的原位形成,并细化了接头微观组织,从而提升了接头的力学性能。Pan 等^[14]使用 Ag-Cu-Ti 活性钎料,在 850℃成功实现了 Ti₃AlC₂陶瓷与 40Cr 钢的高强度连接,适当的保温时间显著促进了钎料/钢界面连续反应层的形成,使接头剪切强度提升至 196.4 MPa。Ma 等^[15]采用 AgCuTi 钎料真空钎焊 SiC 陶瓷与不锈钢,在 890℃、15 min 条件下,接头形成了具有增韧作用的富 Cu 相区,剪切强度达约 67 MPa。过高温或过长保温时间导致 Fe 过度扩散、脆性相聚集及 Cu 渗入陶瓷,导致接头强度下降。Fang 等^[16]采用 Ag-Cu-In-Ti 活性钎料实现了 ZrO₂陶瓷与 316 不锈钢真空钎焊,适当的保温时间可显著促进 TiO/Cu₂Ti₄O 反应双层与 FeTi 等化合物的生成,使接头剪切强度大幅提升。上述工作为金属/陶瓷钎焊提供了重要参考,但针对高氮钢/氧化铝陶瓷异质连接的工艺调控与界面形成机制尚未系统探究。

在热电转换器件中,为实现高氮钢与氧化铝陶瓷之间的可靠连接,必须确保界面反应形成高强度结合,故需通过精确调控钎焊工艺来优化界面组织结构与力学性能。针对上述问题,本文采用 AgCuTi 活性钎料对高氮钢与氧化铝陶瓷进行真空钎焊,系统探究钎焊温度对接头界面组织、元素分布、反应层形成机制及剪切强度的影响规律,以阐明工艺参数-微观组织-力学性能之间的内在关联,为热电转换构件中高氮钢/氧化铝陶瓷应用提供理论依据。

2 试验方法

试验所用高氮钢为牌号 P580 奥氏体 Mn-Cr-N 钢,其抗拉强度达 1035 MPa,硬度为 37.7 HRC,具体成分见表 1。所用 Al₂O₃ 陶瓷通过热压烧结工艺制备,其抗弯强度为 290 MPa,硬度为 80 HRA,热膨胀系数为 7.6×10⁻⁶/℃,相应的微观组织及 XRD 谱图如图 1(a)与(c)所示。钎料选用商用 AgCu-4wt.%Ti 活性钎料粉末,液相线温度约为 820℃,采用真空氩气雾化工艺制备。由图 1(b)所示,粉末整体呈规则球形,表面附着少量卫星粉,表现出典型雾化粉末形貌。上述母材与钎料理化特性均由材料供应商提供的检测报告获得。

表 1 P580 高氮钢化学成分(wt.%)

Table 1 Chemical compositions of high-nitrogen steel

Element	C	Mn	Cr	Ni	Mo	N
wt.%	≤0.3	22.00-24.50	20.50-22.00	≤2.50	≤1.50	≥0.75

如图 1(d)所示,将 Al₂O₃ 陶瓷与 P580 高氮钢分别加工为 5 mm×5 mm×5 mm 与 10 mm×10 mm×5 mm 的试样,待焊表面经打磨抛光并超声清洗后,按陶瓷/钎料/高氮钢“三明治”结构装配。为保证不同工艺条件下初始钎料用量一致,焊前采用精密电子天平称取相同质量

的 AgCuTi 粉末钎料,并按相同粉末/溶剂比例加入有机溶剂调制成膏状钎料,随后均匀涂覆于 Al₂O₃ 陶瓷与高氮钢待焊区域。钎料初始位置仅位于接头间隙内,待有机溶剂挥发后,置于真空钎焊炉中进行钎焊。

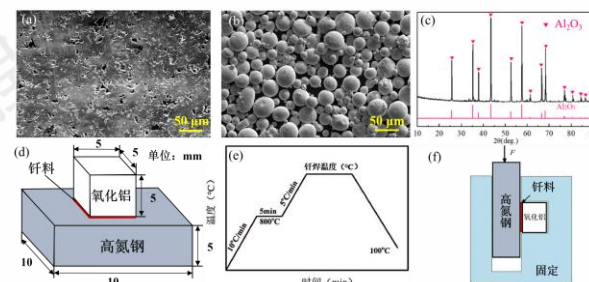


图 1 母材表征及钎焊实验

Fig.1 Characterization and experiments of brazing materials: (a) Microstructure of Al₂O₃ ceramic and (b) AgCuTi Filler metal; (c) XRD pattern of Al₂O₃ ceramic; (d) Schematic diagram of brazing assembly; (e) brazing process parameters; (f) Schematic diagram of shear test.

钎焊工艺如图 1(e)所示,结合所用 AgCuTi 钎料液相线温度、母材特性及同类 Ag-Cu-Ti 钎料钎焊 Al₂O₃/金属体系的工艺参数^[13],选取 850℃、880℃、910℃和 940℃作为代表钎焊温度。适当的保温时间可为钎料充分熔化、铺展及元素向界面扩散反应提供必要条件,同时可避免保温时间过长导致反应层过度增厚、脆性相增多及残余应力集中。本文重点关注钎焊温度对高氮钢/Al₂O₃ 陶瓷接头组织与性能的影响,基于已有同类 AgCuTi 钎料钎焊 Al₂O₃/金属体系中常用保温范围及控制变量原则^[13,17],将保温时间均设定为 10 min。

采用 TESCAN VEGA3 扫描电子显微镜观察接头微观组织,并利用配备能谱仪分析元素分布及含量。采用 Rigaku SmartLab SE 型 X 射线衍射仪对钎焊试样断口区域进行物相分析。采用 Bruker Hysitron TI980 纳米压痕仪,测试母材及钎缝中各物相的硬度与弹性模量。使用 INSTRON-5582 电子万能试验机对钎焊接头进行室温剪切强度测试,加载速度为 0.2 mm/min。该加载速率参考同类陶瓷/金属钎焊接头准静态剪切测试条件确定^[18,19],较低加载速率有利于降低动态冲击和加载惯性对脆性陶瓷/金属异质接头断裂行为的影响,使测试结果更能反映接头界面组织与冶金结合状态。剪切示意图如图 1(f)所示,每组工艺参数测量三次剪切强度取平均值。

3 试验结果与分析

3.1 高氮钢/氧化铝陶瓷接头典型界面结构

在钎焊温度 910℃、保温时间 10 min 的条件下,高氮钢/氧化铝钎焊接头的微观组织与元素分布如图 2 所示。图 2(a)观察到钎料在陶瓷基体表面出现明显的爬升

现象,表明 AgCuTi 钎料对 Al_2O_3 陶瓷具有良好的润湿性。图 2(b)显示在钎缝区域未观察到明显的孔洞、裂纹等微观缺陷,钎料与陶瓷之间形成了均匀且致密的反应层。上述结果表明,采用 AgCuTi 钎料在该工艺下能实现高氮钢与 Al_2O_3 陶瓷的可靠连接。

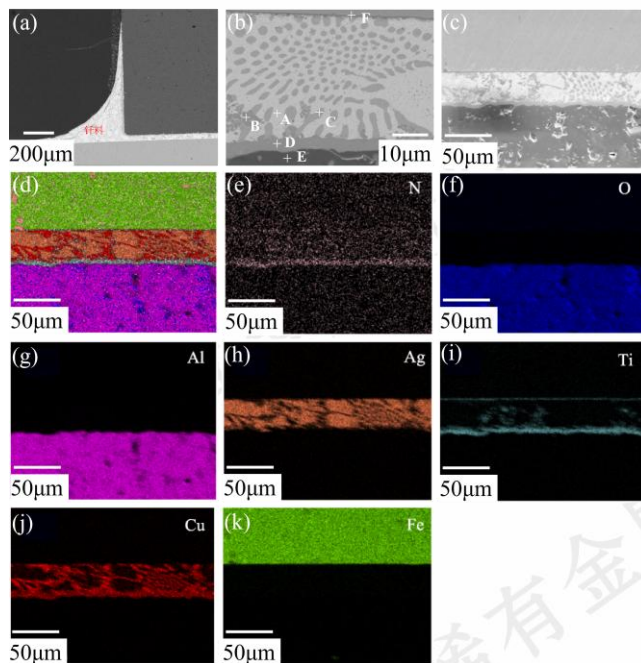


图2 高氮钢/氧化铝接头 910 °C典型微观组织与元素分布

Fig.2 Typical microstructure and element distribution of the high-nitrogen steel/alumina joint brazed at 910°C: (a) filler metal climbing; (b) Typical microstructure of the joint; (c)-(k) Element distribution in the joint.

为确认钎焊接头的微观组织构成,对钎缝区域进行能谱分析。如图 2(c)至(k)所示, N、O、Al、Ag、Ti、Cu 与 Fe 元素在接头不同区域呈现明显的分布差异。高氮钢中的 N 元素在钎焊过程中扩散至钎缝内部, Ag 与 Cu 元素主要分布于钎缝中心区域。活性元素 Ti 主要富集于陶瓷侧与高氮钢侧的反应层,在陶瓷界面区 Ti 与 Cu、O 元素分布重合,推测可能形成 Ti-Cu-O 类化合物。在高氮钢界面区,由于 N 与 Ti 之间具有较强的化学亲和性,可能生成 N-Ti 化合物。在钎缝中心区域,部分 Ti 元素的分布与 Cu 高度重合,表明该区域的 Ti 为未参与界面反应的残留部分,可能以 TiCu 金属间化合物的形式存在。此外,高氮钢中的 Fe、Cr、Mn 等元素仅有微量扩散进入钎缝,且呈均匀分布。

为进一步明确钎缝及界面反应层物相组成,对图 2(b)中典型区域进行 EDS 点扫分析,结果如表 2 所示。结合点扫结果、元素分布及相关文献可知, A 点和 C 点分别为 Ag 基固溶体与 Cu 基固溶体^[13,17]; B 点富集 Ti 与 Cu 元素,推测为 TiCu 金属间化合物,主要为 TiCu 相^[13]; D 点位于钎料/ Al_2O_3 界面反应层,富集 Ti、Cu 和 O 元

素,可判定为 $\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}$ 反应层^[9,10]; E 点主要由 Al 和 O 组成,对应 Al_2O_3 陶瓷基体。已有研究表明,在 Ag-Cu-Ti 活性钎焊 Al_2O_3 过程中,活性元素 Ti 优先向陶瓷界面偏聚,并与 Al_2O_3 反应形成 Ti-O 过渡层,同时释放少量 Al。随后, TiO 在高温下进一步与液态钎料中的 Cu 反应,生成较稳定的 $\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}$ 反应层^[9]。陶瓷侧反应层的形成过程可由式(1)和式(2)表示:

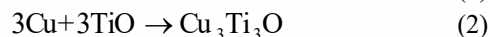
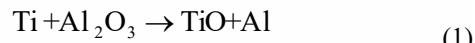


图 3 展示了 940 °C 条件下高氮钢侧反应层的元素分布情况。由图可见, Ti 与 N 元素在界面反应层中显著富集,且二者的空间分布高度重合。鉴于 Ti 与 N 之间具有较强的化学亲和力,高氮钢中的 N 元素扩散后优先与 Ti 发生反应。结合图 2 中 F 点能谱与元素分布结果可推断,高氮钢/钎料界面处形成了以 TiN 为主的反应层^[12]。上述结果表明,接头典型界面组织为 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}/\text{Ag}(\text{s},\text{s})+\text{Cu}(\text{s},\text{s})+\text{TiCu}/\text{TiN}/\text{高氮钢}$ 。

表2 图 2(b)中各点的元素分布(at.%)

Table 2 Element distribution at various points in Fig. 2(b)

	(at.%)							
	O	N	Al	Ag	Cu	Ti	Fe	可能相
A	-	-	0.1	87.2	12.6	-	0.1	Ag(s,s)
B	0.2	-	2.6	22.2	36.5	38.5	-	TiCu
C	-	-	-	5.6	92	2.4	-	Cu(s,s)
D	13.3	1.3	2.6	0.2	40.2	42.4	-	$\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}$
E	39.6	1.7	58.7	-	-	-	-	Al_2O_3
F	2.1	28.5	-	1.4	5.8	42.8	19.4	TiN

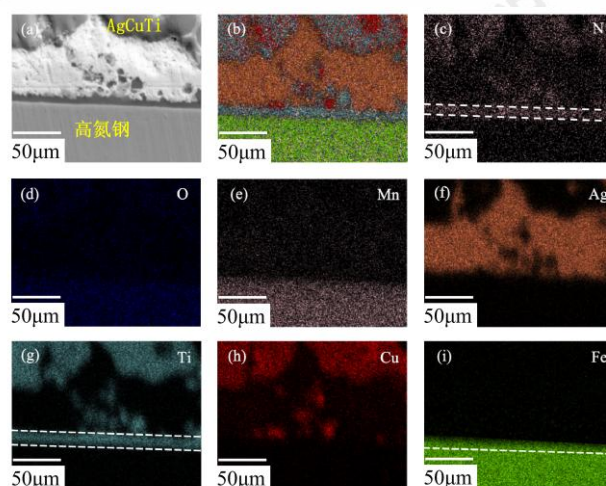


图3 940 °C高氮钢侧反应层元素分布

Fig.3 Element distribution of the reaction layer on the high-nitrogen steel side brazed at 940°C

3.2 钎焊温度对接头微观组织的影响

图 4 为 850 °C、880 °C、910 °C 和 940 °C 条件

下保温 10 min 所得接头的微观组织形貌, 钎焊温度对接头形貌特征及界面组织演化具有显著影响。随着钎焊温度由 850 °C 升高至 910 °C, 液态钎料的铺展性和流动性逐步提高, 钎缝厚度由约 57 μm 减小至 38 μm , 钎料与高氮钢及 Al_2O_3 陶瓷之间的结合更加紧密。与此同时, 钎缝中心区域逐渐形成分布较均匀的 Ag 基固溶体和 Cu 基固溶体, 并伴随少量 TiCu 金属间化合物析出。在 910 °C 条件下, 接头界面连续完整, 未见明显孔洞和裂纹等缺陷, 表明此时界面反应与组织匹配较为协调, 能够实现良好的冶金结合。继续升高钎焊温度至 940 °C 后, 钎缝厚度增大至 63.9 μm , 由于界面反应加剧以及钎缝中脆性 TiCu 相含量增加, 陶瓷侧 $\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}$ 反应层出现局部开裂和破碎, 导致接头完整性下降。

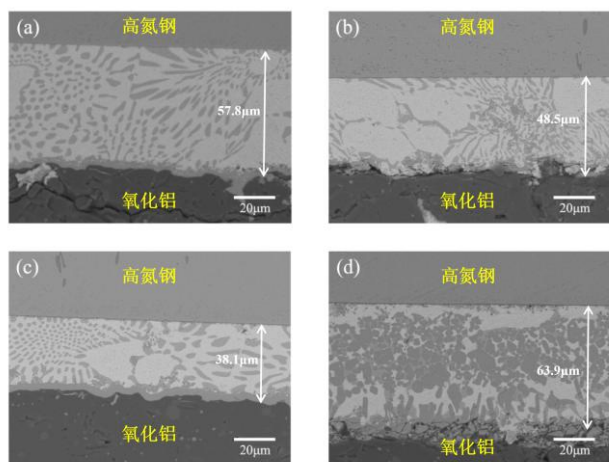


图4 接头不同温度下微观形貌

Fig.4 Microstructure of the joint at different brazing temperatures: (a) 850 °C; (b) 880 °C; (c) 910 °C; (d) 940 °C

进一步结合图 5 中界面局部放大形貌可知, 随着钎焊温度升高, 高氮钢侧和陶瓷侧反应层厚度均呈增加趋势。在高氮钢侧, 活性元素 Ti 与由高氮钢向界面扩散的 N 发生反应, 形成 TiN 反应层。当钎焊温度升高至 940 °C 时, 该反应层厚度增至 0.89 μm , 增强了钎料与高氮钢之间的冶金结合。相比之下, 陶瓷侧反应层的演化对接头性能影响更为显著。在 880 °C 条件下, 由于界面反应动力学仍相对不足, 陶瓷侧生成的 $\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}$ 反应层较薄, 连续性与结合质量相对有限。此外, Al_2O_3 陶瓷侧局部区域存在细小裂纹或反应层剥离现象, 推测其主要与低温条件下反应层形成不充分、界面结合强度不足及冷却过程中金属/陶瓷热膨胀失配产生的残余应力有关。当温度升高至 940 °C 时, 虽然 $\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}$ 反应层明显增厚, 但由于该相本征脆性较大, 且与 Al_2O_3 陶瓷之间存在较大的热膨胀失配, 冷却过程

中界面残余应力显著升高, 进而诱发反应层开裂及微裂纹形成, 最终削弱接头界面结合强度。

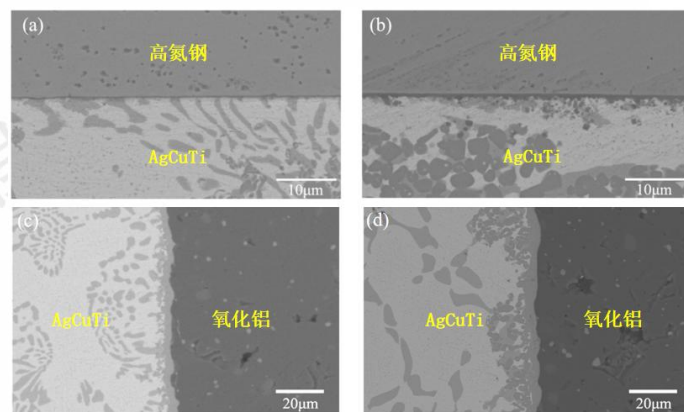


图5 880 °C与 940 °C钎料/母材界面反应层

Fig.5 Reaction layers at the filler metal/base metal interface: (a) and (b) on the high-nitrogen steel side at 880 °C and 940 °C, (c) and (d) on the ceramic side at 880 °C and 940 °C.

3.3 高氮钢/氧化铝陶瓷接头组织演变规律

结合前文内容, 可将 AgCuTi 钎料钎焊高氮钢/ Al_2O_3 陶瓷接头的组织演变过程概括为以下几个阶段, 如图 6 所示。首先, 在加热至钎料液相线后, AgCuTi 钎料熔化并在毛细作用和界面润湿作用下于接头间隙内铺展、填充, 部分液态钎料在润湿作用下向接头边缘流动, 并沿 Al_2O_3 陶瓷侧壁向上爬升。与此同时, 活性元素 Ti 由钎缝中心向两侧母材界面偏聚, 高氮钢中的 N 以及少量 Fe、Cr、Mn 等元素向钎缝区域扩散, 为后续界面反应提供条件。

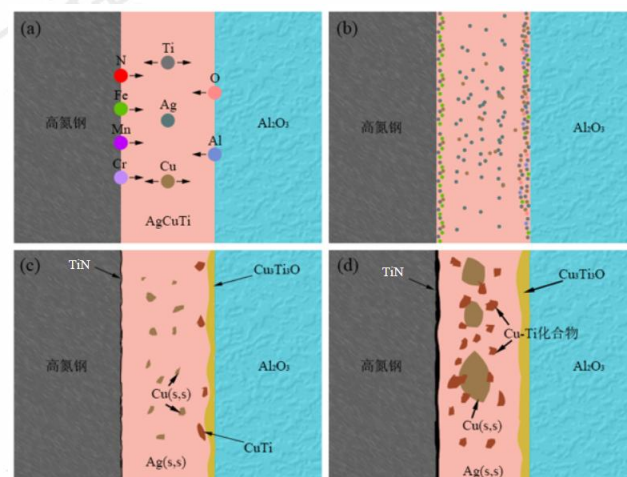


图6 高氮钢/氧化铝钎焊接头组织演变示意图

Fig.6 Schematic diagram of microstructure evolution in the high-nitrogen steel/alumina brazed joint

随着保温过程进行, 两侧界面反应逐步建立。在高氮钢侧, Ti 与扩散至界面的 N 优先发生反应, 形成 TiN 反应层。在 Al_2O_3 陶瓷侧, Ti 首先与陶瓷表面发生反应形成 Ti-O 过渡层, 随后与 Cu 进一步

形成 $\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}$ 反应层。同时, 钎缝内部未参与界面反应的 Ti 与 Cu 结合, 形成 TiCu 金属间化合物, 未被界面反应消耗的残余液相在冷却凝固后形成 Ag 基固溶体和 Cu 基固溶体。钎缝中心区主要由 Ag 基固溶体、Cu 基固溶体及少量 TiCu 相组成, 接头最终形成 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}/\text{Ag}(\text{s},\text{s})+\text{Cu}(\text{s},\text{s})+\text{TiCu}/\text{TiN}$ /高氮钢的典型界面结构。

3.4 钎焊温度对接头力学性能的影响

不同钎焊温度下高氮钢/ Al_2O_3 陶瓷接头的剪切强度如图 7(a)所示, 随着钎焊温度由 850 °C 升高至 910 °C, 接头剪切强度呈明显上升趋势, 并在 910 °C 时达到最大值 53.74 MPa。当温度进一步升高至 940 °C 时, 接头剪切强度下降至 38.12 MPa, 表明钎焊温度对接头力学性能具有显著影响, 且存在最佳工艺窗口。值得注意的是, 图 2(a)所示 910 °C 接头陶瓷侧存在钎料爬升现象, 可能扩大局部承载区域并缓解界面边缘应力集中, 从而对表观剪切强度产生一定影响。然而, 本文各组试样的装配方式、钎料用量、加载方式及强度计算方法保持一致, 剪切强度均以名义搭接面积为基准, 因此钎脚不改变不同钎焊温度下强度变化趋势。

结合界面组织可知, 接头强度并非由 $\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}$ 反应层单独决定, 而是受反应层连续性与厚度、钎缝中 TiCu 脆性相含量、Ag/Cu 固溶体塑性缓冲作用以及金属/陶瓷热膨胀失配残余应力共同影响^[20-21]。适中且连续的 $\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}$ 反应层有利于界面载荷传递, Ag/Cu 固溶体可缓解残余应力; 而反应层不连续、过度增厚或 TiCu 相增多均会削弱接头塑性协调能力并促进裂纹萌生。因此, 接头强度随钎焊温度升高呈先升高后降低趋势。在较低温度下界面反应不足, 难以形成连续有效的冶金结合; 在较高温度下则因界面过度反应和钎缝脆化而导致接头性能下降。

图 7(b)展示了不同温度下接头的断裂路径示意。随着钎焊温度升高, 接头断裂位置由界面反应层附近逐步向陶瓷侧内部转移, 这反映出界面结合强度逐渐提高。然而当温度过高时, 裂纹仍倾向于在陶瓷近界面区域萌生并扩展, 表明高温条件下界面残余应力和局部脆化效应重新成为接头失效的主导因素。由此可见, 断裂路径的变化与接头强度演化具有良好对应关系, 而界面反应层由不连续发展为连续致密、进而过度增厚并发生损伤, 是接头强度先升高后降低的根本原因。

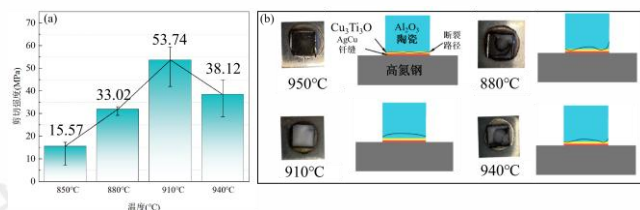


图 7 不同温度下接头的剪切强度与断裂路径

Fig.7 (a)Shear strength and (b)fracture path of the joint under different temperatures

在 850 °C 条件下, 钎料熔化和铺展能力有限, 且与 Al_2O_3 陶瓷之间的界面反应较弱, 导致陶瓷侧形成的 $\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}$ 反应层较薄且连续性较差, 难以有效传递外加载荷, 故接头剪切强度仅为 15.57 MPa。图 8(a)所示断口形貌表明, 断口表面可观察到细小的 Al_2O_3 颗粒, 说明局部区域反应层与陶瓷基体之间仍具有一定结合能力。结合图 8(b)断口 XRD 结果可知, 断口主要由 $\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}$ 相组成, 并伴有少量 Al_2O_3 和 Ag 相, 表明裂纹主要沿陶瓷侧反应层附近扩展, 接头失效的主要原因在于反应层不连续及其承载能力不足。当钎焊温度升高至 880 °C 时, 液态钎料对陶瓷的润湿性和界面反应程度有所改善, 陶瓷侧反应层逐渐趋于完整, 接头强度相较 850 °C 明显提高。图 8(c)所示断口元素分布表明, 断裂界面区域主要富集 O、Ti 和 Cu 元素, 说明裂纹萌生位置仍与 $\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}$ 反应层密切相关。该结果表明, 虽然此时陶瓷侧已形成一定厚度的反应层, 但其连续性和界面结合质量仍不足以完全避免裂纹在反应层附近萌生, 因此接头尚未达到最佳力学性能。

当钎焊温度升高至 910 °C 时, 此时陶瓷侧形成了连续且厚度适中的 $\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}$ 反应层, 高氮钢侧形成 TiN 反应层, 钎缝内部主要由 Ag 基固溶体、Cu 基固溶体及少量 TiCu 金属间化合物构成, 界面结合状态和钎缝塑性匹配较为协调。图 9 所示断口形貌表明, 断口整体呈拱形特征, 裂纹起源于靠近钎缝/陶瓷界面区域, 并向 Al_2O_3 陶瓷内部扩展, 最终贯穿断裂。断口表面较为平整, 未见明显塑性形变痕迹, 表现出典型的脆性断裂特征。进一步放大可见晶界呈网状分布, 裂纹多沿晶界弯曲扩展, 为沿晶断裂主导并伴有局部穿晶断裂的混合断裂模式^[22]。该结果说明, 在 910 °C 条件下, 界面结合强度已高于陶瓷近界面区域的局部承载能力, 因此断裂由界面失效转变为陶瓷侧失效, 这也是接头强度达到最大值的直接原因。

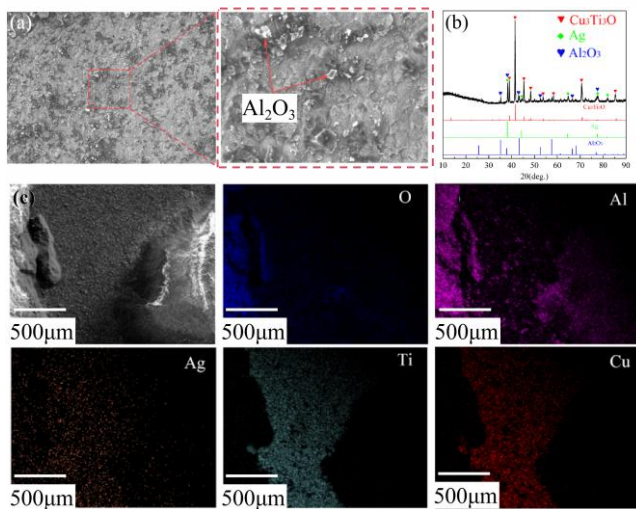


图 8 850 °C断口微观组织、XRD 谱图与 880 °C断口元素分布
Fig.8 Fracture surface of the joint brazed at 850 °C: (a) microstructure, (b) XRD pattern, and (c) element distribution of the fracture surface brazed at 880 °C

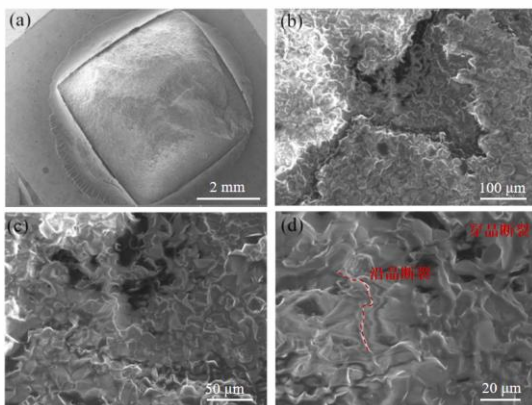


图 9 910 °C接头断口的微观形貌

Fig.9 Microstructure of the fracture surface of the joint brazed at 910 °C.

当钎焊温度进一步升高至 940 °C时, 较高温度促进了陶瓷侧 $\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}$ 反应层和高氮钢侧 TiN 反应层进一步增厚, 同时钎缝中 TiCu 金属间化合物含量增加。虽然界面反应更加充分, 但 $\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}$ 反应层本征脆性较大, 且其热膨胀系数明显高于 Al_2O_3 陶瓷, 冷却过程中更易在界面附近积累较大的热失配应力和残余应力, 进而引发反应层开裂或局部破碎。与此同时, 钎缝中脆性 TiCu 化合物的增多削弱了 Ag 、 Cu 固溶体对应力的缓冲能力, 导致接头整体塑性协调能力下降。因此, 940 °C条件下接头虽然仍具有一定界面结合强度, 但由于界面脆化和残余应力集中效应增强, 最终使其力学性能低于 910 °C接头。

高氮钢侧 TiN 反应层是区别于普通钢/陶瓷钎

焊体系的重要特征, 其对接头强度也具有一定影响。一方面, TiN 的形成说明活性元素 Ti 与高氮钢中的 N 发生界面反应, 可增强钎料与高氮钢之间的冶金结合, 降低钢侧界面断裂倾向; 另一方面, TiN 属于高硬度、高模量陶瓷相, 塑性变形能力较弱, 当其过度增厚时可能增加钢侧界面局部应力集中。然而, 结合本文断裂路径和断口形貌可知, 接头断裂主要发生在陶瓷侧反应层附近或陶瓷近钎缝区域, 并未沿高氮钢/ TiN 界面发生整体剥离, 说明钢侧 TiN 反应层不是接头失效的主要控制因素。相比之下, 陶瓷侧 $\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}$ 反应层的连续性、厚度以及钎缝中 TiCu 脆性相含量对接头力学性能的影响更为显著。

为进一步揭示钎缝组织对接头力学行为的影响, 对 910 °C条件下接头钎缝区域进行了纳米压痕测试, 结果如图 10 所示。由载荷-位移曲线可知, Ag 、 Cu 固溶体具有较大的塑性变形区, 而 $\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}$ 反应层和 Al_2O_3 陶瓷的弹性响应更为显著, 表明二者塑性变形能力较弱。结合图 10(b)可知, AgCu 固溶体的硬度和弹性模量最低, 而 $\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}$ 反应层的硬度和弹性模量明显高于 Ag 、 Cu 固溶体但低于 Al_2O_3 陶瓷, 说明钎缝中的 Ag 、 Cu 固溶体有利于缓解接头冷却过程中产生的残余应力, $\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}$ 反应层则主要承担界面载荷传递作用。当该反应层厚度适中且连续完整时, 可实现界面有效承载; 而当其过度增厚时, 则易因脆性较大和热失配显著而成为裂纹萌生源。由此可见, Ag 、 Cu 固溶体的塑性缓冲作用与 $\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}$ 反应层的厚度和连续性共同决定了高氮钢/ Al_2O_3 陶瓷钎焊接头的力学性能。

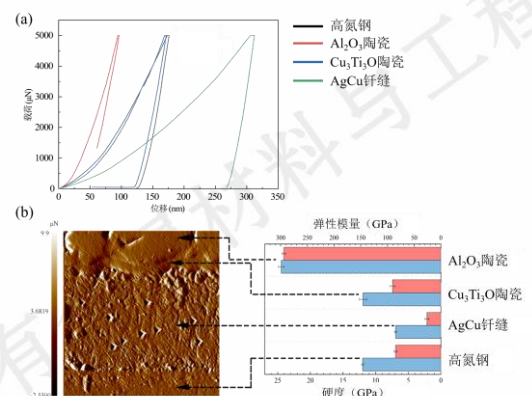


图 10 910°C接头载荷-位移曲线与硬度和弹性模量

Fig.10 (a) Load-displacement curve and (b) hardness and elastic modulus of the joint at 910 °C

4 结论

本文采用 AgCuTi 活性钎料对高氮钢与 Al_2O_3

陶瓷热电器件进行真空钎焊,系统研究了钎焊温度对接头界面组织结构与力学性能的影响规律。主要结论如下:

1) 在 910 °C保温 10 min 的工艺条件下,实现了高氮钢与 Al_2O_3 陶瓷的可靠连接,钎焊接头界面无明显缺陷。接头典型界面结构为: $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}/\text{Ag}(\text{s},\text{s})+\text{Cu}(\text{s},\text{s})+\text{TiCu}/\text{TiN}/$ 高氮钢,陶瓷与高氮钢侧分别形成连续的 $\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}$ 与 TiN 反应层。

2) 随着钎焊温度升高,界面反应层厚度增加,接头剪切强度先增大后减小,在 910 °C时达到最大值 53.74 MPa。 $\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}$ 反应层具有良好的应力承载与传递能力,断裂主要发生在陶瓷侧区域。当温度过高或过低时,界面反应层成为接头裂纹萌生与扩展的主要区域,接头剪切强度显著下降。

3) 纳米压痕试验表明,Ag 与 Cu 固溶体具有较高的塑性变形能力,有助于缓解界面残余应力。 $\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}$ 反应层显微硬度与弹性模量较高、脆性较大,其厚度与连续性对界面残余应力及接头整体性能具有关键影响。

参考文献 References

- [1]Lian Tongtong(连通通), Dong Xiaokun(董晓坤), Gao Jiangshan(高江珊) et al. *Chinese Science Bulletin*[J], 2022,67(14):1567-1578.
- [2] Wake Akihiro, Dai Inoue, Yutaka Moritomo et al. *Japanese Journal of Applied Physics*[J], 2022,62(1):014002.
- [3]Yang Ke, Ren Yibin, Peng Wan et al. *Science China Technological Sciences*[J], 2012,55(2):329-340.
- [4]Alexandr Svyazhin, Liudmila Kaputkina, Inga Smarygina et al. *Steel Research International*[J], 2022, 93(9):200160.
- [5]Wang Xingxing, Chang Jiashuo, Gao Di et al. *Rare Metal Materials and Engineering*[J], 2022,51(9):3223-3229.
- [6]Han Yitao(韩易滔), Liang Xiong(梁雄), Li Yawei(李亚伟) et al. *Journal of the Chinese Ceramic Society*[J], 2025,53(09):2539-2549.
- [7]Ding Kaidong, Li Xiang, Lu Xiang et al. *Journal of Materials Engineering*[J], 2025,53(04):75-90.
- [8]Wang Xingxing(王星星), Wu Gang(吴港), He Peng(何鹏) et al. *Rare Metal Materials and Engineering*[J],2022,51(7):2689-2697.
- [9]Fan Binbin(范彬彬), Zhao Lin(赵林), Xie Zhipeng(谢志鹏) et al. *Bulletin of the Chinese Ceramic Society*[J], 2022,41(01):241-248.
- [10]Kozlova O, Braccini M, Voytovych R, et al. *Acta Materialia*[J], 2010, 58(4): 1252-1260.
- [11]Wang Xingxing(王星星), Chen Benle(陈本乐), Jiang Yuanlong(蒋元龙) et al. *Rare Metal Materials and Engineering*[J], 2025,54(3):618-627.
- [12]Lv Jinling, Huang Yilian, Fu Renli et al. *Journal of the European Ceramic Society*[J], 2020, 40(15): 5332-5338.
- [13]Yang ZW, Yang JH, Han YJ et al. *Vacuum*[J], 2020,181:109604.
- [14]Pan Limei, Gu Jian, Zou Wenjie et al. *Journal of Materials Processing Technology*[J], 2018,251:181-187.
- [15]Ma Qiang, Li Shengguo, Chen Yongwei et al. *Crystals*[J], 2022,12(11), 1574.
- [16]Fang Miaomiao, Liu Ben, Wang Yong et al. *Vacuum*[J], 2023, 218: 112668.
- [17]Niu GB, Wang DP, Yang ZW, et al. *Ceramics International*[J], 2016, 42: 6924-6934.
- [18]Zhang Deku, Wei Zhengbiao, Wang Kehong, et al. *Ceramics International*[J], 2022, 48(24): 36953-36960.
- [19]Zhang Deku, Xiu Sihao, Wang Kehong, et al. *Journal of Manufacturing Processes*[J], 2024, 125: 442-455.
- [20]Li Yuhang, Wang Jun, Shen Ziyan, et al. *Frontiers of Materials Science*[J], 2023, 17: 230664.
- [21]Qie Lutong, Wang Tao, Yu Zhanlong, et al. *Welding in the World*[J], 2025, 69: 1607-1616.
- [22]Lv Jun(吕珺), Ding Houfu(丁厚福), Tang Wenming(汤文明) et al. *Physical Testing and Chemical Analysis (Part A: Physical Testing)*[J], 1997(09):22-24.
- [23]Fan Binbin, Xu Jingkun, Lei Huicong, et al. *Ceramics International*[J], 2022,48(13):18551-18557.
- [24]Dai Xiangyu, Cao Jian, Liu Jiaqi et al. *Materials Science and Engineering: A*[J], 2015, 646: 182-189.
- [25]Wu Mao, Cao Chezhen, Rafi ud din et al. *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*[J], 2013(6):1701-1708.
- [26]Qian Hangli, Han Yong, Zhang Kaiyu et al. *Vacuum*[J], 2023, 213: 112094.
- [27]Heloisa Ramlow, Hossein Ghasemi-Tabasi, Andreas Burn et al. *Journal of the European Ceramic Society*[J]. 2025: 117464.
- [28]Liu Quanming(刘全明), Xiao Junfeng(肖俊峰), Tang Wenshu(唐文书) et al. *Rare Metal Materials and Engineering*[J]. 2025,54(2):474-480.

Interfacial Microstructure and Mechanical Properties of High-Nitrogen Steel/Alumina Ceramic Heterogeneous Brazed Joints

Chang Jiashuo^{1,2}, Wang Xingxing¹, Wu Gang¹, Wang Shuai¹, Rocco Lupoi³, Mohamed Rachik⁴, Zhang Guanxing⁵,
Chang Yunfeng⁵

(1. Henan International Joint Laboratory of High-efficiency Special Green Welding, North China University of Water Resources and Electric Power, Zhengzhou 450045, China)

(2. School of Water Conservancy, North China University of Water Resources and Electric Power, Zhengzhou 450045, China)

(3. Trinity College Dublin, Dublin, D02 PN40, Ireland)

(4. University of Technology of Compiègne, Compiègne, 60200, France)

(5. State Key Laboratory of High Performance & Advanced Welding Materials, China Academy of Machinery Zhengzhou Research Institute of Mechanical Engineering Co., Ltd., Zhengzhou 450001, China)

Abstract: To investigate a reliable joining method for heterogeneous joints between high-nitrogen steel and alumina ceramic, vacuum brazing of P580 high-nitrogen steel and alumina ceramic was carried out using AgCuTi filler metal. The influence of brazing temperature on the interfacial microstructure and mechanical properties of the joint was systematically analyzed. The results show that the optimal joint was obtained under the process parameter of 910 °C/10 min. Its interfacial structure was $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}/\text{Ag}(\text{s},\text{s})+\text{Cu}(\text{s},\text{s})+\text{TiCu}/\text{TiN}/\text{high-nitrogen steel}$. A continuous and dense $\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}$ reaction layer formed on the ceramic side, while TiN compounds were generated on the high-nitrogen steel side. The maximum shear strength of the joint reached 53.74 MPa, with fracture occurring in the ceramic near the brazed seam. Excessively high or low temperatures led to discontinuous or fragmented reaction layers, thereby reducing joint strength. The Ag and Cu solid solutions exhibited good plasticity, which helped alleviate residual stress, while the thickness and continuity of the $\text{Cu}_3\text{Ti}_3\text{O}$ reaction layer played a key role in the interfacial stress state and joint performance. This study provides a reliable brazing process solution for the heterogeneous joining of high-nitrogen steel and alumina ceramic.

Key words: High-nitrogen steel; Alumina ceramic; Heterogeneous brazing; Ag-based filler metal; Interfacial microstructure

Corresponding author: Wang Xingxing, Ph. D., Professor, Henan International Joint Laboratory of High-efficiency Special Green Welding, North China University of Water Resources and Electric Power, Zhengzhou 450045, E-mail: wangxingxing@ncwu.edu.cn