中间层厚度对TLP扩散连接TC4钛合金接头组织和性能的影响

林 彤[1]，谢 红[2]，杨卫鹏[2]，赵文岐[1]，司晓庆[1]，李 淳[1]，张 迪[2]，褚 强[2]，亓钧雷[1]，曹 健[1]

(1. 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)

(2. 西安航天发动机有限公司，陕西 西安 710100)

摘 要：采用电沉积 Ni/Cu 层作为中间层实现了 TC4 钛合金瞬时液相（transient liquid phase, TLP）扩散连接，采用扫描电子显微镜、能谱仪和 X 射线衍射仪研究了 Cu 层厚度对 TC4 钛合金 TLP 连接接头界面微观组织和力学性能的影响，并结合 Ti-Cu 和 Ti-Ni 二元相图阐明了反应机制。结果表明，TLP 扩散连接接头的典型界面组织为 TC4/α-Ti+Ti_2(Cu, Ni)/TC4。随着电沉积 Cu 层厚度增加，扩散层和焊缝宽度增加，接头中央未焊合的孔洞消失，反应层中开始出现连续的 Ti_2(Cu, Ni)金属间化合物层且宽度逐渐增加。接头抗拉强度在电沉积 Cu 层厚度为 15 μm 时达到最大值 500 MPa。断口分析表明，所有 TLP 扩散连接接头均以解理断裂方式在焊缝处断裂。

关键词：TC4 钛合金；瞬时液相扩散连接；中间层厚度；界面组织；拉伸强度

中图法分类号：TG454 **文献标识码**：A **文章编号**：1002-185X(2023)07-2582-06

钛及钛合金具有密度低、强度高、耐腐蚀性好、耐高温的特点，因此作为关键的结构材料在航空、航天、武器装备等领域得到广泛应用[1-3]。TC4 钛合金为最常见的α+β双相钛合金，可用于液体火箭发动机的核心部件，特别是在涡轮泵中作为叶栅和围带的材料，因此制造高可靠性的涡轮泵组件的关键技术之一就在于钛合金围带与叶栅的连接技术。由于叶轮具有较为复杂的结构，常用的高热输入的熔化焊[1-5]和需施加大压力的扩散连接[6-7]无法使用，而钎焊所选用的 Ag 基、Ti 基和 Al 基等钎料成分复杂，在连接时接头内容易产生大量脆性的金属间化合物，造成接头性能降低[8-10]。瞬时液相（transient liquid phase, TLP）扩散连接兼具钎焊和扩散连接的优点，既不需要较高的压力，又能实现高强度和高精度连接。

以往的研究证明中间层成分和工艺参数对 TLP 接头的组织与性能有着重要的影响。钛合金 TLP 连接所用的中间层材料主要成分包括 Cu 和 Ni，根据 Ti-Cu 和 Ti-Ni 二元相图[11]，Cu 和 Ti 的共晶点温度较低，仅为 875 ℃，而 Ni 和 Ti 的最低共晶点为 942 ℃，同时 Cu 在β-Ti 中的溶解度较大，因此，Cu 是目前钛合金 TLP 连接中应用最多的中间层金属[12-13]。Deng 等[13]利用 Cu 作为中间层实现了 TC4 钛合金的 TLP 连接，发现连接温度为 930 ℃、保温时间为 30 min 时，可以得到连接良好的接头，典型组织为α-Ti 与 Ti_2Cu。Samavatian 等[14]。采用 Cu-Zn 作为中间层实现了 2024 铝合金与 TC4 钛合金的 TLP 连接，发现当连接时间为 30 min 时，接头的抗剪强度可以达到 37 MPa。朱春莉等[15]采用 Cu-Ni-Sn-P 非晶合金作为中间层实现了 TA2 纯钛的 TLP 连接，并发现随着保温时间的延长，残留中间层厚度减小，界面扩散层宽度增大。Norouzi 等[16]研究了保温时间对 Cu 箔作为中间层的 TC4 钛合金与 304 不锈钢的接头性能的影响规律，发现随着保温时间的延长，接头内金属间化合物的种类发生变化，当保温时间延长至 60 min 时，界面处金属间化合物消失，转变为β-Ti 固溶体，接头的强度也达到最高, 为 374 MPa。Song 等[17]将 Ti53311S 钛合金的连接温度升高至 1020 ℃，发现高温可以消除接头中脆性 Ti-Cu 化合物，但是连接温度大大超过母材β相转变温度，形成粗大的层片状α+β结构，使得母材性能恶化，导致接头性能急剧下降。

中间层厚度对 TLP 接头的组织和性能也有十分重要的影响[18]。然而，前期的研究却很少关注。此外，

收稿日期：2022-06-25

基金项目：国家自然科学基金杰出青年项目（52125502）；国家自然科学基金青年项目（52005131）；黑龙江省“头雁”团队项目（HITTY-20190013）

作者简介：林 彤，男，1995 年生，博士生，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：0451-86418146，E-mail: 19B909118@stu.hit.edu.cn

中间层均以箔片的形式置于待连接母材接头界面，对于复杂异形结构零件的 TLP 连接，箔片中间层的添加很难实现。因此本研究采用电沉积的方式在 TC4 合金表面沉积 Ni/Cu 层作为中间层，研究了 Cu 层厚度对 TC4 钛合金接头界面微观组织和力学性能的影响，并结合 Ti-Cu 和 Ti-Ni 二元相图阐明了反应机制。

1　实　验

TLP 扩散连接试验用母材为 TC4 棒材，直径 90 mm。采用电火花线切割将母材加工成高度为 35 mm 的试样，随后采用车削加工去除待焊面线切割痕迹，使得待焊面平整，且粗糙度 R_a 小于 0.8 μm。用丙酮超声清洗 10 min 去除油污，然后放入酸洗液（由 25 mL 硝酸、35 mL 盐酸、1000 mL 去离子水组成）中浸泡 8 min 以去除表面氧化膜，之后用乙醇清洗并吹干。采用直流电沉积的方式在 TC4 钛合金待焊面制备不同厚度的 Cu 层作为 TLP 扩散连接的中间层。为了增加电沉积 Cu 层与母材的结合力，首先在母材表面预镀一薄层 Ni（约 5 μm）。通过控制电沉积时间，最终在母材表面获得 5，10，15 和 20 μm 4 种不同厚度的 Cu 中间层。

将两侧都沉积有 Ni/Cu 的母材以面对面的对接形式装配后放入真空扩散炉中施焊，连接压力为 0.36 MPa，炉内真空度小于 1×10^{-3} Pa。根据 Ti-Cu 二元相图，Ti-Cu 体系的共晶点为 875 ℃，因此，为了保证在 TC4 界面处产生足够的共晶液相，本试验选择连接温度为 940 ℃、保温时间 30 min 的条件进行 TLP 扩散连接试验。连接过程中，首先以 20 ℃/min 的升温速率加热至 800 ℃，并在 800 ℃下保温 3 min 使炉内温度均匀化，之后以 5 ℃/min 的升温速率加热至 940 ℃，保温结束后以 10 ℃/min 的速度降温至室温。

采用 Merlin Compact 扫描电子显微镜（SEM）和能谱仪（EDS）分析 TLP 扩散连接接头的微观组织和元素分布。拉伸试验采用 AGXplus 电子万能试验机完成，加载速度为 1 mm/min，每种中间层厚度条件的接头抗拉强度取 5 个试样的平均值。拉伸试样尺寸的示意图如图 1 所示。采用 PANalytical XPERT X 射线衍射仪（XRD）对接头和拉伸断口表面进行物相分析。

2　结果与分析

2.1　典型 TLP 接头微观组织分析

图 2 给出了采用 15 μm 厚 Cu 中间层时，在 940 ℃下保温 30 min，连接压力 0.36 MPa 时 TLP 扩散连接 TC4 钛合金接头的组织及不同元素的 EDS 面分布。从图 2a 中可以看出，中间层与母材形成了良好的冶金结合，焊缝中没有未焊合孔洞或微裂纹等连续性缺陷。根据接头组织形貌可以将接头界面分为 3 个区域，即靠近 TC4 母材的扩散层（Ⅰ和Ⅲ）和中间反应层（Ⅱ）。图 2b~2f 为图 2a 中蓝色虚线框处的不同元素 EDS 面分布，结果表明，TC4 母材中的 Ti、Al、V 元素均由母材向焊缝中心发生了显著的扩散（图 2b, 2e 和 2f），且中心长条状浅

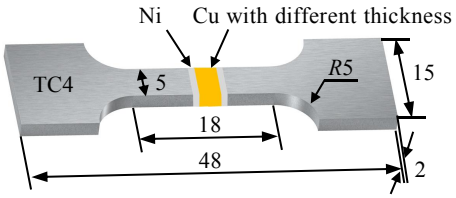


图 1　拉伸试样尺寸示意图

Fig.1　Schematic diagram of tensile test sample

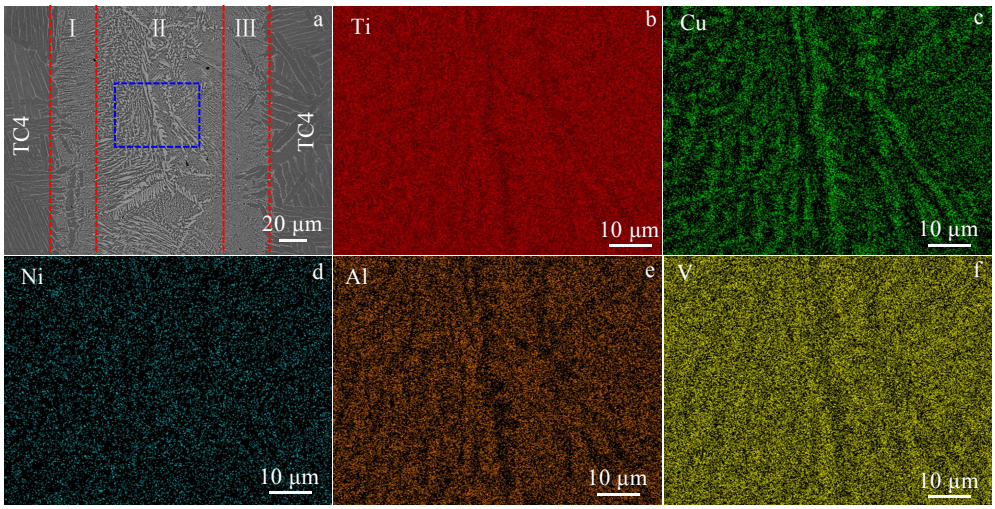


图 2　15 μm 厚 Cu 中间层的接头界面微观组织及不同元素的 EDS 面扫描

Fig.2　Typical interfacial SEM microstructure (a) and corresponding EDS elements mappings (b-f) of the joint bonded at 940 ℃ for 30 min using an electrodeposited Cu interlayer of 15 μm

灰色相处 3 种元素含量相对较低，而 Cu 元素主要聚集于浅灰色相处（图 2c）。同时，可以发现 Ni 元素的扩散较为剧烈（图 2d），已从初始的 Ti-Ni/Cu 界面扩散至接头中央，并在中间反应层中均匀分布，未发生聚集现象。

图 3 给出了接头扩散层 I 和反应层 II 微观组织的局部放大图。图中各点的相应能谱分析结果如表 1 所示。结合表 1 中 A、B 两点元素含量和图 4 所示的该接头处的 XRD 物相分析，可以确定扩散层的组织结构为片层 $Ti_2(Cu, Ni)$相分布于α-Ti 中。在焊缝中央反应层中，C 点深灰色相的 Ti 元素含量很高，其余元素含量相对较低，为α-Ti。D 点连续的长条状浅灰色相和 E 点块状灰色相中 Ti 和 Cu 的原子比接近 2:1，根据 Ti-Cu 和 Ti-Ni 二元相图可以推测，D 和 E 处均为 $Ti_2(Cu, Ni)$。F 处的元素含量比例与 B 处的相似，因此该处的组织也为 $Ti_2(Cu, Ni)$相分布于α-Ti 基体中。不同形状的 $Ti_2(Cu, Ni)$相代表了不同的相转变阶段[17]。图 4 接头的 XRD 图谱进一步表明焊缝中金属间化合物只有 $Ti_2(Cu, Ni)$，且 Cu 中间层没有剩余；同时，由于 Ni 原子半径小于 Ti 原子半径，引起晶面间距减小，导致α-Ti 的布拉格衍射峰向高角位轻微偏移。根据以上分析可知，使用 15 μm 厚电沉积 Cu 作中间层，在 940 ℃下保温 30 min，连接压力 0.36 MPa 时获得的典型接头界面组织为 TC4/α-Ti+$Ti_2(Cu, Ni)$/TC4。

2.2　中间层厚度对接头微观组织的影响

图 5 所示为采用不同厚度的电沉积 Cu 层作为中间层时，在 940 ℃下保温 30 min、连接压力 0.36 MPa

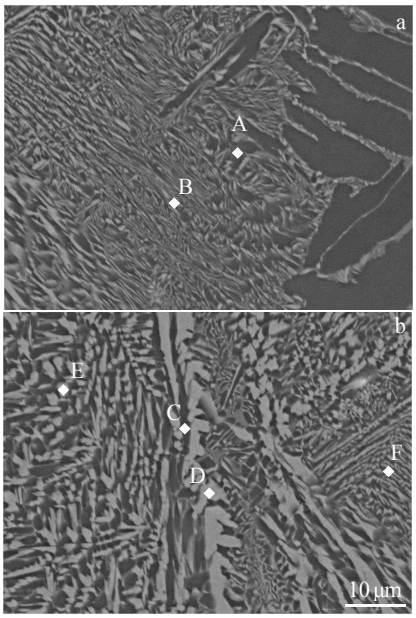


图 3　TLP 接头扩散层和反应层组织的高倍 SEM 照片

Fig.3　SEM magnification for the diffusion layer (a) and the reaction layer (b) of interfacial microstructure for the TLP joint

表 1　图 3 中各点的 EDS 分析结果及可能相

Table 1　EDS analysis results and possible phases of each point in Fig.3 (at%)

Point	Ti	Cu	Ni	Al	V	Possible phases
A	83.48	2.41	0.59	10.06	3.46	α-Ti
B	73.52	16.70	2.33	6.08	1.36	α-Ti+$Ti_2(Cu, Ni)$
C	81.34	3.47	2.93	8.58	3.69	α-Ti
D	64.93	26.20	4.04	4.13	0.69	$Ti_2(Cu, Ni)$
E	64.25	25.88	4.45	4.23	1.20	$Ti_2(Cu, Ni)$
F	71.65	17.20	3.01	6.53	1.62	α-Ti+$Ti_2(Cu, Ni)$

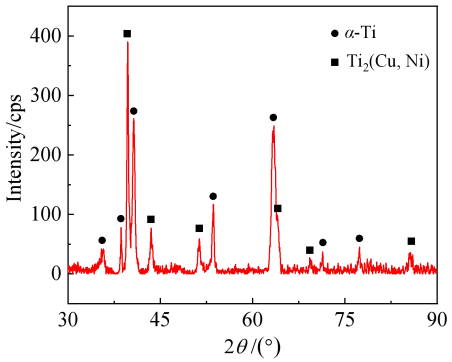


图 4　接头微区 XRD 图谱

Fig.4　XRD pattern of the joint as shown in Fig.3

时 TLP 扩散连接 TC4 接头的组织形貌及反应层相应位置的放大图。可以看出，当 Cu 中间层厚度减小至 5 μm 时（图 5a），反应层中连续的长条状 $Ti_2(Cu, Ni)$相消失，只有块状或团块状 $Ti_2(Cu, Ni)$相存在，同时可以看到焊缝中央出现未焊合的孔洞(如图 5a 的蓝色箭头所示)，这可能与 Cu 层较薄导致产生的共晶液相较少，对母材润湿不充分有关。当 Cu 中间层厚度增加至 10 μm 时（图 5b），反应层中开始出现连续的长条状 $Ti_2(Cu, Ni)$相，焊缝中央没有未焊合的孔洞。当中间层厚度进一步增加至 20 μm 时（图 5c），焊缝宽度明显增加，连续的 $Ti_2(Cu, Ni)$相宽度可达 28 μm，这可能对接头抗拉强度带来不利影响。

图 6 统计了扩散层和焊缝宽度随 Cu 中间层厚度的变化，与预期的一致，随着 Cu 中间层厚度的增加，扩散层和焊缝宽度逐渐增加。

2.3　连接机制

在升温过程或保温的初始阶段，Ti/Ni 和 Ni/Cu 界面处首先发生固相互扩散，使得 Ti 和 Cu 原子互相接触。根据 Ti-Cu 二元相图[11]，TLP 扩散连接温度为 940 ℃时，接头温度远超过 Ti-Cu 体系的共晶液相线

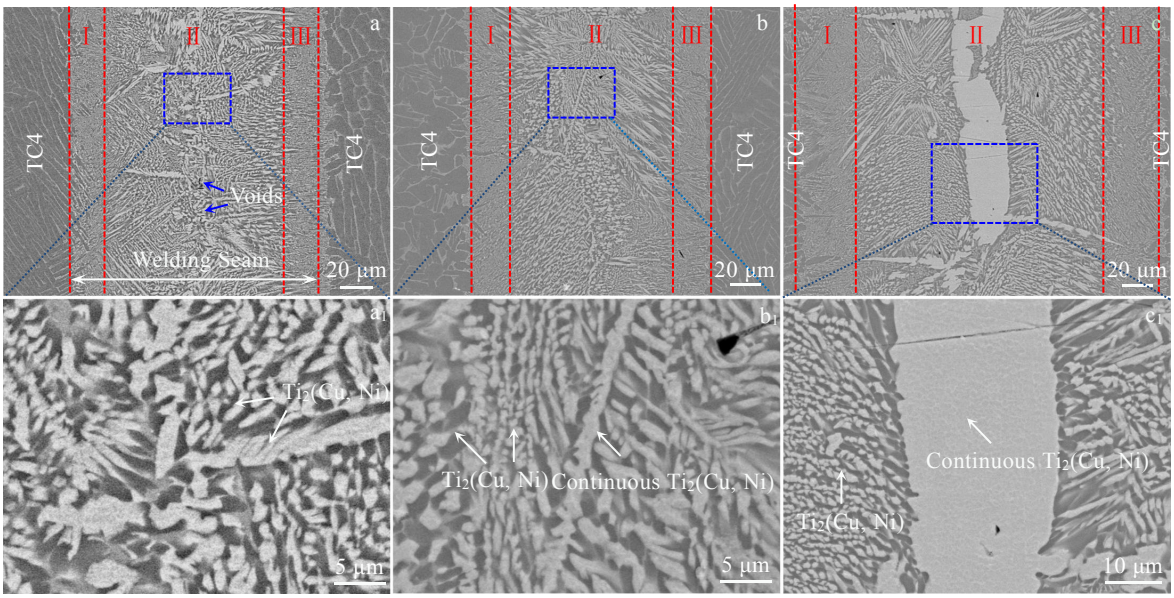


图 5　不同厚度中间层的 TLP 接头界面 SEM 组织

Fig.5　Interfacial SEM microstructures of the TLP joints (a-c) and corresponding magnified SEM images (a_1-c_1) bonded using the interlayers with various thickness: (a, a_1) 5 μm, (b, b_1) 10 μm, and (c, c_1) 20 μm

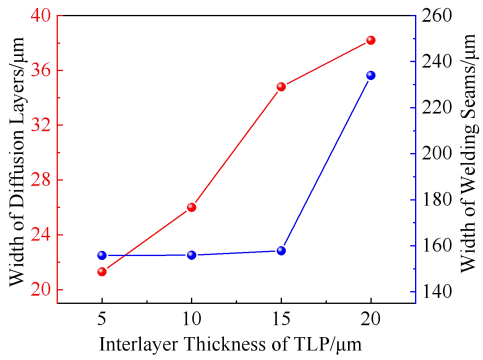


图 6　扩散层和焊缝宽度随中间层厚度的变化

Fig.6　Variations of width of diffusion layer and welding seam with interlayer thickness of the TLP

（875 ℃），当接触界面处 Ti/Cu 元素浓度达到 Ti-61Cu 至 Ti-83Cu 范围内时，在接触界面处会产生共晶液相。由于固/液界面反应剧烈，共晶液相会迅速扩展，直至中间 Cu 层完全熔化并润湿 TC4 母材表面；与此同时，母材中 Ti 元素不断向液相中溶解，同时 Cu 元素也会向 TC4 母材中扩散，使得液相中 Ti 元素增多，而低熔点 Cu 元素减少，导致液相熔点逐渐升高，完成等温凝固，形成 TiCu 相。据报道这一过程在 60 s 内即可完成[13]。随着保温时间的延长，Cu 和 Ti 元素不断发生互扩散，接头中 Cu 含量降低，TiCu 相完全转变为β-Ti 和连续的 Ti_2Cu 相。当保温时间进一步延长，接头中 Cu 元素浓度不断降低，形成过共析的β-Ti 相。在随后的冷却过程中，部分β-Ti 可能先析出 Ti_2Cu 相，形成β-Ti+先析 Ti_2Cu 的双相组织。当温度降低至共析转变温度（790 ℃）以下，靠近母材侧发生共析反应 β-Ti→ α-Ti+Ti_2Cu，形成α-Ti+片层状 Ti_2Cu 的微观组织，而先析 Ti_2Cu 相则保留其原形态，形成条块状或团块状组织分布于接头反应层中。此外，根据 Ti-Ni 二元相图[11]，接头中可能出现 Ti_2Ni 相，但是接头各个位置点的 EDS 分析结果显示，Ni 元素的原子分数仅为 0.59%~4.45%，因此未检测到单独存在的 Ti_2Ni 相。

2.4　中间层厚度对接头拉伸性能的影响与断口形貌

采用不同厚度的电沉积 Cu 层作为中间层，在相同 TLP 扩散连接条件下获得的接头的室温抗拉强度如图 7 所示。由图可知，随着 Cu 中间层厚度的增加，接头抗拉强度逐渐增大，当 Cu 中间层厚度为 15 μm 时，接头的抗拉强度达到最大值 500 MPa。当中间层厚度为 5 μm 时，焊缝中央存在未焊合的孔洞，导致接头抗拉强度较低。随着中间层厚度的增加，Ti-Cu 产生的共晶液相增多，对母材充分润湿，焊缝中央未焊合孔洞消失，同时一些块状 $Ti_2(Cu, Ni)$相开始弥散分布（图 2a），使得接头抗拉强度逐渐增加，并在中间层厚度为 15 μm 时达到最大值，此时反应层中连续的 $Ti_2(Cu, Ni)$金属间化合物层较薄，对抗拉强度的影响较小。当中间层厚度达到 20 μm 时，连续的 $Ti_2(Cu, Ni)$层宽度大大增加，成为接头抗拉强度下降的主要因素。

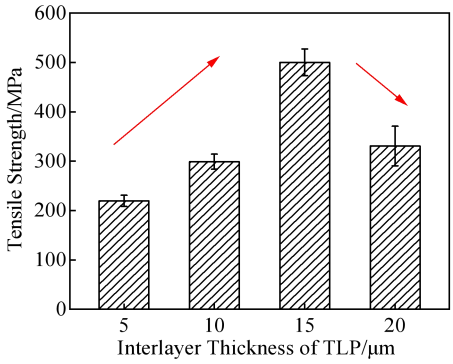


图 7　不同 TLP 中间层厚度时的接头抗拉强度

Fig.7　Tensile strengths of the joints with different interlayer thickness of TLP

采用不同厚度 Cu 中间层获得的 TLP 接头在拉伸试验中均断裂于接头焊缝处，且所有拉伸试样均未表现出明显的塑性变形。为了研究接头的断裂模式，通过 SEM 对断口进行分析，图 8 给出了在中间层厚度为 15 和 20 μm 时 TC4 TLP 接头的典型断口形貌。当中间层厚度为 15 μm 时，接头断口处存在明显的解理台阶和舌状凸起（图 8a 和 8c），为典型的解理断裂模式。中间层厚度为 20 μm 的接头拉伸断口出现了大面积的连续平坦区域，结合图 5c 的微观组织和该位置的 EDS 分析结果，可以判断连续平坦区域为分布于反应区中央的连续 $Ti_2(Cu, Ni)$相，说明较宽的连续 $Ti_2(Cu, Ni)$相成为接头断裂的薄弱位置。两平坦区域之间的放大组织照片可以观察到明显的解理刻面和河流花样，表明在拉伸过程中也发生了解理断裂。

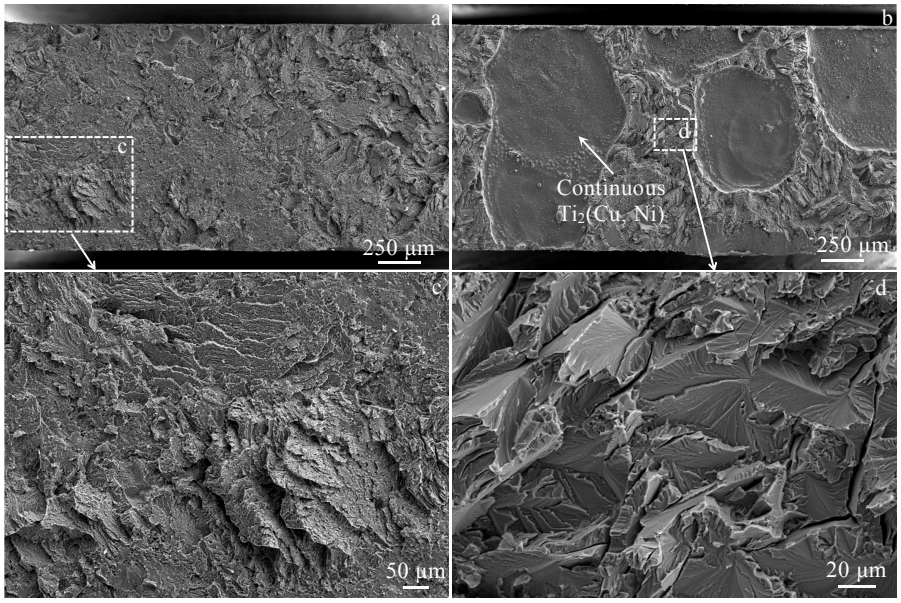


图 8　在不同中间层厚度下 TLP 接头的断口形貌

Fig.8　Fracture SEM morphologies of TC4 joints with interlayer thickness of 15 μm (a, c) and 20 μm (b, d)

3　结　论

1) 使用 15 μm 厚的电沉积 Cu 作中间层，在 940 ℃保温 30 min、连接压力 0.36 MPa 时获得的典型接头界面组织为 TC4/α-Ti+ $Ti_2(Cu, Ni)$/TC4。

2) TLP 连接时，电沉积 Cu 中间层厚度设置在 5~20 μm 范围内，采用 5 μm 的 Cu 层时，焊缝中央无连续的 $Ti_2(Cu, Ni)$相，且存在未焊合的孔洞；随着中间层厚度增加，扩散层和焊缝宽度增加，反应层中央开始出现连续的 $Ti_2(Cu, Ni)$相，并随中间层厚度增加而变宽，而未焊合的孔洞消失。

3) 随着 TLP 扩散连接中间层厚度的增加，接头室温抗拉强度先增大后减小，在电沉积 Cu 中间层厚度为 15 μm 时达到最大值 500 MPa。拉伸断口分析表明，所有 TLP 扩散连接试样均以解理断裂方式在焊缝处断裂。

参考文献　References

[1] Pan X L, Wang X D, Tian Z *et al. Journal of Alloys and Compounds*[J], 2021, 850: 156 672

[2] Sun L X, Li M Q. *Journal of Materials Processing Technology*[J], 2019, 270: 265

[3] Li C, Si X Q, Bian S W *et al. Materials Science and Engineering A*[J], 2020, 785: 139 413

[4] Li Xingxia(李兴霞), Wang Hongyu(王红玉), Zhang Jianxun(张建勋). *Transactions of the China Welding Institution* (焊接学报)[J], 2013, 34(12): 79

[5] Li Dongjie(李冬杰), Wan Xiaohui(万晓慧), Li Xiaohong(李晓红) *et al*. *Aeronautical Manufacturing Technology*(航空制造技术)[J], 2015, 480(11): 70

[6] Calvo F A, de Salazar J M G, Urena A *et al*. *Journal of Materials Science*[J], 1992, 27(2): 391

[7] Wang Dong(王 东), Cao Jian(曹 健), Dai Xiangyu(代翔宇) *et al*. *Rare Metal Materials and Engineering* (稀有金属材料与工程)[J], 2018, 47(2): 677

[8] Du Y C, Shiue R K. *Journal of Materials Processing Technology*[J], 2009, 209(11): 5161

[9] Shapiro A, Rabinkin A. *Welding Journal*[J], 2003, 82(10): 36

[10] Chang S Y, Tsao L C, Lei Y H *et al*. *Journal of Materials Processing Technology*[J], 2012, 212(1): 8

[11] Massalski T B. *Binary Alloy Phase Diagrams*[M]. Ohio: ASM International, 1990: 1474

[12] Acdonald W D, Eagar T W. *Proceedings of the Third International Conference on Trends in Welding Research*[C]. Ohio: ASM International, 1992: 1083

[13] Deng Y Q, Sheng G M, Wang F L. *Materials and Design*[J], 2016, 92: 1

[14] Samavatian M, Halvaee A, Amadeh A A *et al*. *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*[J], 2015, 25(3): 770

[15] Zhu Chunli(朱春莉), Chen Sijie(陈思杰). *Materials for Mechanical Engineering*[J], 2016, 40(7): 47

[16] Norouzi E, Atapour M, Shamanian M. *Journal of Alloys and Compounds*[J], 2017, 701: 335

[17] Song X G, Cao J, Chen H Y *et al*. *Materials and Design*[J], 2013, 46: 895

[18] Fang Hongyuan(方洪渊), Feng Jicai(冯吉才). *Interfacial Behavior of Material Connection Process*(材料连接过程中的界面行为)[M]. Harbin: Harbin Institute of Technology Press, 2005: 148

Effects of Interlayer Thickness on Interfacial Microstructure and Joint Performance of Transient Liquid Phase Bonded TC4 Titanium Alloy

Lin Tong [1], Xie Hong[2], Yang Weipeng[2], Zhao Wenqi [1], Si Xiaoqing[1], Li Chun[1], Zhang Di[2], Zhu Qiang[2], Qi Junlei[1], Cao Jian[1]

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

(2. Xi'an Space Engine Company Limited, Xi'an 710100, China)

Abstract: Transient liquid phase (TLP) diffusion bonding of TC4 titanium alloy was realized using an electrodeposited Ni/Cu layer as interlayer. The effects of Cu interlayer thickness on interfacial microstructure and mechanical property of TC4 joint were studied by SEM, EDS and XRD, and the reaction mechanism was clarified by Ti-Cu and Ti-Ni binary phase diagrams. The results show that the typical interfacial microstructure of the joint is TC4/α-Ti+Ti_2(Cu, Ni)/TC4. With the increase in the thickness of electrodeposited Cu layer, the width of diffusion layer and welding seam increase, and the voids in the center of the joint disappear. Continuous Ti_2(Cu, Ni) intermetallic layer appears in the reaction layer and its width increases gradually. The tensile strength of the joint increases firstly and then decreases with the increase in interlayer thickness, reaching the maximum value of 500 MPa when the thickness of Cu layer is 15 μm. Fracture analysis shows that all of the bonded joints are fractured at the welding seams in the form of cleavage mode.

Key words: TC4 titanium alloy; transient liquid phase diffusion bonding; interlayer thickness; interfacial microstructure; tensile strength

Corresponding author: Si Xiaoqing, 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: sixq@hit.edu.cn