DOI: 10.3901/JME.2020.06.095

Ag-CuO 钎料空气反应钎焊 AlN 陶瓷 接头组织及性能*

罗 云¹ 胡胜鹏^{1,2} 李子寒² 许志泉² 张 雷³ 宋晓国^{1,2} 张丽霞¹

(1. 哈尔滨工业大学先进焊接与连接国家重点实验室 哈尔滨 150001;

2. 哈尔滨工业大学(威海)山东省特种焊接技术重点实验室 威海 264209;

3. 郑州机械研究所有限公司新型钎焊材料与技术国家重点实验室 郑州 450001)

摘要: 采用 Ag-CuO 钎料实现了 AlN 陶瓷与自身的空气反应钎焊。研究了 CuO 含量、钎焊温度和预氧化温度对界面组织及力学性能的影响规律, 分析了连接机理。当钎料成分为 Ag-6 mol%CuO, 在 1000 °C/5 min 的钎焊参数下, AlN/Ag-CuO/AlN 接头可获得最高的抗剪切强度为 13.9 MPa。采用 SEM、EDS 及 XRD 对其接头界面显微组织、断口形貌及成分进行了分析。典型接头界面组织结构为 AlN/CuAl₂O₄/CuO/AlN+Ag+CuO/CuO/CuAl₂O₄/AlN。然而, 在该条件下无法获得无缺陷的接头。为了降低残余热应力获得无缺陷的接头, 对 AlN 陶瓷采用预氧化处理, 在 AlN 陶瓷表面形成一层 Al₂O₃ 层。当预氧化参数为 1 000 °C/5 h 时, AlN 陶瓷表面的 Al₂O₃ 层厚度约为 10 μm。采用成分为 Ag-6 mol%CuO 的钎料, 在 1 000 °C/5 min 的钎焊参数下, 对预氧化后的 AlN 陶瓷进行连接, 获得了无缺陷的接头, 接头典型界面显微组织为 AlN/Al₂O₃/CuAl₂O₄/CuO/Ag+Al₂O₃/CuO/CuAl₂O₄/Al₂O₃/AlN。接头的抗剪切强度最高为 22.6 MPa, 与未氧化的 AlN 陶瓷接头相比提升了 62.6%。接头进行抗剪切测试时, 断面主要出现在 AlN 陶瓷母材。

关键词: AlN 陶瓷; 空气反应钎焊; 预氧化; 界面显微组织; 抗剪切强度; Ag-CuO 钎料

中图分类号: TG156

Microstructure and Properties of AlN Ceramic Reactive Air Brazing Joints Using Ag-CuO Brazes

LUO Yun¹ HU Shengpeng^{1,2} LI Zihan² XU Zhiquan² ZHANG Lei³
SONG Xiaoguo^{1,2} ZHANG Lixia¹

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

2. Shandong Provincial Key Laboratory of Special Welding Technology,
Harbin Institute of Technology(Weihai), Weihai 264209;

3. State Key Laboratory of Advanced Brazing Filler Metals and Technology,
Zhengzhou Research Institute of Mechanical Engineering Co., Ltd., Zhengzhou 450001)

Abstract: Reactive air brazing of AlN ceramics is achieved using Ag-CuO brazes. The effects of CuO content, brazing temperature and pre-oxidation temperature on interface microstructure and mechanical properties are studied. The joining mechanism is analyzed. When the composition of brazes is Ag-6 mol% CuO, the highest shear strength about 13.9 MPa of the AlN/Ag-CuO/AlN joints is obtained under the brazing parameters of 1 000 °C/5 min. The interface microstructure, fracture morphology and composition of the joints are analyzed by SEM, EDS and XRD. The typical joint interface microstructure is AlN/CuAl₂O₄/CuO/AlN+Ag+CuO/CuO/CuAl₂O₄/AlN. However, a defect-free joint can not be obtained under this condition. In order to reduce the residual thermal stress and obtain a defect-free joint, a pre-oxidation treatment is applied to the AlN ceramic to form an Al₂O₃ layer on the surface of the AlN ceramic. When the pre-oxidation parameter is 1 000 °C/5 h, the thickness of the Al₂O₃ layer on the surface of the AlN ceramic is about 10 μm. The pre-oxidized AlN ceramics are joined at a brazing temperature of 1 000 °C/5 min using a brazing filler metal of Ag-6 mol%CuO to obtain a defect-free joint. The typical interfacial microstructure of the joint is AlN/Al₂O₃/CuAl₂O₄/CuO/Ag+Al₂O₃/CuO/CuAl₂O₄/Al₂O₃/AlN. The joint has a shear strength of up to 22.6 MPa and an increase of 62.5% compared to the unoxidized AlN ceramic joint. When the joints are subjected to shear resistance test, the fracture sections mainly are observed in the AlN ceramic.

Key words: aluminum nitride ceramic; reactive air brazing; pre-oxidation; interfacial microstructure; shear strength; Ag-CuO brazes

* 国家自然科学基金资助项目(51905125, 51775138, U1737205)。20191011
收到初稿, 20191225 收到修改稿

0 前言

AlN 陶瓷因其具有良好的导电性、导热性、机械性能及优良的耐高温性能而广泛应用于电子、化工、冶金、核工业及宇航等行业^[1-3]。由于 AlN 陶瓷具有较差的塑性, 不易于加工成复杂陶瓷结构件。因此使用连接技术对拓展 AlN 陶瓷的应用至关重要^[4-6]。

目前连接 AlN 陶瓷的方法主要有 Mo-Mn 法、活性金属钎焊法等^[7-9]。采用 Mo-Mn 法虽然能够获得较高的连接强度, 但是该方法连接温度较高, 连接时间较长, 成本高。活性金属钎焊法可直接钎焊陶瓷材料, 工艺简单且成本较 Mo-Mn 法低, 获得的接头强度高, 但接头的耐高温性较差。

空气反应钎焊是指采用在空气气氛下, 以熔融的氧化物和贵金属作为钎料以实现材料连接^[10-11]。与活性金属钎焊相比, 空气反应钎焊具有工艺流程短、成本低及所获得接头具有塑性佳, 耐高温及抗氧化的特点^[12]。目前可用于空气反应钎焊的钎料主要有 Ag-CuO/Ag-WO₃/Ag-V₂O₅/Pt-Nb₂O₅/Ag-MoO₃ 等^[13-16]。其中以 Ag-CuO 钎料的物理化学性质稳定和连接性能可靠, 因而广泛应用于该领域中^[17-18]。

综合相关文献可知, AlN 陶瓷与活性元素反应时可能会生成 N₂, N₂ 的产生可能会造成焊后接头中形成气孔^[19-22]。为了实现 AlN 陶瓷的空气反应钎焊, 选用 Ag-CuO 体系钎料对未进行预氧化处理的 AlN 陶瓷及预氧化处理后的 AlN 陶瓷进行了连接。

1 试验材料及方法

1.1 试验材料

试验采用的 AlN 陶瓷由上海泛联科技股份有限公司提供。连接过程中所使用到的 Ag 颗粒(约为 99.9%)来源于长沙天久金属材料有限公司, CuO 颗粒(约为 99.9%)购自苏州华航化工科技有限公司。

1.2 试验方案

用金刚石内圆切片机将 AlN 陶瓷切成相应尺寸的试样。切成的 5 mm×5 mm×5 mm 与 15 mm×10 mm×5 mm 规格的试样分别用于钎焊接头界面组织和力学性能分析。焊接前, 将加工好的试样的待焊面经过 600#、1200#、1500#、2000#和 3000#金刚石砂盘逐级打磨。将打磨后的试样放入丙酮溶液中超声清洗 15 min。

所用 Ag-CuO 钎料是通过商用 Ag 金属粉末和 CuO 粉末通过机械球磨获得。球磨工艺如下: 将配制的不同 CuO 含量的 Ag-CuO 粉末共 20 g 放入球磨罐中, 放入 100 g 球磨球并加入 5 mL 丙酮, 放置在行星球磨机上(型号为 XQM-1L)进行混粉, 球磨罐的公转速度设置为 120 r/min, 自转速度设置为 250 r/min, 球磨 8 h 后即可获得不同配比的 Ag-CuO 钎料。

钎焊试验前将 AlN 陶瓷放入丙酮中超声清洗 10 min, 然后按 AlN/Ag-CuO/AlN 的顺序进行装配。装配完成后, 将试样放置于高温烧结炉内并用耐火砖块压紧, 保证钎料与母材的紧密接触。设定加热速度为 10 °C/min, 当加热到钎焊温度保温 5 min, 然后以 10 °C/min 的速度进行冷却至 300 °C, 随后随炉冷却至室温。试验中使用 Instron 1186 型万能试验机对其焊后接头进行抗剪强度测试, 试验加载速度为 0.5 mm/min, 测试过程示意图如图 1 所示。接头抗剪强度可通过式(1)计算获得

$$\tau = \frac{F}{S} \quad (1)$$

式中, τ 为连接接头的抗剪强度(MPa); F 为剪切试验所施加的载荷(N); S 为连接接头连接面面积(mm²)。

图1 钎焊接头剪切试验示意图

剪切试验完成后, 对接头断口进行表面形貌进行扫描电子显微镜(SEM, MERLIN Compact, ZEISS)分析, 并采用能谱分析仪(EDX, OCTANE PLUS, EDAX)对其断口处物相进行分析, 确定其断裂路径和断裂方式。

将连接后的样品用陶瓷切割机切开, 并按照金相制样标准制备接头界面微观组织观察样件。采用扫描电子显微镜对微观组织进行观察, 并结合能谱分析仪, 综合分析界面物相形态、种类及元素组成和含量。对经剪切测试后的接头断口采用 X 射线衍射仪(XRD, D8-ADVANCE)分析断口表面物相种类。

2 试验结果及讨论

2.1 未预氧化处理的 AlN 陶瓷接头典型界面组织

考虑到 Ag-CuO 系列钎料的熔点^[23-25], 连接工艺参数采用 1 000 °C/5 min。如图 2 所示为 AlN/Ag-CuO/AlN 典型接头界面显微组织, 连接参数为 1 000 °C/5 min。界面中可见存在 4 种物相以及界面处明显的贯穿裂纹。结合能谱分析结果(表 1)推测, 黑色相 C 为从陶瓷母材中脱落的 AlN 颗粒, 深灰色相 B 为 CuO, 连续的浅灰色相 A 为 CuAl_2O_4 , 白色相 D 为 Ag(s,s)。推测此时的界面结构为 AlN/CuAl₂O₄/CuO/AlN+Ag+CuO/CuO/CuAl₂O₄/AlN。AlN 陶瓷与钎缝界面处产生连续裂纹的原因是 AlN 陶瓷与 Ag 基钎缝的热膨胀系数差异较大导致界面处存在较大的残余热应力, 脆性的 CuO 层在较高的残余热应力下开裂。

图 2 AlN/Ag-6mol%CuO/AlN 接头界面 SEM 照片及局部区域放大

表 1 图 2 中各点能谱分析结果及可能相

点	原子分数(%)					可能相
	Ag	Cu	N	O	Al	
A	0	15.21	8.89	47.69	28.21	CuAl_2O_4
B	5.21	46.97	4.1	43.72	0	CuO
C	0	0	49.01	2.1	48.89	AlN
D	96.54	0.49	2.46	0.51	0	Ag(s,s)

2.2 CuO 含量对接头组织及力学性能的影响

如图 3 所示为不同 CuO 含量对接头界面组织演化的影响, 随着 CuO 含量的增加, 接头成形性先提升后降低, 并且钎缝与 AlN 陶瓷母材界面处逐渐形成连续的 CuO 层。由于钎料中 CuO 含量为 0 mol%、2 mol%和 4 mol%时所获得的接头界面组织结构类似, 所以只列出使用 Ag-4 mol%CuO 钎料的接头界面组织。图 3a 显示钎缝中形成较大的未焊合孔洞。这可能是因 CuO 含量较低无法与母材形成充分的反应, 导致界面处无法形成良好的冶金结合。如图 3b 所示, 随着 CuO 含量的增加, 接头的成形性得

到提升, 这是由于钎料与母材发生了充分的反应。当 CuO 含量为 6 mol%时, 界面处形成了连续的 CuO 层并且存在裂纹。形成的裂纹的原因可能是 AlN 陶瓷(热膨胀系数为 $4.5 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$)^[26-28]与 Ag-CuO 钎料(热膨胀系数为 $18.5 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$)^[29-32]间存在较大的热膨胀系数错配。随着 CuO 含量的继续增加, 界面处 CuO 层增厚, 界面中除了出现裂纹外还出现了大量的 AlN 颗粒和较大的孔洞。这可能是由于较高的 CuO 含量使得钎料与 AlN 陶瓷母材发生了剧烈反应, 导致近界面处 AlN 陶瓷发生分解产生大量 N_2 , 并且 N_2 将细小的 AlN 颗粒带入熔融钎料中, 结果导致了钎料的流动性变差, 当钎缝凝固时部分 N_2 无法溢出, 最终于钎缝中形成气孔。

图 3 AlN/Ag-CuO/AlN 钎焊接头宏观形貌与微观组织形貌

如图 4 所示为 CuO 含量对接头力学性能的影响。随着钎料中 CuO 含量的增加, 接头的抗剪切强度呈现先增加后降低的趋势。当 CuO 含量为 6 mol%

图 4 CuO 含量对接头剪切性能的影响

时, 接头可获得最高抗剪切强度 13.8 MPa。当 CuO 含量超过 6 mol% 时, 接头抗剪切强度进一步降低。当 CuO 含量低于 6 mol% 时, 接头抗剪切强度明显低于 13.9 MPa。CuO 含量对接头力学性能的影响趋势符合其对接头界面显微结构影响的分析。

2.3 钎焊温度对接头界面组织的影响

为了降低接头残余热应力, 采用 990 °C/5 min 的连接参数对 AlN 陶瓷进行连接, 所得接头界面显微结构如图 5 所示。如图 5a 所示, AlN/Ag-6mol%CuO/AlN 接头出现孔洞, 形成不连续钎缝。由图 5b 所示可知, AlN 陶瓷母材与钎缝界面处形成了未焊合缺陷。形成这种现象的原因可能是随着钎焊温度的降低, 钎料的流动性变差, 阻碍了熔融 CuO 在界面处的铺展, 使得钎缝与母材无法形成牢固的冶金结合。

图 5 焊接温度 990 °C 保温时间 5 min 条件下 AlN/Ag-6 mol%CuO/AlN 的焊接接头

2.4 预氧化工艺对接头组织的影响

如图 6 所示为 AlN 陶瓷经过 1 350 °C/5 h 的预氧化处理后的显微组织结构。AlN 陶瓷表面形成了疏松的氧化层(标记为 A), 厚度约为 240 μm, 如图 6a 所示。结合能谱分析结果(表 2)可知, A 物相为 Al₂O₃。图 6b 所示为氧化层放大倍数观察的结果, 结果进一步确认 Al₂O₃ 为疏松多孔结构。

采用 Ag-6 mol%CuO 钎料钎焊经预氧化处理后的 AlN 陶瓷接头形貌如图 7a~7c 所示(连接参数 1 000 °C/5 min, 预氧化参数 1 350 °C/5 h), 钎缝中的钎料大部分渗入 AlN 陶瓷表面的氧化层, 并于 AlN

图 6 AlN 陶瓷表面的氧化层 SEM 形貌(1 350 °C/5 h)

表 2 图 6 中各点能谱分析结果及可能相 at %

点	Ag	Cu	N	O	Al	可能相
A	0	0	0.04	54.95	44.85	Al ₂ O ₃

陶瓷母材及氧化层形成裂纹。这可能是由于过高的预氧化温度导致 AlN 陶瓷母材受到较为严重的损伤。液态钎料渗入氧化层并与氧化层形成冶金结合, 在凝固过程中钎料与氧化层之间形成拉应力, 最终于疏松氧化层和 AlN 陶瓷内部形成裂纹, 如图 7b 所示。

(c) 微观形貌

图 7 氧化后 AlN/Ag-6 mol%CuO 钎料/氧化后 AlN 钎焊接头界面组织

为了减轻高的预氧化温度对 AlN 陶瓷母材的力学性能的影响, 试验使用 1 000 °C/5 h 的预氧化参数, 在 1 000 °C/5 min 的连接参数下使用 Ag-6 mol%CuO 钎料对 AlN 陶瓷进行连接, 所得接头典型界面组织和元素面分布如图 8 所示。结合图 8a、8b 和 8f 可知, 钎焊接头界面没有出现裂纹, 并且钎缝中出现了均匀分布的细小 AlN 颗粒, 这是 AlN 颗粒来自于 AlN 陶瓷母材。观察可知 AlN 陶瓷母材表面的氧化层仍然存在。由图 8b、8c 可知 AlN 陶瓷母材近钎缝界面存在厚度约为 10 μm 的 Al₂O₃ 层。通过图 8d 可知, Ag 元素存在于 Al₂O₃ 层中, 说明 AlN 陶瓷经过预氧化处理后表面形成的 Al₂O₃ 层并不致密, 这有助于熔融钎料通过毛细作用力渗入 Al₂O₃ 层形成良好的机械结合。如图 8e 所示, Cu 元

图 8 预氧化 AlN/Ag-6 mol%CuO/预氧化 AlN 接头典型界面组织和元素面分布

素主要分布于 Ag 基钎缝中, 部分出现于界面处, 说明当钎料处于熔融态时, 熔融 CuO 随着液态 Ag 渗入疏松的 Al₂O₃ 层中并与该层发生冶金反应, 最终实现钎缝与母材牢固的冶金结合。

2.5 预氧化工艺对接头力学性能的影响

图 9 所示为将预氧化处理的 AlN 陶瓷钎焊后所获得接头力学性能与未进行预氧化处理的进行对比。结果表明, AlN 陶瓷经适当的预氧化处理后所获得的钎焊接头抗剪切强度比未进过预氧化处理的提升了 62.6%。这可能是因为 Al₂O₃ (热膨胀系数为 $8.8 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$)^[33-37] 层形成后, 接头中残余热应力得到明显的降低。

图 9 预氧化工艺对接头力学性能的影响

图 10a~10c 经过预氧化处理后 AlN/Ag-6mol%CuO/AlN 接头焊后典型断口形貌。结合 EDS 结果(表 3)可知, I 区物相主要为 AlN, II 区物相主要为 Ag 和 AlN。这表明断面主要是出现在 AlN 陶瓷基体上部出现在钎缝。将断口处 AlN 陶瓷母材尽可能打磨至近钎缝, 然后进行 XRD 分析, 结合之前钎缝元素面扫描分析结果表明钎缝中物相主要有 AlN、Ag、CuO、CuAl₂O₄、Al₂O₃。XRD 分析结果证实了之前对界面相的推测。

图 10 预氧化 AlN/Ag-6 mol%CuO/预氧化 AlN 接头焊后典型断口形貌及 XRD 分析结果

表 3 图 10a 中各点能谱分析结果及可能相

区	原子分数(%)					可能相
	Ag	Cu	N	O	Al	
I	0	0	50.01	0.1	49.89	AlN
II	43.93	1.48	22.46	1.61	30.52	Ag(s,s)

3 结论

(1) 采用 Ag-CuO 钎料空气反应钎焊 AlN 陶瓷。当连接参数为 1 000 °C/5 min, 钎料成分为 Ag-6 mol%CuO 时, 所获得接头典型界面结构为 AlN/CuAl₂O₄/CuO/AlN+Ag+CuO/CuO/CuAl₂O₄/AlN。随着 CuO 含量的增加, 接头抗剪切强度呈现先升高后降低的趋势。当 CuO 含量增加至 6 mol%时, 接头抗剪切强度达到最高值为 13.9 MPa。

(2) 对 AlN 陶瓷采用预氧化处理, 当预氧化参数为 1 000 °C/5 h 时, AlN 陶瓷表面的氧化层厚度约为 10 μm。采用 Ag-6 mol%CuO 钎料在 1 000 °C/5 min 的连接参数下实现了预氧化处理 AlN 陶瓷的空气反应钎焊。接头典型界面显微组织为 AlN/CuAl₂O₄/CuO/Ag+Al₂O₃/CuO/CuAl₂O₄/AlN。

(3) 焊后接头所具有的抗剪切强度为 22.6 MPa, 与未预氧化处理的相比, 提升了 62.6 %。

参 考 文 献

- [1] ATARASHI K. Aluminum nitride/metal composites using ultra-fine aluminum particles and their application for joining[J]. Journal of Materials Processing Technology, 1995, 54(1-4): 54-59.
- [2] KRUGER R R A, SCHAPER W. Hermetic glass sealing of AlN packages for high temperature applications[J]. Journal of the European Ceramic Society, 1999, 19(6-7): 1067-1070.
- [3] TUCKER M C, JACOBSON C P, JONGHE L C D, et al. A braze system for sealing metal-supported solid oxide fuel cells[J]. Journal of Power Sources, 2006, 160(2): 1049-1057.
- [4] WŁOSIŃSKI S. Joining of AlN ceramic to metals using sputtered Al or Ti film[J]. Journal of Materials Processing Technology, 2001, 109(3): 277-282.
- [5] 李戈扬, 张尚, 马李. 镀膜 Al 箔钎料对 AlN 陶瓷的钎焊[J]. 金属学报, 2018, 54(4): 575-580.
LI Geyang, ZHANG Shang, MA Li. Brazing of AlN ceramics by coated Al foil solder[J]. Acta Metallurgica Sinica, 2018, 54(4): 575-580.
- [6] JADOON A K, RALPH B, HORNSBY P R. Metal to ceramic joining via a metallic interlayer bonding technique[J]. Journal of Materials Processing Technology, 2004, 152(3): 257-265.
- [7] 刘桂武, 乔冠军. 活化钼-锰法陶瓷-金属封接研究的进展[J]. 硅酸盐学报, 2006, 34(12): 1522-1527.
LIU Guiwu, QIAO Guanjun. Progress in research on activated molybdenum-manganese ceramics-metal sealing[J]. Journal of The Chinese Ceramic Society, 2006, 34(12): 1522-1527.
- [8] TERASAKI N, OHASHI T, NAGATOMO Y, et al. A new method for liquid-phase bonding of copper plates to aluminum nitride (AlN) substrates used in high-power modules[J]. Journal of Materials Science: Materials in Electronics, 2019, 30(7): 6552-6555.
- [9] KARA-SLIMANE A, JUVE D, LEBLOND E, et al. Joining of AlN with metals and alloys[J]. Journal of the European Ceramic Society, 2000, 20(11): 1829-1836.
- [10] JARRIGE J, JOYEUX T, LECOMPTE J P, et al. Influence of oxygen on the joining between copper and aluminium nitride[J]. Journal of the European Ceramic Society, 2007, 27(1): 337-341.
- [11] HARDY J S, JIN Y K, WEIL K S. Joining mixed conducting oxides using an air-fired electrically conductive braze[J]. Journal of the Electrochemical Society, 2004, 151(8): 43-49.
- [12] 王志权, 曹健, 司晓庆, 等. 陶瓷空气反应钎焊研究综述[J]. 精密成形工程, 2018, 10(1): 1-9.
WANG Zhiquan, CAO Jian, SI Xiaoqing, et al. Summary of research on ceramic air reactive brazing[J]. Journal of Netshape Forming Engineering, 2018, 10(1): 1-9.
- [13] WEIL S K, HARDY J S, KIM J Y. Oxidation ceramic to metal braze seals for applications in high temperature electrochemical devices and method of making : U.S.7055733[P]. 2006-06-06.
- [14] WEIL K S, JIN Y K, HARDY J S. Reactive air brazing: a novel method of sealing SOFCs and other solid-state electrochemical devices[J]. Electrochemical and SolidState Letters, 2005, 8(2): 133-136.
- [15] SOFIE S W, GANN-ON P, GOROKHOVSKY V. Silver-chromium oxide interactions in SOFC environments[J]. Journal of Power Sources, 2009, 191(2): 465-472.
- [16] DARSELL J T, WEIL K S. Effect of Pd additions on the invariant reactions in the Ag-CuO_x system[J]. Journal of Phase Equilibria and Diffusion, 2006, 27(1): 92-101.
- [17] JIANG Wenchun, ZHANG Yucui, WOOW, et al. Three-dimensional simulation to study the influence of foil thickness on residual stress in the bonded compliant seal design of planar solid oxide fuel cell[J]. Journal of Power Sources, 2012, 209: 65-71.

- [18] LIN Kunlin, SINGH M, ASTHANA R, et al. Interfacial and mechanical characterization of yttria-stabilized zirconia (YSZ) to stainless steel joints fabricated using ag-cu-ti interlayers[J]. *Ceramics International*, 2014, 40(1): 2063-2071.
- [19] TOMSIA A P, PASK J A, LOEHMAN R E. Joining nitride ceramics[M]. *Proceedings of the International Forum on Structural Ceramics Joining: Ceramic Engineering and Science Proceedings*, 2008.
- [20] 朱成俊, 李思成, 董雪花. 采用两种银基活性钎料钎 AlN 陶瓷与可伐合金的接头组织与性能[J]. *焊接学报*, 2018, 39(10): 16-19.
- ZHU Chengjun, LI Sicheng, DONG Xuehua. Microstructure and properties of joints of AlN ceramics and Kovar alloy brazed by two silver-based active solders[J]. *Transactions of the China Welding Institution*, 2018, 39(10): 16-19.
- [21] KOLEŇÁK, ROMAN, PRACH M. Research of soldering silicon substrate with solder type Sn-Ag-Ti[J]. *Applied Mechanics & Materials*, 2015, 729: 32-38.
- [22] PETEVES S D. Joining nitride ceramics[J]. *Ceramics International*, 1996, 22(6): 527-533.
- [23] LE Shiru, SHEN Zhemin, ZHU Xiaodong, et al. Effective Ag-CuO sealant for planar solid oxide fuel cells[J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2010, 496(1): 96-99.
- [24] KIM J Y, HARDY J S, WEIL K S. Effects of CuO content on the wetting behavior and mechanical properties of a Ag-CuO braze for ceramic joining[J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 2005, 88(9): 2521-2527.
- [25] WEIL K S, COYLE C A, JIN Y K, et al. The Effect of composition on the wetting behavior and joint strength of the Ag-CuO reactive air braze[C]//*Symposium on Solid State Ionics held at the 2002 MRS Fall Meeting. Materials Research Society Symposium Proceedings*, 2002, 756: 551-556.
- [26] MOKHAYER, KAKROUDI M M, MILANI G M, et al. Investigation of AlN addition on the microstructure and mechanical properties of TiB₂ ceramics[J]. *Ceramics International*, 2019, 45(13): 16577-16583.
- [27] LI Zengyan, PENG Bing, ZHANG Teng, et al. Improving sealing performance of borosilicate glass-ceramics for solid oxide fuel cell applications: Effect of AlN [J]. *Journal of the European Ceramic Society*, 2019, 39(14): 4194-4201.
- [28] MOHANAVEL V, RAVICHANDRAN M. Influence of AlN particles on microstructure, mechanical and tribological behaviour in AA6351 aluminum alloy [J]. *Materials Research Express*, 2019, 6(10): 1-13.
- [29] CAO Jian, QI Junlei, WU Linzhi, et al. Processing, microstructure and mechanical properties of vacuum-brazed Al₂O₃/Ti6Al4V joints[J]. *Materials Science & Engineering: A*, 2012, 535: 62-67.
- [30] KOZLOVA O, BRACCINI M, VOYTOVYCH R, et al. Brazing copper to alumina using reactive CuAgTi alloys[J]. *Acta Materialia*, 2010, 58(4): 1252-1260.
- [31] CAO Jian, SI Xiaoqing, LI Wangjin, et al. Reactive air brazing of YSZ-electrolyte and Al₂O₃-substrate for gas sensor sealing: interfacial microstructure and mechanical properties[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2017, 42(15): 10683-10694.
- [32] HONG Chen, LI Leijun, KEMPS R, et al. Reactive air brazing for sealing mixed ionic electronic conducting hollow fibre membranes[J]. *Acta Materialia*, 2015, 88: 74-82.
- [33] SI Xiaoqing, CAO Jian, SONG Xiaoguo, et al. Evolution behavior of Al₂O₃ nanoparticles reinforcements during reactive air brazing and its role in improving the joint strength[J]. *Materials & Design*, 2017, 132: 96-104.
- [34] RIANT J R, MEIER A, DARSELL J T, et al. Transitions in wetting behavior between liquid Ag-CuO alloys and Al₂O₃ substrates[J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 2012, 95(5): 1549-1555.
- [35] SI Xiaoqing, CAO Jian, SONG Xiaoguo, et al. Reactive air brazing of YSZ ceramic with novel Al₂O₃ nanoparticles reinforced Ag-CuO-Al₂O₃ composite filler: microstructure and joint properties[J]. *Materials & Design*, 2016, 114: 176-184.
- [36] RAJU K, MUKSIN, KIM S, et al. Joining of metal-ceramic using reactive air brazing for oxygen transport membrane applications[J]. *Materials & Design*, 2016, 109: 233-241.
- [37] MEIER A M, CHIDAMBARAM P, EDWARDS G R. A comparison of the wettability of copper-copper oxide and silver-copper oxide on polycrystalline alumina[J]. *Journal of Materials Science*, 1995, 30(19): 4781-4786.

作者简介: 罗云, 男, 1995 年出生, 博士研究生。主要从事先进异种材料连接机理与优化研究。

E-mail: 19b909133@stu.hit.edu.cn

宋晓国(通信作者), 男, 1983 年出生, 博士, 教授, 博士研究生导师。主要从事先进异种材料的扩散焊、钎焊、激光、搅拌摩擦焊接等方面的基础和应用研究。

E-mail: xgsong@hitwh.edu.cn