DOI: 10.3901/JME.2020.08.107

超声诱导瞬间液相焊焊接以 Ag-28Cu 为中间层的过共晶 Al-Si 合金*

何朝成¹ 付玉¹ 王谦¹ 韩俭¹ 陈胜勇² 闫久春³

(1. 天津理工大学材料科学与工程学院 天津 300384;

2. 天津理工大学计算机科学与工程学院 天津 300384;

3. 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)

摘要: 在大气环境中,应用超声诱导瞬间液相焊的方法,焊接以 Ag-28Cu 为中间层的 Al-50Si 合金。研究了超声振动时间、焊接温度对接头微观结构演变和 Si 颗粒迁移的影响。分析了 Si 颗粒增强的完全固溶体接头的快速形成过程。阐述了剪切强度与超声振动时间和接头组织之间的关系。在 520 °C 焊接温度下,超声振动仅 3 s,接头发生了界面冶金结合。超声振动 15 s 时,获得了 Si 颗粒增强的完全固溶体接头。焊接温度对 Ag、Cu 和 Al 之间的相互扩散产生影响。随着温度的增加,原子扩散加快。由于超声在固-液体介质中的效应,使得基体金属与中间层表面的氧化膜得到快速破除,基体金属与中间层产生元素扩散。当扩散达到一定浓度时,基体金属与中间层发生冶金反应,形成 Al-Ag-Cu 三元共晶液相,并且 Si 颗粒迁移进三元共晶液相中。随着超声振动时间延长,在超声振动、压力作用下,三元共晶合金减少,直至完全消失,剩余的 Al (Ag, Cu) 固溶体保留在焊缝中,焊缝闭合,获得了 Si 颗粒增强的完全固溶体接头。Si 颗粒的迁移和三元共晶合金的挤出影响接头的剪切强度。剪切强度随超声振动时间的延长而增加。超声振动 15 s 的剪切试样,其断裂发生在基体金属侧,属于韧性断裂,接头剪切强度最高,达到约 123 MPa。

关键词: 超声; Al-Si; Si 颗粒; 固溶体; 三元共晶; 剪切强度

中图分类号: TG456

Hypereutectic Al-Si Alloys with Ag-28Cu Interlayer Jointed by Ultrasound-induced Transient Liquid Phase Bonding

HE Chaocheng¹ FU Yu¹ WANG Qian¹ HAN Jian¹ CHEN Shengyong² YAN Jiuchun³

(1. School of Materials Science and Engineering, Tianjin University of Technology, Tianjin 300384;

2. School of Computer Science and Engineering, Tianjin University of Technology, Tianjin 300384;

3. State Key Laboratory of Advanced Welding and Joining, Harbin Institute of Technology, Harbin 150001)

Abstract: In the atmosphere, ultrasound-induced transient liquid phase bonding is used to join Al-50Si alloy with Ag-28Cu as the interlayer. The effects of ultrasonic vibration time and joining temperature on microstructure evolution and Si particle migration of solder joints are studied. The rapid formation process of Si particle reinforced complete solid solution joints is analyzed. The relationship between shear strength and ultrasonic vibration time and joint microstructure is described. The interface metallurgical bonding is occurred by ultrasonic vibration for only 3 s at 520 °C, and Si particle-reinforced complete solid solution joint is obtained by ultrasonic vibration for 15 s. The joining temperature affected the interdiffusion between Ag, Cu and Al. As the joining temperature increases, the atomic diffusion accelerates. Due to the effect of ultrasound in the solid-liquid medium, the surface oxide film between the base metal and interlayer is rapidly broken, and the element diffusion between the base metal and interlayer occurred. When the diffusion reaches a certain concentration, a metallurgical reaction occur, an Al-Ag-Cu ternary eutectic liquid phase is formed, and the Si particles migrate into the ternary eutectic liquid phase. With the ultrasonic vibration time prolongs, under the action of ultrasonic vibration and pressure, the ternary eutectic alloy decreases until it disappeared completely, the remaining Al (Ag, Cu) solid solution remained in the solder joint, the solder joint is closed, and the Si

* 国家自然科学基金资助项目(51504165)。20190805 收到初稿, 20200106 收到修改稿

particle-reinforced complete solid solution joint is obtained. The migration of Si particles and ternary eutectic alloy affects the shear strength of the joint, and the shear strength increases with the ultrasonic vibration time. The sheared sample with an ultrasonic vibration time of 15 s, whose fracture occurred in the base metal and belonged to a ductile fracture, and the joint has the highest shear strength of about 123 MPa.

Key words: ultrasonic; Al-Si; Si particles; solid solution; ternary eutectic; shear strength

0 前言

超声波在固体介质中存在声塑性效应、在液体介质中存在声空化效应和声流搅拌效应,被成功地引入各种焊接与连接过程^[1-5]。引入超声振动的目的是去除物质表面稳定的氧化膜,提高润湿性,促进元素扩散,加速冶金反应和金属液相的形成,均匀接头组织^[1, 6]。在超声诱导瞬间液相(Ultrasonic-induced transient liquid phase, U-TLP)焊接过程中,利用超声波振动在固体介质中产生的声塑性效应^[7],使金属表面产生塑性软化,从而导致氧化膜产生缺口,新鲜金属露出、接触并产生相互扩散。当扩散达到一定浓度时,基体金属与中间层发生冶金反应,形成金属液相。超声在液体介质中存在声空化效应和声流搅拌效应^[7]。当金属液相形成后,声空化效应在固/液界面处产生空化气泡,而空化气泡的崩塌能够产生微射流和瞬间的局部高温高压。微射流撞击金属表面,使金属表面的氧化膜完全破除成碎片。而局部的高温高压使金属液相产生温度梯度和压力梯度,形成液相流动。在超声振动和压力作用下,氧化膜碎片随金属液相被挤出焊缝^[3, 6]。

过共晶 Al-Si 合金具有低热膨胀系数、良好的导热性和气密性、高强度和刚性、良好的加工和焊接性能,以及低成本和轻质等特点,是电子封装体的主要优质材料。常用的焊接方法有弧焊^[8]、钎焊^[9]和真空扩散焊^[10]。然而,弧焊焊接温度过高,损伤金属基体,容易造成晶粒粗大,接头性能较差。钎焊温度较弧焊低,同时不破坏基体金属,然而,由于原生表面氧化层的存在,接头强度低。真空扩散焊需要在真空环境下进行,焊接成本高,基体金属尺寸受限,且同样由于原生表面氧化层的存在,原子扩散缓慢,导致焊接效率低。

综上所述,焊接过共晶 Al-Si 合金与其他铝基复合材料,共同面临的主要问题有焊接温度过高、对基体金属的破坏、晶粒粗大、焊接成本高、焊接效率低以及对真空环境的需求等。为解决上述问题,在大气环境中,引入超声波辅助进行瞬间液相焊接。具有双相丝状结构的 Ag-Cu 系共晶合金,因其优异的强度和导电性而被广泛研究^[11-12],然而,很少有

研究通过超声诱导 Al-Ag-Cu 三元共晶反应,在极短时间内,完成接头的焊接。

本文利用 U-TLP 焊,通过超声诱导 Al-Ag-Cu 三元共晶反应,焊接以 Ag-28Cu 为中间层的 Al-50Si 过共晶合金。研究了超声振动时间和焊接温度对接头微观结构演变及 Si 颗粒迁移的影响。分析了 Si 颗粒增强的完全固溶体接头的快速形成过程。阐述了接头剪切强度与超声振动时间和接头组织之间的关系。

1 试验材料与方法

1.1 试验材料

试验中使用的基体金属 Al-50Si(wt.%)合金,由天津百恩威新材料科技有限公司提供。Al-50Si 合金的剪切强度约为 125 MPa。将 Al-50Si 合金样品切割成 10 mm×10 mm×5 mm 的尺寸,其表面使用 SiC 水砂纸进行打磨,然后使用粒径为 0.5 μm 的金刚石抛光剂,对打磨后的表面进行抛光。使用尺寸为 10 mm×10 mm×0.03 mm 的 Ag-28Cu(wt.%)箔作为中间层,中间层熔点为 660 °C。对 Ag-28Cu 中间层和抛光完成的基体金属 Al-50Si 合金,分别浸泡在无水乙醇中,超声清洗 20 min 后,取出烘干备用。

1.2 试验过程

超声辅助焊接过程示意图如图 1a 所示。使用配备有超声波发生器和高频感应加热设备的超声辅助焊接系统进行焊接。试样按照 Al-50Si/Ag-28Cu/Al-50Si 结构,竖直放置于特制的焊接卡具中。卡具置于高频感应加热线圈中,钛超声压头置于 Al-50Si 表面,提供超声振动和焊接所需压力,压力通过气动压力调节。启动加热电源,为了保证温度测试的准确性,以及防止温升效应的影响,试验采用双热电偶测温,其中一个测温仪测试焊接卡具温度,另一个测温仪测试试样自身实际温度。通过对比两个测温仪数值,调节电源开关,使温度准确达到所需要的焊接温度。当试样温度达到 520 °C 时,施加定时(1 s, 3 s, 6 s, 9 s, 12 s, 15 s)超声波(频率 20±0.1 kHz,功率 200 W,恒定压力 0.3 MPa)。焊接完成的试样在空气中冷却至室温。此外,为研究

超声 9 s, 0.3 MPa 的压力下, 不同焊接温度对接头的影响, 设计焊接温度为 500 °C (Al-Ag-Cu 共晶温度)、510 °C、530 °C, 进行一系列试验。

1.3 性能检测与试样观察

使用配备有能谱仪(Energy dispersive spectrometer, EDS)的扫描电子显微镜(Scanning electron microscope, SEM)(ZEISS MERLIN Compact), 观察接头的微观结构、断口表面形貌特征、以及进行元素分析。使用 X 射线衍射(X-ray diffraction, XRD)(Rigaku D/max-2500V)分析断口表面的物相组成。

将焊接后的试样, 置于预制的卡具中, 使用万能电子试验机(WDW-D100EIII), 以 0.5 mm/min 的恒定速率, 对焊接接头进行剪切强度测试, 剪切强度测试过程示意图如图 1b 所示。每种参数条件下进行至少三次测试。

图 1 超声辅助焊接过程及剪切强度测试过程示意图

2 试验结果与讨论

图 2 为不同的超声振动时间获得的接头微观结构图。从图 2a 中可以观察到, Al-50Si / Ag-28Cu 界

面平直。在 Al-50Si / Ag-28Cu 界面的两侧, 观察到厚度约为 1 μm 的扩散层。超声振动 3 s 时, 如图 2b 所示, 观察到典型的 Al-Ag-Cu 三元共晶形态, 接头的最大宽度约为 234 μm , 大量 Si 颗粒进入焊缝, 表明接头形成了三元共晶液相。然而, 接头中还能观察到未消耗完的 Ag-28Cu 中间层。随着超声振动时间延长到 6 s, 如图 2c 所示, Ag-28Cu 中间层完全消耗, 转变为 Al-Ag-Cu 三元共晶合金, 接头的宽度约为 273 μm , 且 Si 颗粒均匀分布在整个焊缝中。超声振动 9 s 时, 如图 2d 所示, Al-Ag-Cu 三元共晶合金减少, 焊缝宽度降低。超声振动 12 s 时, 如图 2e 所示, 少量的三元共晶合金残留在接头中。直到超声振动时间延长至 15 s 时, 如图 2f 所示, 残留的三元共晶合金消失, 获得完全闭合焊缝, 这与 U-TLP 焊接过程的研究结果相似^[13]。

图 2 不同的超声振动时间获得的接头微观结构

对图 2d 中数字标记位置进行 EDS 元素分析, 以及对超声 3 s 试样接头断口表面进行 XRD 物相分析。EDS 元素分析结果如表 1 所示, XRD 物相分析结果如图 3 所示。图 2d 中的点 1、2 和 3 分别位于浅灰色区域, 深灰色区域和黑色区域, 结合图 3 所示 XRD 物相分析, 可以得出, 点 1、2 和 3 分别对应于 $\xi(\text{Ag}_2\text{Al})$, $\theta(\text{Al}_2\text{Cu})$ 和 $\alpha\text{-Al}$ 相。图 4 所示为超声振动 15 s 时接头 EDS 区域面能谱扫描结果, 图 4 中可以观察到焊缝组织均匀, 无明显界面, 表明获得了完整的固溶体接头。

表 1 图 2d 中数字标记位置的元素组成

序号	Si(at. %)	Al(at. %)	Ag(at. %)	Cu(at. %)	可能相
1	—	57.04	42.96	—	$\xi(\text{Ag}_2\text{Al})$
2	14.21	50.08	—	35.72	$\theta(\text{Al}_2\text{Cu})$
3	—	92.21	7.79	—	$\alpha\text{-Al}$

图 3 超声振动 3 s 时接头断裂面 XRD 物相分析

图 4 超声振动 15 s 时接头 EDS 区域面扫描

图 2 表明超声振动对接头微观组织演变和 Si 颗粒的分布影响。超声振动可以在固/固界面处产生声塑性效应和摩擦,使氧化膜出现缺口,从而使新鲜金属露出、接触并产生相互扩散。当扩散达到一定程度时,基体金属与中间层产生冶金反应,形成共晶液相。此外,超声波在液相中存在声空化效应和声流搅拌效应^[14]。声空化效应会在固/液界面产生空化气泡,空化气泡崩塌又会产生微射流和瞬间的局部高温高压。微射流对固/液界面形成足够强的冲击力,进一步破坏氧化膜,从而促进 Al-50Si 与 Ag-28Cu 之间的相互扩散。而瞬间的局部高温高压,使金属液相形成温度梯度和压力梯度,从而使金属液相产生流动,阻碍晶粒长大和均匀分布焊缝组织。仅超声 15 s,获得了完整的固溶体接头,焊缝闭合,如图 2f 所示。因此,超声诱导了三元共晶液相形成,促进了 Si 颗粒在三元共晶液相中的迁移,形成颗粒

增强的复合强化焊缝。

超声振动也会促进等温凝固过程的进行。由于 Si 颗粒的存在,而且在声空化效应和声流搅拌效应的作用下,在残余三元共晶合金中观察到两条不连续线。此外,通过引入超声振动和压力引起的液相挤出,也有助于等温凝固过程。最后,超声振动 15 s,获得了完整的固溶体接头。超声振动的引入,缩短了等温凝固的完成时间。等温凝固过程局限于熔点抑制剂(Melting point depressant, MPD)在中间层中的扩散,在传统 TLP 焊接的真空环境中,完全等温凝固所需要的时间更长^[15]。

图 5 展示了完全固溶体接头形成过程示意图。由于焊接过程在大气环境中进行, Al-50Si 和 Ag-28Cu 中间层之间的表面氧化膜起阻挡作用,如图 5a 所示。在 a→b 阶段,表面氧化膜被去除,这主要归因于超声振动的影响^[16]。去除氧化膜后, Al-50Si 与 Ag-28Cu 中间层发生原子相互扩散,并通过超声振动促进。根据图 6 所示的 Al-Ag-Cu 三元相图,当 Ag、Cu 和 Al 之间的相互扩散达到一定程度时,Al、Ag 和 Cu 发生三元共晶反应,产生三元共晶液相,并且 Si 颗粒迁移进三元共晶液相中。然而,少量的 Ag-28Cu 中间层未消耗。随着超声振动时间的延长, Ag-28Cu 中间层完全消耗并消失,接头由 Si 颗粒和三元共晶合金组成,包括 $\xi(\text{Ag}_2\text{Al})$, $\theta(\text{Al}_2\text{Cu})$ 和 $\alpha\text{-Al}$, 如图 5b 和 5c 所示。随着超声振动时间的增加,三元共晶合金减少,在 c→d 阶段开始等温凝固过程。进一步增加超声振动时间,三元共晶合金完全消失,并通过超声振动转化为 Al (Ag, Cu) 固溶体,等温凝固过程也受到液相挤出的影响。最后,在超声振动辅助下,获得了 Si 颗粒增强的完全固溶体接头,焊缝闭合,如图 5f 所示。

图 5 完全固溶体接头形成过程示意图

图 7 显示了经超声振动 9 s 不同焊接温度处理的接头微观结构。从图 7a 可以看出,超声振动 9 s, 500 °C (Al-Ag-Cu 三元共晶点温度) 焊接温度下,界面未发生结合,表明超声振动 9 s, 500 °C 焊接温度下, Al-50Si 和 Ag-28Cu 接触表面氧化膜没有破

除, 使界面难以形成结合。这意味着界面结合与超声时间和焊接温度有关。当焊接温度为 510 °C 和 530 °C 时, 如图 7b 和 7c 所示, 焊缝宽度分别约为 243 μm 和 65 μm , 焊缝观察到典型的 Al-Ag-Cu 三元共晶形态, 表明焊接温度对 Ag、Cu 和 Al 之间的相互扩散产生影响, 温度增加, 加速了原子扩散。

图 6 Al-Ag-Cu 三元相图

图 7 经超声振动 9 s 不同焊接温度处理的接头微观结构

图 8a 为接头剪切强度测试结果。随着超声振动时间从 1 s 增加到 6 s, 接头剪切强度显著增加。然而, 当超声波振动时间从 6 s 增加到 15 s, 剪切强度持续增长, 但速度缓慢。由于三元共晶合金的形成, 接头的剪切强度从超声 1 s 时的约 12 MPa 显著增加到超声 6 s 时的约 108 MPa。超声振动时间为 1 s 和 3 s 时, 接头相对较低的剪切强度与未消耗完全的 Ag-28Cu 中间层有关。图 8b 显示了超声 3 s 试样断口表面微观结构, 在断裂表面上存在大量 Si 颗粒, 焊缝观察到韧窝存在, 断裂方式属于韧性断裂。图 8c 显示了超声 6 s 试样断口表面微观结构, 其中大部分断裂发生在接头处, 少部分发生在基体金属中。剪切强度的增加, 归因于 Si 颗粒在焊缝中的弥散分布引起的弥散强化, 以及 Al(Ag, Cu) 固溶体的固溶强化效果。当超声振动时间为 12 s 时, 断裂路径大部分位于 Al-50Si 合金中, 如图 8d 所示。超声振动 15 s 试样, 获得了 Si 颗粒增强的

完全固溶体接头, 接头剪切强度约为 123 MPa, 接近于基体金属的剪切强度。在先前的研究中^[13], 通过超声诱导的 Al-50Si 与 Zn 中间层的瞬间液相连接获得约 94 MPa 的接合强度, Ag-28Cu 中间层的选择提高了结合强度。

图 8 接头强度测试结果及经不同超声时间处理的试样断口表面形貌

3 结论

本文应用超声诱导瞬间液相焊的方法, 通过超声波诱导 Al-Ag-Cu 三元共晶反应, 在大气环境下, 以 Ag-28Cu 为中间层, 焊接 Al-50Si 合金。试验结论如下。

(1) 在低于 Ag-28Cu 中间层熔点(660 °C)的情况下, 520 °C 进行焊接, 超声波的声塑性效应, 使基体金属与中间层间的氧化膜被快速破除, 且超声加速元素的互扩散, 促进冶金反应的进程, 以及诱导形成三元共晶液相。超声振动仅 3 s, 界面发生了冶金结合, 超声振动 15 s, 成功焊接 Al-50Si 合金, 焊缝闭合并获得 Si 颗粒增强的完整固溶体接头。

(2) 焊缝中检测到 $\xi(\text{Ag}_2\text{Al})$, $\theta(\text{Al}_2\text{Cu})$, Al(Ag, Cu) 和 $\alpha\text{-Al}$ 固溶体的存在, 表明在远低于 Ag-28Cu 中间层熔点(660 °C)的情况下进行焊接, 超声诱导形成了 Al-Ag-Cu 三元共晶合金。

(3) 焊接温度对 Ag, Cu 和 Al 之间的相互扩散产生影响, 温度增加, 加速了原子扩散。

(4) 超声振动 15 s 试样, 断裂发生在基体金属, 断裂表面存在韧窝, 断裂方式属于韧性断裂, 接头剪切强度最高, 达到约 123 MPa。

(5) 接头剪切强度与 Al(Ag, Cu) 固溶体的固溶强化效果和 Si 颗粒在焊缝中的弥散均匀分布引起的弥散强化有关。

参 考 文 献

- [1] ZHANG Huiwen, CUI Wei, HE Jingshan, et al. Formation and evolution of intermetallic compounds at interfaces of Cu/Al joints by ultrasonic-assisted soldering[J]. J. Mater. Process Tech., 2015, 223: 1-7.
- [2] PADHY G, WU Chuansong, GAO Song. Subgrain formation in ultrasonic enhanced friction stir welding of aluminium alloy[J]. Mater. Lett., 2016, 183: 34-39.
- [3] WANG Qian, CHEN Xiaoguang, ZHU Lin, et al. Rapid ultrasound-induced transient-liquid-phase bonding of Al-50Si alloys with Zn interlayer in air for electrical packaging application[J]. Ultrason. Sonochem., 2017, 34: 947-952.
- [4] JI Hongjun, QIAO Yunfei, LI Mingyu. Rapid formation of intermetallic joints through ultrasonic-assisted die bonding with Sn-0.7Cu solder for high temperature packaging application[J]. Scripta. Mater., 2015, 110: 19-23.
- [5] LI Zhoulin, DONG Hongjie, SONG Xiaoguo, et al. Rapid formation of Ni₃Sn₄ joints for die attachment of SiC-based high temperature power devices using ultrasound-induced transient liquid phase bonding process[J]. Ultrason. Sonochem., 2017, 36: 420-426.
- [6] WANG Qian, CHEN Xiaohuang, ZHU Lin, et al. Si particulate-reinforced Zn-Al based composites joints of hypereutectic Al-50Si alloys by ultrasonic-assisted soldering[J]. Mater. Des., 2016, 107: 41-46.
- [7] KAI A, SOYAMA H. Visualization of the plastic deformation area beneath the surface of carbon steel induced by cavitation impact[J]. Scripta. Mater., 2008, 59: 272-275.
- [8] LOTFI B, ROSTAMI M, SADEGHIAN Z. Effect of silicon content on microstructure of Al-Si/SiC_p composite layer clad on A380 Al alloy by TIG welding process[J]. Transactions of Nonferrous Metals Society of China, 2014 (9): 2824-2830.
- [9] 张建云, 郭世刚, 崔霞, 等. SiC_p/Al 复合材料的钎焊工艺研究[J]. 热加工工艺, 2012(1): 28-30.
- ZHANG Jianyun, GUO Shigang, CUI Xia, et al. Study on brazing process for SiC_p/Al composite[J]. Hot Working Technology, 2012(1): 28-30.
- [10] 张新平, 魏巍, 权高峰. SiC_p 增强 Al 基复合材料的真空扩散焊接[J]. 金属学报, 1992(2): 198-202.
- ZHANG Xinping, WEI Wei, QUAN Gaofeng. Investigation on diffusion bonding characteristics of SiC_p reinforced aluminium matrix composite[J]. Acta Metallurgica Sinica, 1992(2): 198-202.
- [11] SAKAI Y, SCHNEIDER-MUNTAU H J. Ultra-high strength, high conductivity Cu-Ag alloy wires[J]. Acta Mater., 1997, 45: 1017-1023.
- [12] SAKAI Y, INOUE K, MAEDA H. New high-strength, high-conductivity Cu-Ag alloy sheets[J]. Acta Metall. Mater., 1995, 43: 1517-1522.
- [13] LAI Zhiwei, XIE Ruishan, PAN Chuanchen, et al. Ultrasound-assisted transient liquid phase bonding of magnesium alloy using brass interlayer in air [J]. J. Mater. Sci. Technol., 2016, 6: 567-572.
- [14] CUI Wei, WANG Changwen, YAN Jiuchun, et al. Wetting and reaction promoted by ultrasound between sapphire and liquid Al-12Si alloy[J]. Ultrason. Sonochem., 2012, 20: 196-201.
- [15] BOBZIN K, BOSSE L, BRANDENBURG A, et al. Transient liquid phase bonding[J]. Annu. Rev. Mater. Sci., 2004: 65-78.
- [16] XU Zhiwu, MA Lin, YAN Jiuchun, et al. Wetting and oxidation during ultrasonic soldering of an alumina reinforced aluminum-copper-magnesium (2024 Al) matrix composite[J]. Composites Part A, 2012, 43: 407-414.

作者简介: 何朝成, 男, 1989 年出生, 硕士, 实验师。主要研究方向为先进材料及加工技术。

E-mail: hechaocheng_tjut@163.com

王谦(通信作者), 男, 1983 年出生, 博士, 讲师。主要研究方向为材料加工技术, 超声波辅助焊接。

E-mail: wangqian_tjut@163.com