中国科学: 技术科学 2012 年 第 42 卷 第 9 期: 1081 ~ 1091
www.scichina.com tech.scichina.com
《中国科学》杂志社
SCIENCE CHINA PRESS

基于金属扩散连接机制动力学条件的空洞闭合模型

马瑞芳, 李淼泉*, 李宏, 于卫新

西北工业大学材料科学与工程学院, 西安 710072
* E-mail: honeymli@nwpu.edu.cn

收稿日期: 2012-02-12; 接受日期: 2012-03-22
国家自然科学基金(批准号: 50975234)资助项目

摘要 提出了金属扩散连接时塑性变形机制、表面源机制、界面源机制和蠕变机制作用的动力学条件; 基于各种机制作用的动力学条件, 导出了金属扩散连接过程中的空洞闭合模型, 分析了扩散连接工艺条件对机制作用效应的影响; 分析发现 Ti-6Al-4V 合金的扩散连接温度或压力较低、时间较短时, 界面源机制起主要作用, 否则, 蠕变机制起主要作用, 且直至扩散连接过程结束; 延长扩散连接时间, 表面源机制和界面机制的作用增强到一定阶段后停止, 蠕变机制的作用持续增强; 提高扩散连接温度或增大压力, 界面源机制的作用减弱, 其他机制的作用均增强. Ti-6Al-4V 合金扩散连接实验结果表明, 本文模型的预测值与实验值之间的最大误差为 12.86%, 平均误差为 5.79%.

关键词
扩散连接
动力学条件
空洞模型
Ti-6Al-4V 合金

金属材料扩散连接是一种精密的固态连接技术, 已广泛应用于航空、航天、仪表及电子等工业领域[1~3]. 扩散连接开始阶段, 连接界面只有局部接触, 空洞存在并受工艺参数等影响; 结束时界面可能残存空洞, 并影响连接构件的使用性能. 因此, 深刻认识扩散连接时空洞闭合过程与机理对于获得高性能连接构件具有重要意义.

近半个世纪以来, 学者们建立了扩散连接理论模型描述连接界面空洞闭合过程, 目的是优化连接工艺参数和提高连接构件质量. Hamilton[4]提出的扩散连接理论模型中假设空洞表面为三角形截面的长条体或棱锥体, 并且仅考虑塑性变形机制, 过于简单. Garmong 等人[5]模型考虑连接表面波纹度凸凹性和粗糙度凸凹性, 认为由波纹度引起的大空洞消失是由蠕变单独完成, 但预测的连接时间过长. Derby 模型[6, 7]假设空洞由菱形柱过渡到圆柱, 基于压力烧结理论提出了包括初始塑性变形、表面扩散、晶界扩散和蠕变等七种连接机制, 但对整个扩散连接过程的数学描述上不连续. Hill 等人[8]在 Derby 模型的基础上, 采用椭圆形空洞, 分析了蠕变和塑性变形机制, 但没有考虑各种机制作用的动力学条件, 包括它们是否真正发生、实际作用时间、距离极限, 从而夸大各种机制的作用, 影响模型的准确性. 之后的 Orhan[9]模型、Wu[10]模型也均没有考虑各种机制作用的动力学条件.

本文以金属材料扩散连接时的塑性变形机制、表面源机制、界面源机制与蠕变机制作用为基础, 提出了扩散连接界面空洞闭合过程中各种机制作用的动

英文版发表信息: Ma R F, Li M Q, Li H, et al. Modeling of void closure in diffusion bonding process based on dynamic conditions. Sci China Tech Sci, 2012, 55: 2420–2431, doi: 10.1007/s11431-012-4927-1

力学条件; 在此基础上, 建立了金属扩散连接时的空洞闭合模型. Ti-6Al-4V 合金的扩散连接实验结果验证了模型的可靠性, 分析了扩散连接时间、温度和压力对 Ti-6Al-4V 合金扩散连接过程中各种机制的作用规律.

1 空洞闭合模型

1.1 连接机制与基本假设

以 Derby 模型[6, 7]所讨论的 7 种机制为基础, 本文忽略由表面源到空洞颈部的气化沉积作用, 采用的 6 种扩散连接机制如下:

(i) 初始塑性变形,

(ii) 由表面源到空洞颈部的表面扩散,

(iii) 由表面源到空洞颈部的体积扩散,

(iv) 由界面源到空洞颈部的晶界扩散,

(v) 由界面源到空洞颈部的体积扩散,

(vi) 幂定律蠕变,

其中, (ii)与(iii)属于表面源机制, (iv)与(v)属于界面源机制.

为简化模型计算, 基本假设如下.

(i) 初始空洞几何形状为椭圆形, 如图 1 所示. 图 1 中, h'为初始空洞高度的一半(μm), c'为初始空洞宽度的一半(μm);

(ii) 连接界面处变形为平面应变, 即沿单位长度 Y 方向上应变为零;

(iii) 初始塑性变形机制作用停止后再出现其他机制;

(iv) 在界面源机制中的晶界扩散为稳态, 连接界面近似为晶界;

(v) 忽略末端效应;

(vi) 相邻两空洞中心间距不变.

1.2 动力学条件与模型

1.2.1 初始塑性变形

1) 动力学条件

扩散连接初期, 连接界面实际接触面积比名义接触面积小得多. 连接界面的应力超过材料的屈服强度时, 塑性变形发生. 随着变形继续, 连接界面实际接触面积增大, 应力随之下降. 连接界面应力小于材料屈服强度时, 塑性变形停止.

综上所述, 初始塑性变形作用的动力学条件如下:

(i) $\sigma' > \sigma_y$, 初始塑性变形作用开始, (1)

(ii) $\sigma' = \bar{\sigma}$, 初始塑性变形作用停止, (2)

其中, σ'为连接界面所受压力(MPa), σ_y为金属材料的屈服强度(MPa), $\bar{\sigma}$ 为连接界面的平均应力(MPa).

2) 数学模型

金属扩散连接界面空洞形状如图 2 所示. 图 2 中, e 为连接界面接合长度的一半(μm), a 为相邻两空洞间距的一半(μm), h 为空洞高度的一半(μm), c 为空洞宽度的一半(μm). 则连接界面所受压力为

$$\sigma' = \frac{pa - \gamma}{e}, \tag{3}$$

式中, γ 为表面能(J/m^2), p 为扩散连接压力(MPa).

扩散连接开始阶段, 连接界面实际接合长度很小, 连接界面受力满足(1)式, 初始塑性变形机制开始作用, 但扩散连接压力需满足 $p>\gamma/a$.

假设连接界面区域附近滑移线场连续, 由滑移线场理论得连接界面沿空洞颈部方向应力分布的表达式为[11]

$$\sigma(x) = 2K\left[1 + \ln\left(1 + \frac{x}{r_A}\right)\right], \tag{4}$$

式中, K 为材料剪切屈服强度(MPa), $K = \sigma_y/\sqrt{3}$; r_A 为空洞颈部曲率半径(μm).

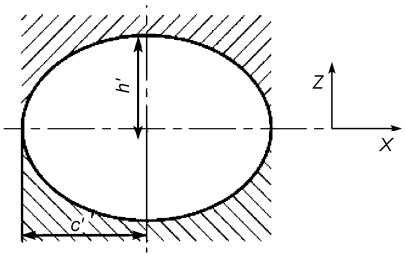

图 1 连接界面初始空洞几何模型

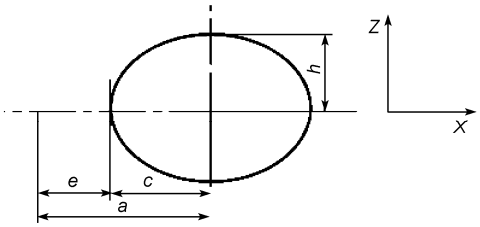

图 2 初始塑性变形时的空洞形状

扩散连接过程中, 连接界面的平均应力为

$$\bar{\sigma}=\frac{\int_0^e \sigma(x)\mathrm{d}x}{e}. \tag{5}$$

整理后, 得

$$\bar{\sigma}=2K\left(1+\frac{r_A}{e}\right)\ln\left(1+\frac{e}{r_A}\right), \tag{6}$$

式中, $r_A=h^2/c$, $c=a-e$.

初始塑性变形机制瞬间作用, 与扩散连接时间无关, 可求得该机制作用停止时的空洞高度与连接界面接合长度. 当扩散连接界面受力满足动力学条件(2)式时, 即 $\sigma'=\bar{\sigma}$, 初始塑性变形停止, 则初始塑性变形停止时扩散连接界面接合长度为

$$e_{\text{yield}}=\frac{pa-\gamma}{2K\left[1+\dfrac{h_{\text{yield}}^2}{e_{\text{yield}}(a-e_{\text{yield}})}\right]\ln\left(1+\dfrac{e_{\text{yield}}(a-e_{\text{yield}})}{h_{\text{yield}}^2}\right)}. \tag{7}$$

扩散连接过程中连接界面金属塑性变形前后满足体积不变原理, 则初始塑性变形机制作用下空洞高度为

$$h_{\text{yield}}=h'\frac{a-\dfrac{\pi}{4}c'}{a-\dfrac{\pi}{4}\left(a-e_{\text{yield}}\right)}. \tag{8}$$

用迭代法求解由(7)和(8)式组成的非线性方程组, 得到塑性变形结束时的空洞高度和连接界面接合长度. 初始塑性变形结束后的空洞状态决定了后续其他机制的初始条件.

1.2.2　表面源机制

1) 动力学条件

当空洞表面曲率不同时, 空洞表面的化学势不同, 使得原子能很快沿空洞表面迁移, 导致空洞尺寸及形状变化. 当空洞表面曲率相同, 即为圆形时, 表面扩散停止作用. 由此可见, 表面源机制作用的驱动力为空洞表面存在的曲率差. 事实上, 表面扩散的圆化效应在一定时间内是有距离极限的, 即表面扩散有作用范围. Mullins[12]提出了在时间 t 内表面扩散涉及的长度表达式为

$$d_{\text{s}}=0.46\left(\frac{D_{\text{s}}\delta_{\text{s}}\gamma\Omega}{kT}t\right)^{1/4}, \tag{9}$$

式中, d_{s} 为表面扩散涉及的长度(μm), D_{s} 为表面扩散系数(m^2/s), Ω 为原子体积(m^3), k 为玻尔兹曼常数(1.38×10^{-23} J/K), T 为扩散连接绝对温度(K), t 为扩散连接时间(s), δ_{s} 为表面扩散层厚度(m).

假设空洞表面最大曲率处 A 点到 B 点之间的距离近似等于表面扩散涉及的长度 d_{s}, 如图 3 所示, 空洞表面 B 点的曲率半径公式如下:

$$r_B=\frac{\left(c^2\sin^2\theta+h^2\cos^2\theta\right)^{3/2}}{ch}, \tag{10}$$

式中, θ 含义如图 3 所示.

综上所述, 表面源机制作用的动力学条件如下:

(i) 当 $r_A\neq r_B$ 时, 表面源机制作用; (11)

(ii) 当 $r_A=r_B$ 时, 表面源机制作用停止. (12)

2) 数学模型

基于 Gibbs-Thompson 关系和 Kuczynski[13]的压力烧结模型, 原子体积通量为

$$\dot{V}=\frac{2AD\Omega}{rkT}\frac{\gamma}{r}, \tag{13}$$

式中, A 为扩散流通过的截面面积(μm^2), D 为扩散系数(m^2/s), r 为曲率半径(μm).

由(11)和(12)式可知, 当 $r_A=r_B$ 时, 表面源机制作用停止, 物质迁移率应为零, 在(13)式中增加一个修正因子 $\left(\dfrac{1}{r_A}-\dfrac{1}{r_B}\right)$, 则由表面源到空洞颈部的物质迁移率为

$$\dot{V}=\frac{2AD\gamma\Omega}{r_AkT}\left(\frac{1}{r_A}-\frac{1}{r_B}\right). \tag{14}$$

由表面源到空洞颈部的表面扩散作用下物质迁移率为

$$\dot{V}_1=\frac{2\Omega D_{\text{s}}\delta_{\text{s}}\gamma}{r_AkT}\left(\frac{1}{r_A}-\frac{1}{r_B}\right). \tag{15}$$

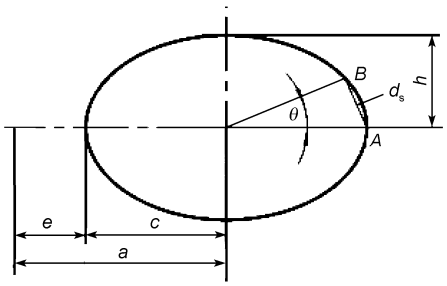

图 3　沿空洞表面物质流动

由表面源到空洞颈部的体积扩散作用下物质迁移率为

$$\dot{V}_2=\frac{2\Omega D_V\gamma}{kT}\left(\frac{1}{r_A}-\frac{1}{r_B}\right), \tag{16}$$

式中, D_V 为体积扩散系数(m^2/s).

由于表面源机制只改变空洞形状, 不改变空洞体积, 假设在这一阶段, h 增大, c 减小, 如图 4(a)所示, 则有

$$\frac{\pi}{4}h(c+\delta c)=\frac{\pi}{4}c(h+\delta h), \tag{17}$$

忽略二阶无穷小后整理得

$$c\delta h=h\delta c. \tag{18}$$

为方便计算, 将图 4(a)简化成 4(b), 则表面源机制作用过程中, 传输的物质体积为

$$\delta V=\frac{1}{2}\left[\frac{\pi}{4}(h+\delta h)(c+\delta c)-\frac{\pi}{4}hc\right], \tag{19}$$

这一假设是对实际传输的物质体积进行近似等量替换, 产生的误差与该机制作用下实际传输的物质体积相比很小, 可忽略不计.

将(18)式代入(19)式中, 忽略二阶无穷小, 得表面源机制作用下空洞高度变化率为

$$\dot{h}_{1,2}=\frac{4\dot{V}_{1,2}}{\pi c}. \tag{20}$$

空洞体积不变, 则连接界面接合长度变化率为

$$\dot{e}_{1,2}=\frac{\dot{h}_{1,2}c}{h}. \tag{21}$$

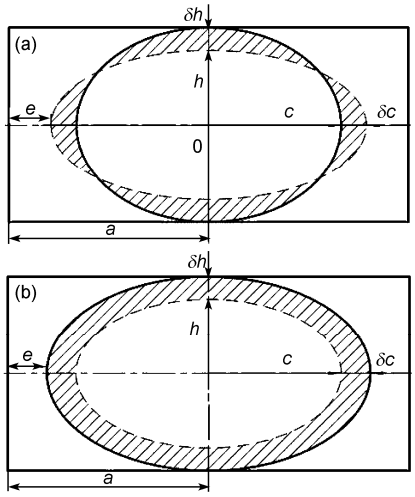

图4 表面源机制作用下物质分布

(a) 物质重新分布引起的实际空洞形状变化; (b) 简化的空洞形状变化

当 $r_A=r_B$ 时, 表面源机制作用停止, 空洞高度变化率及连接界面接合长度变化率均为 0.

1.2.3 界面源机制

1) 动力学条件

图 5 为连接界面应力分布, 应力区域Ⅰ临近空洞, 该区应力梯度沿 X 方向逐渐减小; 应力区域Ⅱ远离空洞, 该区应力为常数. 由于界面源机制作用的驱动力为沿连接界面的应力梯度, 则应力区域Ⅰ为有效扩散区, 仅发生晶界扩散, 而区域Ⅱ只发生蠕变. 在扩散连接过程中原子沿连接界面沉积到空洞颈部, 物质的沉积使应力区域Ⅰ的应力得到松弛, 导致应力在区域Ⅰ和区域Ⅱ重新分布并从区域Ⅰ流向区域Ⅱ(即区域Ⅰ应力降低, 区域Ⅱ应力增大), 这说明晶界扩散受到材料蠕变的约束. 下面求解应力区域Ⅰ的长度, 即界面源机制的作用范围.

Chen 等人[14]基于由晶界扩散与蠕变耦合作用的晶界空洞长大模型, 提出了晶界有效扩散的特征长度, 认为: 在此距离内晶界扩散作用下原子流动比蠕变作用更有效, 即晶界扩散为主, 且基体蠕变可有效缩短晶界扩散的距离. 晶界有效扩散的特征长度 d_B 表达式为

$$d_B=\left[\frac{D_B\delta_B\Omega p}{A_c kT(p/G)^n}\right]^{1/3}, \tag{22}$$

式中, D_B 为晶界扩散系数(m^2/s), δ_B 为晶界厚度(m), A_c 为蠕变系数, G 为切变模量(GPa).

假设 l 为应力梯度区域Ⅰ的长度, 即界面源机制的作用范围, 如图 5 所示, 取值情况如下:

(i) 当 $d_B\geqslant e$ 时, $l=e$; (23)

(ii) 当 $d_B<e$ 时, $l=d_B$. (24)

l 满足(23)式时, 应力区域Ⅱ不存在.

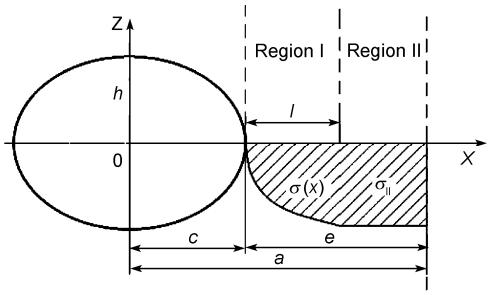

图 5 连接界面应力分布

2) 数学模型

基于 Johnson 的烧结理论[15]求解由界面源到空洞颈部的物质迁移率, 沿连接界面原子流动通量 J 为

$$J=\frac{-D}{\Omega kT}\nabla\mu, \tag{25}$$

式中, $\nabla\mu$ 为沿连接界面原子的化学势梯度, 可用下式求解:

$$\nabla\mu=\Omega\nabla\sigma(x), \tag{26}$$

式中, $\nabla\sigma(x)$ 为沿连接界面的应力梯度.

由于晶界扩散为稳态, 结合(25)和(26)式, 则有

$$\nabla J=\frac{D}{kT}\nabla^2\sigma(x)=\text{const (常数)}. \tag{27}$$

由上式可知:

$$\nabla^2\sigma(x)=\text{const (常数)}. \tag{28}$$

(28)式的边界条件为

(i) 当 $x=c$ 时, $\sigma=\gamma/r_A$;

(ii) 当 $x=c+l$ 时, $\frac{\mathrm{d}\sigma}{\mathrm{d}x}=0$;

(iii) 当 $x>c+l$ 时, $\sigma=\sigma_{\mathrm{II}}$.

扩散连接界面应满足的力平衡条件为

(iv) $\int_c^{c+l}\sigma\mathrm{d}x=\sigma_{\mathrm{I}}l-\gamma$,

(v) $pa=\sigma_{\mathrm{I}}l+\sigma_{\mathrm{II}}(e-l)$,

式中, σ_{I} 为区域 I 的平均应力(MPa), σ_{II} 为区域 II 的应力(MPa).

结合边界条件与力学平衡条件, 解微分方程式(28), 可得

$$\nabla\sigma=\frac{3}{l^2}\left[\sigma_{\mathrm{I}}l-\gamma\left(1+\frac{l}{r_A}\right)\right], \tag{29}$$

$$\sigma_{\mathrm{I}}=\frac{2alp+\left[3(l-2c)(e-l)\left(\frac{1}{l}+\frac{1}{r_A}\right)-\frac{2l(e-l)}{r_A}\right]\gamma}{2l^2+3(l-2c)(e-l)}. \tag{30}$$

将(30)式代入(29), (26)和(25)式中, 求得由界面源到空洞颈部的晶界扩散作用下物质迁移率为

$$\dot{V}_3=\frac{3D_B\delta_B\Omega}{2kTl}\left(\sigma_{\mathrm{I}}-\frac{\gamma}{l}-\frac{\gamma}{r_A}\right). \tag{31}$$

由界面源到空洞颈部的体积扩散作用下物质迁移率为

$$\dot{V}_4=\frac{3D_V\Omega r_A}{kTl}\left(\sigma_{\mathrm{I}}-\frac{\gamma}{l}-\frac{\gamma}{r_A}\right). \tag{32}$$

假设界面源机制作用下材料体积不变, 但空洞形状和体积改变. 该机制作用过程中, 物质迁移体积为 $\delta V=e\delta h$, 空洞高度减小, 则在界面源机制作用下空洞高度变化率为

$$\dot{h}_{3,4}=-\frac{\dot{V}_{3,4}}{e}. \tag{33}$$

单元中材料体积不变, 则可求得连接界面接合长度变化率为

$$\dot{e}_{3,4}=-\frac{\dot{h}_{3,4}}{h}\left[a\left(\frac{4}{\pi}-1\right)+e\right]. \tag{34}$$

当应力区域 I 中应力梯度 $\nabla\sigma=0$, 界面源机制停止作用, 空洞高度变化率与连接界面接合长度变化率均为 0.

1.2.4 幂定律蠕变机制

1) 动力学条件

扩散连接过程中, 金属微观蠕变对空洞闭合也有影响. 随着空洞尺寸的变化, 扩散连接界面附近的应力与应变速率也随之发生改变. 由界面源机制作用的动力学条件(23)和(24)式可知, 当满足(23)式时, 应力区域 II 不存在, 蠕变机制不起作用; 当满足(24)式时, 应力从区域 I 流向区域 II, 应力区域 II 存在, 蠕变机制起作用. 则蠕变机制作用的动力学条件为

$$d_B<e. \tag{35}$$

2) 数学模型

将连接界面附近材料划分为 N 层相互平行的小窄条(如图 6 所示), 其中, N 为整数(1, 2, 3,⋯,N), 则每一层的厚度为 h/N.

第 i 片上的应力可按下式求得(i=1, 2, 3, ⋯, N)

$$\sigma_i=\left(\frac{a}{x_i}\right)p, \tag{36}$$

式中, $x_i=a-c\sqrt{1-\frac{z_i^2}{h^2}}$.

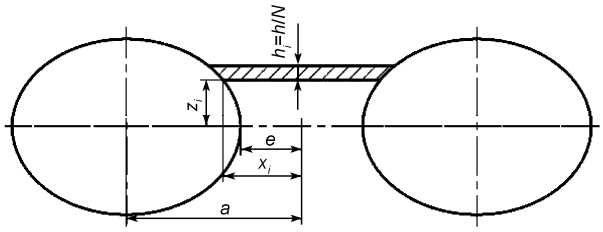

图 6　空洞划分为 N 片示意图

则第 i 片上的应变速率为

$$\dot{\varepsilon}_i = SA_c\left|\frac{\sigma_i}{G}\right|^n, \tag{37}$$

式中, S 为符号函数, 拉应力时为正, 压应力时为负; n 为蠕变指数.

由应变和应变速率定义可知

$$\frac{\mathrm{d}h_i}{h_i} = \frac{\mathrm{d}h_i}{h/N} = \mathrm{d}\varepsilon_i = \dot{\varepsilon}_i\mathrm{d}t = SA_c\left|\frac{\sigma_i}{G}\right|^n \mathrm{d}t. \tag{38}$$

由极限和积分的定义, (37)式可转化为如下关系式:

$$\frac{\mathrm{d}h}{\mathrm{d}t} = SA_c\left|\frac{p}{G}\right|^n \int_0^h \left(\frac{a}{x_i}\right)^n \mathrm{d}z, \tag{39}$$

则蠕变机制作用下空洞高度变化率为

$$\dot{h}_5 = SA_c\left|\frac{p}{G}\right|^n \int_0^h \left(\frac{a}{a - c\sqrt{1-\frac{z^2}{h^2}}}\right)^n \mathrm{d}z. \tag{40}$$

同界面源机制作用一样, 蠕变机制作用下扩散连接界面接合长度变化率为

$$\dot{e}_5 = -\frac{\dot{h}_5}{h}\left[a\left(\frac{4}{\pi}-1\right)+e\right]. \tag{41}$$

综上所述, 扩散连接各种机制的作用有特定的条件. 表 1 列出了各种机制作用的动力学条件, 由表 1 可以看出, 本文所述的几种机制作用的驱动力、范围、条件和相关工艺参数不同, 但均与材料特性和工艺参数有关.

1.3 模型计算

由于空洞高度与扩散连接界面接合长度模型均是关于材料特性和工艺参数的函数, 对于某一金属材料, 根据其初始表面状态(h'和 c'), 在一定扩散连接温度、压力和时间下, 可求得初始塑性变形机制作用结束时的空洞高度 h_{yield} 和连接界面接合长度 e_{yield}, 并将其作为其他几种机制作用的初始条件; 根据各种机制作用的动力学条件, 采用 Runge-Kutta 法迭代计算初始塑性变形机制作用结束后其他机制作用时间下的空洞高度和扩散连接界面接合长度; 将所有机制作用下的空洞高度和连接界面接合长度叠加即为金属在扩散连接时间内的空洞高度 h 和扩散连接界面总接合长度 e, 即

$$h = \sum_{i=0}^{5} h_i, \tag{42}$$

$$e = \sum_{i=0}^{5} e_i, \tag{43}$$

式中, h_i 为第 i 个机制作用下空洞的高度, e_i 为第 i 个机制作用下连接界面接合长度, i=0, 1, 2,⋯, 5, 分别对应初始塑性变形、由表面源到空洞颈部的表面扩散、由表面源到空洞颈部的体积扩散、由界面源到空洞颈部的晶界扩散、由界面源到空洞颈部的体积扩散和幂定律蠕变.

引入连接界面接合率表征金属扩散连接空洞闭合过程中连接界面的接合程度, 第 i 个机制作用下扩散连接界面接合率 A_{fi} 表达式如下:

$$A_{fi} = e_i/a, \tag{44}$$

扩散连接界面总接合率 A_f 为

$$A_f = \sum_{i=0}^{5} A_{fi}, \tag{45}$$

该模型计算框架图如图 7 所示.

表 1 各种机制作用的动力学条件

Bonding mechanism	Initial plastic deformation	Surface source mechanism	Interface source mechanism	Creep mechanism
Driving force	Stress in the bonding interface	Difference in void surface curvature	Stress gradient in the bonding interface	Stress in the bonding interface
Action distance	e	d_s	When $d_B \geqslant e$, $l=e$; When $d_B<e$, $l=d_B$	$e-d_B$
Start condition	$\sigma' > \sigma_y$	$r_A \neq r_B$	$\nabla\sigma \neq 0$	$\sigma \neq 0$
Stop condition	$\sigma' = \bar{\sigma}$	$r_A = r_B$	$\nabla\sigma = 0$	$\sigma = 0$
Relevant process parameter	Bonding temperature, pressure and surface roughness	Bonding temperature, pressure and surface roughness	Bonding temperature, time and surface roughness	Bonding temperature, time, pressure and surface roughness

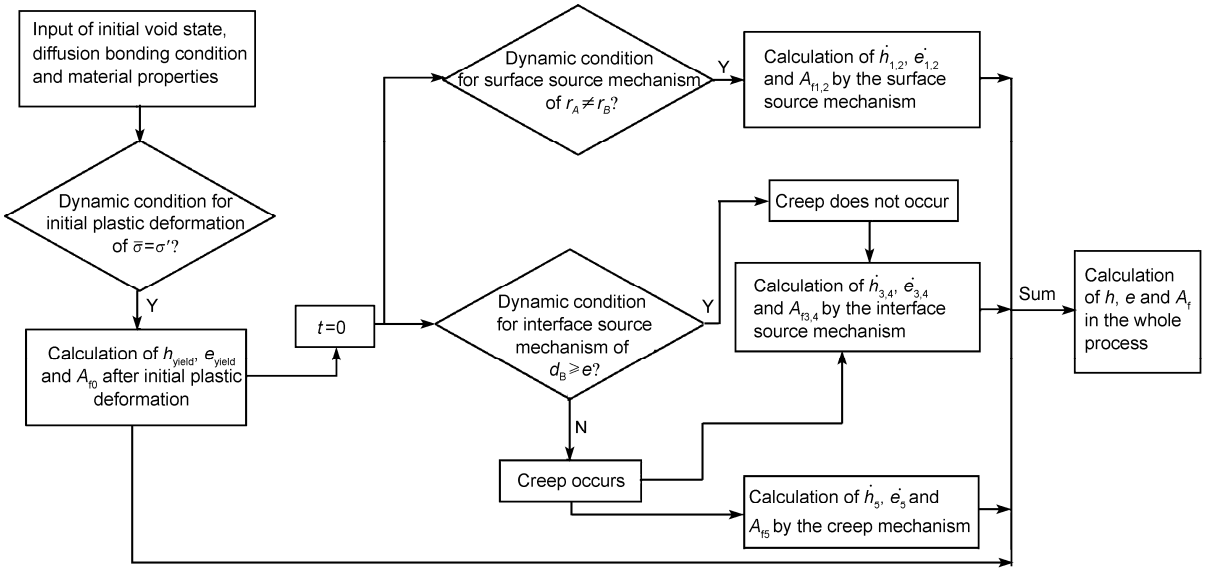

图 7　模型计算框架图

2　模型应用

2.1　实验材料及方法

实验材料为直径 38.0 mm 的 Ti-6Al-4V 合金棒材, 主要化学成分如表 2 所示, 材料特性[16]如表 3 所示; 供应态 Ti-6Al-4V 合金的微观组织如图 8 所示, 主要由等轴的初生α相、少量的层片状次生α相和β相组成; 采用 Image-Pro Plus 图像分析软件用截线法测得初生α相的平均晶粒尺寸约为 10.2 μm.

试样尺寸为 Φ 38 mm×22 mm, 扩散连接温度

表 2　Ti-6Al-4V 合金的主要化学成分(wt%)

Ti	Al	V	Fe	C	N	O	H
Bal	6.5	4.25	0.04	0.02	0.015	0.16	0.0018

表 3　Ti-6Al-4V 合金的材料特性[16] a)

Parameter	Symbol	Unit	α-Ti	β-Ti
Atomic volume	Ω	10^{-29} m^3	1.76	1.81
Burgers vector	b	10^{-10} m	2.95	2.86
Melting point	T_m	K	1933	1933
Shear modulus at 300 K	G	10^{10} Pa	4.36	2.05
Surface energy	γ	Jm^{-2}	1.7	1.7
Temperature coefficient of shear modulus	$(T_m/G)(dG/dT)$	—	-1.2	–0.5
Yield strength at 300 K	σ_y	10^6 Pa	—	—
Volume diffusion coefficient (pre-exponential)	D_{OV}	10^{-7} m^2 s^{-1}	8.6×10^{-3}	1.9
Volume diffusion activation energy	Q_V	10^3 J mol^{-1}	150	153
Grain boundary diffusion coefficient (pre-exponential)	$D_{OB}\delta_B$	10^{-16} m^3 s^{-1}	3.6	0.54
Grain boundary diffusion activation energy	Q_B	10^3 J mol^{-1}	97	153
Surface diffusion coefficient (pre-exponential)	D_{OS}	10^{-6} m^2 s^{-1}	5	5
Surface diffusion activation energy	Q_S	10^3 J mol^{-1}	89	89
Surface diffusion layer thickness	δ_S	10^{-10} m	1	1
Creep constant	A	—	7.7×10^4	1×10^5
Creep coefficient (pre-exponential)	D_{ocr}	10^{-7} m^2 s^{-1}	8.6×10^{-3}	1.9
Creep activation energy	Q_{cr}	10^3 J mol^{-1}	150	153
Creep exponent	n	—	4.3	4.3

a) Ti-6Al-4V 合金屈服应力 $\sigma_y = 884 - 0.92(T-273)$, 773 K<$T$<1223 K; 体积扩散系数 $D_V = D_{OV}\exp(-Q_V/RT)$, 晶界扩散系数 $D_B = D_{OB}\exp(-Q_B/RT)$, 表面扩散系数 $D_S = D_{OS}\exp(-Q_S/RT)$, 蠕变系数 $A_c = AD_{ocr}\exp(-Q_{cr}/RT)Gb/kT$, R 为气体常数(8.314 J/(mol K)), δ_B=2b.

1123 K, 连接压力为 10 MPa, 连接时间为 300, 600 和 900 s. 实验前, 扩散连接面用 240#, 400#, 600#, 800#, 1000#, 1200#, 1500# SiC 砂纸逐级磨光, 用丙酮擦洗干净、风干后, 将试样置入 ZYD-60L 型真空电阻热压炉内, 抽真空至 10^{-3} Pa, 以一定的加热速率达到扩散连接温度 1123 K, 保温一段时间后加压到 10 MPa, 并保压至扩散连接所需时间后卸载、炉冷, 扩散连接实验原理如图 9 所示. 用 3D 激光显微镜 VK-9710 型表面粗糙度仪测量经过 1500#砂纸磨削过的试样表面的粗糙度参数, 分别为轮廓最大高度 R_z=1.15 μm、轮廓均方根波长λ_q=5.01 μm, 分别对应初始空洞的高度与宽度. 用 Image-Pro Plus 图像分析软件测量实验结束后 Ti-6Al-4V 合金的扩散连接界面总接合率.

2.2 模型验证

扩散连接温度 1123 K 和连接压力 10 MPa 时, Ti-6Al-4V 合金扩散连接界面总接合率的预测值与实验值对比情况如图 10 所示. 由图 10 可知, 本文模型的预测结果与实验结果更吻合, 两者之间的最大误差为 12.86%, 平均误差为 5.79%. 对照 Hill 模型, 本文模型的预测精度更高.

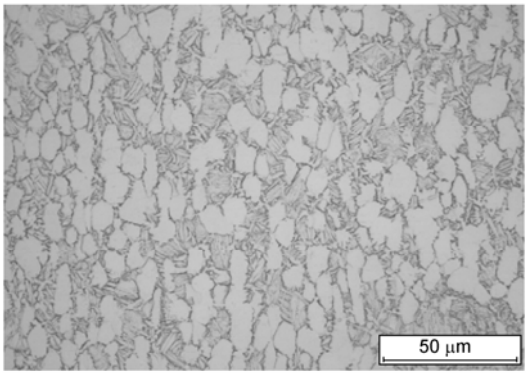

图 8 供应态 Ti-6Al-4V 合金的微观组织

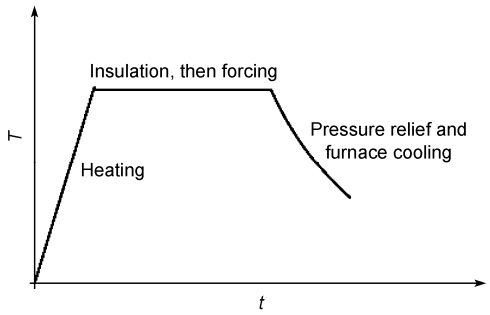

图 9 Ti-6Al-4V 合金扩散连接实验原理

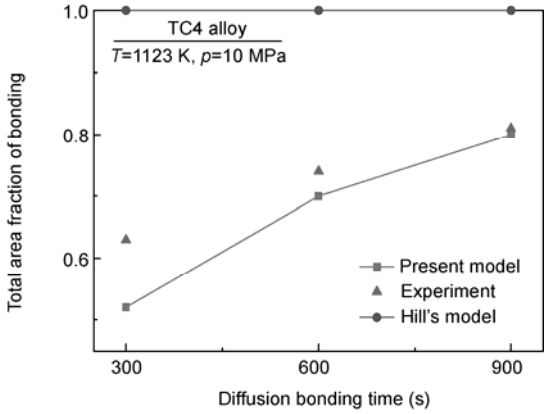

图 10 模型的预测结果与实验结果的对比

2.3 动力学分析

由于各种机制的作用均与扩散连接工艺参数有关, 将模型应用于 Ti-6Al-4V 合金的扩散连接, 研究扩散连接时间、温度和压力对 Ti-6Al-4V 合金扩散连接过程中各种机制作用的影响规律.

2.3.1 扩散连接工艺参数对初始塑性变形机制作用的影响

由于初始塑性变形机制的作用瞬时发生, 不受扩散连接时间的影响. 扩散连接温度和压力对其作用的影响分别如下.

扩散连接压力 10 MPa 时, 扩散连接温度对 Ti-6Al-4V 合金扩散连接过程中初始塑性变形机制作用的影响如图 11 所示. 由图 11 可知, 随着扩散连接温度的升高, 初始塑性变形机制的作用增强. 这是由于金属材料的屈服强度随扩散连接温度的升高而降低, 连接界面材料变形程度增大, 扩散连接界面接合率增大.

扩散连接温度 1123 K 时, 扩散连接压力对 Ti-6Al-4V 合金扩散连接过程中初始塑性变形机制作用的影响如图 12 所示. 由图 12 可知, 随着扩散连接压力的增大, 初始塑性变形机制的作用增强. 这是由于连接界面的应力随扩散连接压力的增大而增大, 连接界面材料变形程度增大, 扩散连接界面接合率增大.

2.3.2　扩散连接工艺参数对其他机制作用的影响

1) 扩散连接时间

扩散连接温度 1123 K 和连接压力 10 MPa 时, Ti-6Al-4V 合金扩散连接开始阶段, 初始塑性变形机制的作用结束后, 其他机制的作用时间及范围如表 4 所示, 扩散连接时间对连接机制作用的影响如图 13 所示. 由表 4 和图 13 可知, 初始塑性变形结束后, 表面源机制和界面源机制同时作用; 随着扩散连接时间的延长, 界面源机制的作用缓慢增强并起主要作用, 扩散连接时间 400 s 时, 该机制停止作用; 蠕变机制在扩散连接时间 197 s 时起作用并迅速增强, 扩散连接时间超过 400 s 时, 该机制起主要作用并持续至扩散连接过程结束; 表面源机制的作用缓慢增强, 扩散连接时间 1700 s 时, 该机制停止作用, 相比这几种机制, 表面源机制对扩散连接过程的作用较小. 这是由于: (i) 初始塑性变形结束后, 扩散连接界面接合长度小于晶界有效扩散的特征长度, 扩散连接界面只存在应力梯度区域Ⅰ, 蠕变机制不起作用, 界面源机制起作用. 随着扩散连接时间的延长, 区域Ⅰ内应力梯度减小, 界面源机制的作用缓慢增强并处于主导地位. 扩散连接时间大于 197 s 时, 扩散连接界面接合长度大于晶界有效扩散的特征长度, 应力从区域Ⅰ流向区域Ⅱ, 扩散连接界面存在应力区域Ⅱ, 蠕变机制起作用; 扩散连接时间超过 400 s 时, 随着扩散连接时间的延长, 界面应力区域Ⅰ长度不变且应力梯度不大使得界面源机制的作用很小, 而应力区域Ⅱ长度增大且应力增大, 蠕变机制的作用增强并超过界面源机制的作用而处于主导地位; (ii) 随着扩散连接时间的延长, 表面扩散涉及的长度增大, 连接界面接合长度增大. 扩散连接时间超过 1700 s 时, 扩散连接界面空洞趋于圆形使得表面源机制作用的驱动力为零, 表面源机制停止作用.

2) 扩散连接温度

扩散连接压力 10 MPa 和连接时间 600 s 时, 扩散连接温度对 Ti-6Al-4V 合金扩散连接过程中连接机制作用的影响如图 14 所示. 由图 14 可以看出, 随着扩散连接温度的升高, 表面源机制和蠕变机制作用下扩散连接界面接合率均增大, 界面源机制作用下扩散连接界面接合率减小; 扩散连接温度较低时, Ti-6Al-4V 合金扩散连接过程由界面源机制主导; 扩散连接温度较高时, Ti-6Al-4V 合金扩散连接过程由蠕变机制主导. 这是由于: (i) 如图 15(a)所示, 表面扩散涉及的长度随着扩散连接温度的升高而增大, 扩散连接界面接合率增大; (ii) 随着扩散连接温度的升高, 空洞颈部沉积的原子增多, 应力区域Ⅰ内应力得到松弛, 应力从区域Ⅰ流向区域Ⅱ, 使得区域Ⅰ应

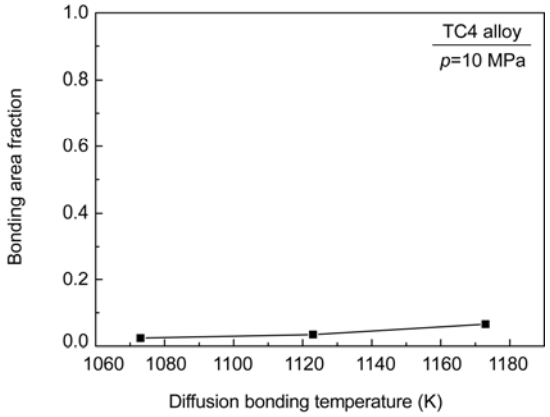

图 11　扩散连接温度对初始塑性变形机制作用的影响

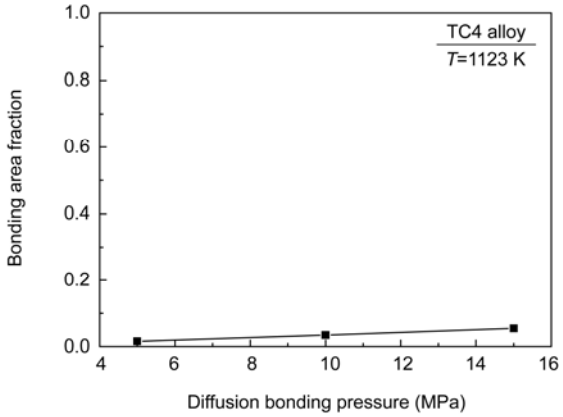

图 12　扩散连接压力对初始塑性变形机制作用的影响

表 4　Ti-6Al-4V 合金扩散连接机制的作用时间及范围

Bonding mechanism	Surface source mechanism	Interface source mechanism	Creep mechanism
Start time (s)	0	0	197
Stop time (s)	1700	400	1800
Action distance (μm)	d_s	When $t \leqslant 197$ s, $l=e$; When $t>197$ s, $l=d_B$	$e-d_B$

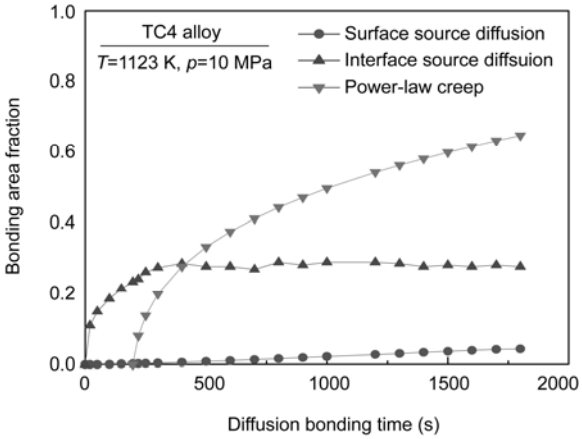

图 13　扩散连接时间对连接机制作用的影响

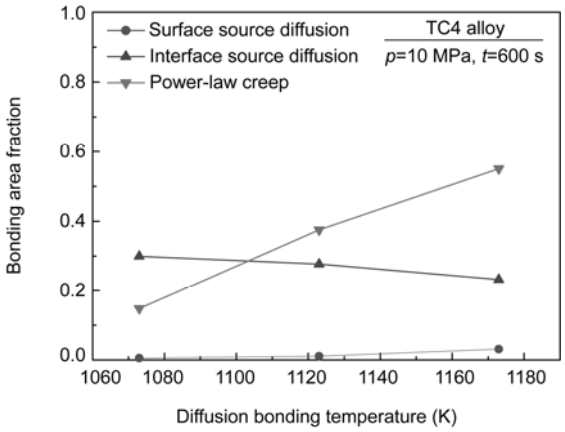

图 14　扩散连接温度对连接机制作用的影响

力梯度减小、区域Ⅱ应力增大, 界面源机制作用范围即晶界有效扩散的特征长度减小, 如图 15(b)所示. 因此, 界面源机制的作用减弱、蠕变机制的作用增强. 扩散连接温度达到 1103 K 时, 蠕变机制的作用超过界面源机制的作用而起主要作用.

3) 扩散连接压力

扩散连接温度 1123 K 和连接时间 300 s 时, 扩散连接压力对 Ti-6Al-4V 合金扩散连接过程中连接机制作用的影响如图 16 所示. 由图 16 可知, 随着扩散连接压力的增大, 表面源机制的作用增强, 界面源机制的作用先增强后减弱, 蠕变机制的作用一直增强; 扩散连接压力较低时, Ti-6Al-4V 合金扩散连接过程由界面源机制主导; 扩散连接压力较高时, Ti-6Al-4V 合金扩散连接过程由蠕变机制主导. 这是由于: (i) 扩散连接压力为 5 MPa 时, 晶界有效扩散的特征长度为 1.43 μm, 大于扩散连接界面接合长度, 扩散连

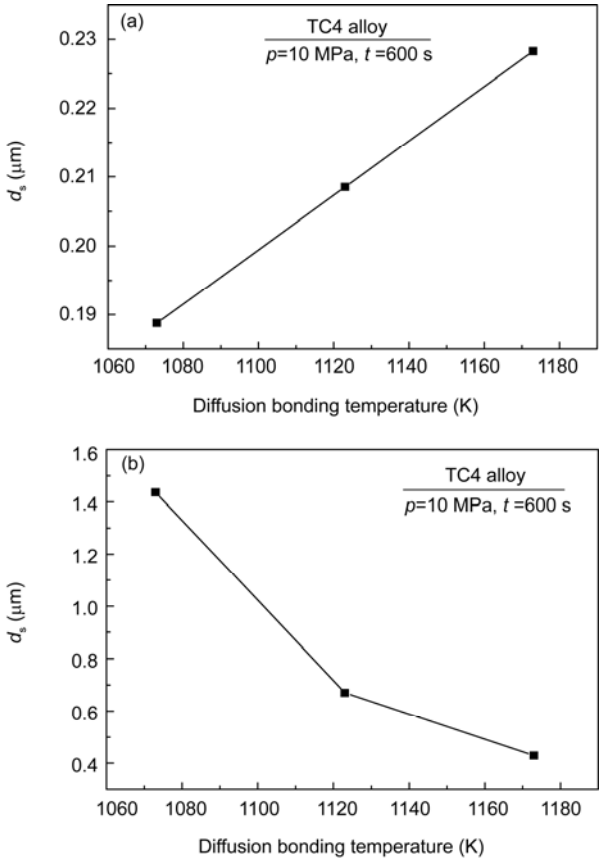

图 15　扩散连接温度对扩散作用范围的影响

(a) 表面扩散涉及的长度 d_s; (b) 晶界有效扩散的特征长度 d_B

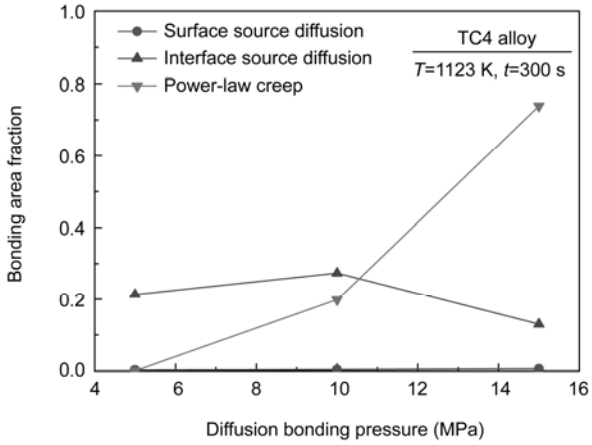

图 16　扩散连接压力对连接机制作用的影响

接界面只存在应力区域Ⅰ, 蠕变机制不起作用, 界面源机制起作用. 扩散连接压力增大时, 晶界有效扩散的特征长度减小(如图 17 所示), 扩散连接界面存在

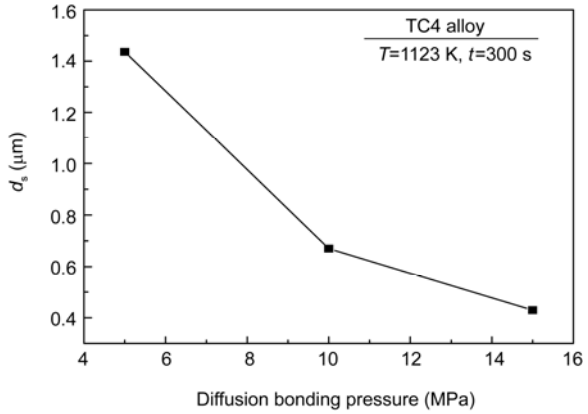

图 17　扩散连接压力对晶界扩散特征长度 d_B 的影响

应力区域Ⅱ, 蠕变机制起作用, 且界面应力区域Ⅰ长度减小、应力梯度增大, 应力区域Ⅱ长度增大、应力增大, 使得界面源机制与蠕变机制的作用均增强, 其中界面源机制的作用较强而处于主导地位. 扩散连接压力超过 10 MPa 时, 由于扩散连接界面应力梯度与连接压力和连接界面接合长度有关, 扩散连接界面接合长度的增大对应力梯度的减小作用超过连接压力的增加对应力梯度的增大作用, 使得区域Ⅰ内应力梯度减小, 导致界面源机制的作用减弱, 蠕变机制的作用增强并超过界面源机制的作用而处于主导地位. (ii) 由于表面扩散涉及的长度与扩散连接压力无关, 扩散连接压力对表面源机制的作用影响不大. 随着扩散连接压力的增大, 表面源机制的作用较小.

3　结论

1) 提出了金属扩散连接过程中各种机制作用的动力学条件, 导出了金属扩散连接时空洞闭合的数学模型. Ti-6Al-4V 合金扩散连接实验结果表明, 本文模型的预测值与实验值之间的最大误差为 12.86%, 平均误差为 5.79%.

2) Ti-6Al-4V 合金扩散连接时, 扩散连接温度或压力较低、时间较短时, 扩散连接过程以界面源机制为主. 否则, 以蠕变机制为主. 同时, 蠕变机制是在扩散连接进行到一定阶段后起作用, 并持续到扩散连接过程结束.

3) Ti-6Al-4V 合金扩散连接时, 扩散连接时间增加, 表面源机制和界面源机制的作用缓慢增强后停止, 蠕变机制的作用一直增强; 扩散连接温度越高或压力越大, 初始塑性变形、蠕变机制和表面源机制的作用均增强, 界面源机制的作用减弱.

参考文献

1　Elrefaey A, Tillmann W. Solid state diffusion bonding of titanium to steel using a copper base alloy as interlayer. J Mater Process Tech, 2009, 209(5): 2746–2752
2　Mahendran G, Balasubramanian V, Senthilvelan T. Developing diffusion bonding windows for joining AZ31B magnesium–AA2024 aluminium alloys. Mater Des, 2009, 30(4): 1240–1244
3　Lagos M, Retamal C. An alternate theoretical approach to solid-state bonding. Scripta Mater, 2011, 64(5): 402–405
4　Hamilton C H. Titanium Science and Technology. New York: Plenum Press, 1973. 625–648
5　Garmong G, Paton N E, Argon A S. Attainment of full interfacial contact during diffusion bonding. Metall Mater Trans A, 1975, 6(7): 1268–1279
6　Derby B, Wallach E R. Theoretical model for diffusion bonding. Metal Sci, 1982, 16(1): 49–56
7　Derby B, Wallach E R. Diffusion bolding: Development of theoretical model. Metal Sci, 1984, 18(1): 427–431
8　Hill A, Wallach E R. Modeling solid-state diffusion bonding. Acta Metall, 1989, 37(19): 2425–2437
9　Orhan N, Eroglu M. A new model for diffusion bonding and its application to duplex alloys. Mater Sci Eng A, 1999, 271: 458–468
10　Wu G Q, Li Z F, Luo G X, et al. Dynamic simulation of solid-state diffusion bonding. Mater Sci Eng A, 2007, 452-453: 529–535
11　Johnson W, Sowerby R, Venter R D. Plane Strain Slip Line Fields for Metal Deformation Processes. Oxford: Pergamon Press, 1982. 119–121
12　Mullins W W. Solid surface morphologies governed by capillarity. In: Robertson W D, Gjostein N A, eds. Metal Surfaces: Structure, Energetics and Kinetics. ASM, Cleveland Ohio, 1963. 17
13　Kuczynski G C. Self-diffusion in sintering of metallic particles. Trans Am Inst Min Eng, 1949, 185: 169–178
14　Chen I W, Argon A S. Diffusion growth of grain-boundary cavities. Acta Metall, 1981, 29(10): 1759–1768
15　Johnson D L. New method of obtaining volume, grain-boundary, and surface diffusion coefficients from sintering data. J Appl Phys, 1969, 40(1): 192–200
16　Sargent P M, Ashby M F. Deformation maps for titanium and zirconium. Scripta Mater, 1982, 16(12): 1422–1451