

Journal of Welding Science and Technology of Iran jwsti.iut.ac.ir

Volume 10, Number 1, 2024



6

Evaluation of dissimilar bonding of alumina to copper with active filler metal Ag-Cu-Ti-Sn and Ag-Cu-Ti-Sn-%3.5Zr by induction brazing method

M. Taheri¹, Gh. Azimiroeen^{2*}, M. Shamanian¹, A. Bahrami¹

Department of Materials Engineering, Isfahan University of Technology, Isfahan 84156-83111, Iran.
Center of Engineering and Technical Skills Training, Isfahan University of Technology, Isfahan 84156-83111, Iran.

Received 29 February 2024 ; Accepted 15 July 2024

Abstract

The dissimilar joint of alumina to copper with active filler metals Ag-Cu-Ti-Sn and Ag-Cu-Ti-Sn-%3.5Zr were done using the induction brazing process at temperatures of 840 and 860 °C for 15 minutes. The microstructures of joints were evaluated using optical microscope (OM) and scanning electron microscope (SEM). Vickers hardness test and shear tensile strength test were used to evaluate the mechanical properties. The results of the microstructural studies showed that the Al₂O₃/Cu joints using Ag-Cu-Ti-Sn and Ag-Cu-Ti-Sn-%3.5Zr fillers contain a reaction layer at the interface between alumina and the filler metal. At the area of the reaction layer with Ag-Cu-Ti-Sn filler metal, two TiO and Cu₃Ti₃O phases were observed, and also at the reaction layer with Ag-Cu-Ti-Sn-%3.5Zr filler metal, two TiO and ZrO₂ phases were observed. The results of the shear strength test showed that due to the greater thickness of the filler metal and the lower thickness of the reaction layer, the joint with the filler metal Ag-Cu-Ti-Sn-%3.5Zr (14 MPa) has a higher shear strength as compared with the joint with filler metal Ag-Cu-Ti-Sn (9 MPa).

Keywords: Induction Brazing, Active filler metal, Dissimilar joint, Alumina, Microstructure.

Corresponding Author: Gh. Azimiroeen, azimi gh@iut.ac.ir



نشریه علوم و فناوری جوشکاری ایران

jwsti.iut.ac.ir



سال دهم، شماره1، بهار و تابستان 1403

ارزیابی اتصالغیرهمجنس آلومینا به مس با فلزپر کننده فعال Ag-Cu-Ti-Sn و Ag-Cu-Ti-Sn-%3.5Zr به روش لحیم کاری سخت القایی

مهدی طاهری¹، قاسم عظیمی رویین^{2*1}، مرتضی شمعانیان¹، عباس بهرامی¹

1- دانشکده مهندسی مواد، دانشگاه صنعتی اصفهان، اصفهان 83111-84156 ایران.

2- مرکز آموزش مهارت های فنی و مهندسی، دانشگاه صنعتی اصفهان، اصفهان 83111-84156، ایران.

دريافت مقاله: 1402/12/10 ؛ پذيرش مقاله: 1403/04/25

چکیدہ

> كلمات كليدى: لحيمكارى سخت القايى، فلز پركننده فعال، اتصال غيرهمجنس، ألومينا، ريزساختار. * * نويسنده مسئول، پست الكترونيكى:قاسم عظيمي رويين، <u>azimi gh@iut.ac.ir</u>

1- مق*د*مه

آلومینا (Al₂O₃)، مهمترین سرامیک اکسیدی است. اکسید آلومینیوم دارای چند ویژگی مهم نظیر نقطه ذوب بالا، سختی و استحکام بالا، مقاوم در برابر سایش، مقاوم در برابر شوک حرارتی، پایداری شیمیایی عالی، مقاوم در برابر خوردگی خوب و عایق الکتریکی می اشد و به همین جهت پرمصرفترین سرامیک اکسیدی به حساب می آید. برخی از صنایع مانند الکترونیک، هوافضا و خودروسازی از اتصالات کامپوزیتی

سرامیک و فلز استفاده می کنند [4-1]. سرامیکها و فلزات از نظر ماهیت پیوند و خواص شیمیایی و فیزیکی تفاوتهای مشخصی دارند. فلزات دارای پیوند فلزی با الکترونهای آزاد هستند. در مقابل سرامیکها دارای پیوند کووالانسی یا یونی با الکترونهای لایه بیرونی بسیار پایدار هستند و از این رو فلزمذاب سطح سرامیک را تر نمیکند. خواص فیزیکی متمایز بین سرامیکها و فلزات، مانند مدول الاستیک، استحکام و عدم تطابق ضریب انبساط حرارتی منجر به ایجاد تنش پسماند

ضخامت لایههای واکنش و تردی ترکیبات بین فلزی در اتصالات، بر استحکام برشی اتصالات تأثیر می گذارد. سونگ و همكاران [16]، با روش لحيمكارى القايي، سراميك آلومينا و 316L SS را با استفاده از آلیاژ یرکننده فعال Sn-Ti اتصال دادند. مشاهده شد که ریزساختار اتصالات 316L SS/Al₂O₃ به وضوح با طولانی شدن زمان نگهداری متفاوت است. با طولانی شدن زمان نگهداری، Ti₆Sn₅ توزیع شده در فاز FeSn₂ به تدریج کاهش یافت. لایه واکنش در نزدیکی 316L SS به تدریج ضخیم شد و FeSn₂ به تدریج در ناحیه درز لحیمکاری افزایش یافت. این بررسی نشان میدهد که Ti در ناحیه درز لحیمکاری وجود داشته و به طور کامل پخش شده است، به طوری که Ti فعال با Al₂O₃ واکنش داده و منجر به رشد لایه TiO می شود که باعث می شود پیوند بین Al₂O₃ و درز لحیمکاری محکمتر شود. با افزایش بیشتر زمان نگهداری، Ti₆Sn₅ تقریباً در ناحیه درز لحیمکاری ناپدید شد و لایه واکنشی در نزدیکی 316L SS نسبتاً ضخیمتر بود که نشان میدهد Ti به طور کامل در سمت 316L SS پخش و غنی شده است.

چائو و همکاران [17]، با بررسی سطوح شکست اتصال Al₂O₃/AgCuTi/Fe-Ni-Co دریافتند ترکها به دلیل وجود تنش پسماند بین فاز Ti₃Al و فاز TiO و به دلیل تفاوت در پلاستیک-الاستیک ایجاد می شوند. ترکها با بارگذاری تنشی های سیکلی رشد میکنند و سپس در مرزهای دانه Al₂O₃ گسترش می یابند.

(18] مالو و همکاران [18]، بابررسی سطوح شکست اتصال Al₂O₃/Nb شاهد و با استفاده از فلزپرکننده Ag-Cu-Ti/Cu/Ag-Cu-Ti مشاهده کردند که تمام ترکها بر روی سطح سرامیک Al₂O₃ در مجاورت لایه واکنش ایجاد شدهاند. بنابراین ضعیف ترین ناحیه در اتصالات لحیم کاری شده سمت سرامیک Al₂O₃ است. Al₂O₃/Cu ایر اتصالات ایر میده سمت سرامیک Al₂O₃ است. مرجندران و همکاران [19]، شکست کاری در اتصال Al₂O₃/Cu است. با پرکننده Ag-18Cu-6Sn-3Zr مورد بررسی قرار دادند. ترکهایی در فصل مشترک لایه واکنش فلزپرکننده بر روی لایه IrO₂ ایجاد شد، که نشان دهنده یک فصل مشترک ضعیف است. علاوه براین، ترکهایی نیز در سطح Al₂O₃ در مجاورت

در طول سرد شدن می شود که بر استحکام اتصال تأثیر می گذارد [8-5]. فرايندهاى مختلفى براى ايجاد اتصال ألومينا به فلزات، مانند لحیم کاری، اتصال نفوذی، جوشکاری حالت جامد و پيوند جزيي فاز مايع گذرا (PTLP) توسعه يافته است. لحیمکاری یک اتصال اقتصادی با استحکام و چقرمگی مناسب تشکیل میدهد اما به دلیل تفاوت در ضریب انبساط حرارتی مواد، تنشهای پسماند و در کنار آن ترکیبات ترد بین فلزی در اتصال ایجاد میشوند. روش لحیمکاری فلز فعال، یک روش اتصال تک مرحلهای است که در سالهای اخیر به دلیل ترشوندگی عالی به سرامیک و استحکام بالای اتصالات توجهات زیادی را برانگیخته است. فلزی کردن سطح آلومینا و افزودن عناصر فعال (مانند Cr ، Zr ، Ti) به آلیاژ لحیم کاری، که به ترتیب لحیمکاری غیرمستقیم و لحیمکاری مستقیم نامیده میشوند، دو روش به منظور بهبود قدرت ترشوندگی میباشند. در لحيمكاري مستقيم، عناصر فعال اضافه شده با ألومينا واكنش میدهند و یک لایه واکنش با ویژگیهای فلزی در سطح مشترک ایجاد می شود که منجر به تر شوندگی خوب آلیاژ لحيم كارى روى سطح آلومينا مىشود. در مورد لحيم كارى غیرمستقیم، سطح آلومینا با استفاده از یک یا چند لایه فلزی با روشهای مختلف مانند PVD و CVD فلزی می شود [9-13]. جين و همكاران [14]، اتصال آلومينا به مس با استفاده از پركننده Ag-26.7Cu-4.5Ti را لحيمكارى كردند و افزايش استحکام اتصال در نتیجه تشکیل لایه واکنش Cu₃Ti₃O را گزارش دادند. وانگ و همکاران [15]، آلیاژ TiAl و سرامیک ZrB₂-SiC توسط پرکنندههای آمورف CuTiZrNi با فرایند لحيم كارى اتصال دادند. استحكام برشى نسبتاً كم 45 مكاپاسكال در 1153 كلوين در مدت زمان 1200 ثانيه بدست آمد. عامل استحکام کم، عمدتاً ناشی از نفوذ اتمی ناکافی و واکنش بین موادپایه و فلزپرکننده است. در 1183 کلوین، استحکام به حداکثر مقدار 187 مگاپاسکال رسید. در 1213 کلوین، استحکام برشی 177 مگاپاسکال گزارش که کمی کمتر از حداکثر مقدار بود. استحکام برشی اتصال لحیمکاری در 1243 کلوین به 125 مگاپاسکال کاهش یافت. دمای لحیمکاری با تأثیر بر

لايه واكنش مشاهده شد.

ماندال و همکاران [20]، از فلزپرکننده Ag-%28Cu-%3Ti برای اتصال سرامیک Al₂O₃ استفاده کردند. آنها مشاهده کردند فاز TiO نمی تواند مشکل کرنش ناشی از تفاوت در ضریب انبساط حرارتی در حین اتصال را مرتفع کند. فاز Ti₃Cu₃O میتواند به دلیل تفاوت در ضریب انبساط حرارتی کرنش موضعی را بهبود بخشد. دانداپات و همکاران [21]، دریافتند علاوه بر تاثیر دمای لحیم کاری، فشار و زمان نگهداری بر استحکام اتصال، ضخامت فلزات پر کننده نیز نقش مهمی ایفا می کند. با افزایش ضخامت فلزپرکننده، تنش حرارتی بیشتری ایجاد میشود و در نتیجه ترکهایی در سطح مشترک بین منطقه لایه واکنشی و منطقه لحیم کاری ایجاد میشود. از طرف دیگر، اتصال در دمای بالاتر مقاومت بیشتری در برابر چرخه حرارتی نشان میدهد. با این حال، فلز پرکننده نازکتر همیشه اتصال را با استحکام بالاتر آماده نمی کند. قابلیت اطمینان اتصالات Al₂O₃/Cu بستگی به تنشهای پسماند ناشی از عدم تطابق ضریب انبساط حرارتی و عدم تطابق مدول الاستیک ایجاد شده در طول خنکسازی دارد. اتصال غیرهمجنس سرامیک آلومینا به فلز مس، به دلیل اهمیت بالایی که در صنایع نوین دارد تاکنون توسط پژوهشگران متعددی مورد بررسی قرار گرفته است. به علت نقطه ذوب بالای سرامیکها و همچنین در صورت ذوب شدن به علت عدم توانایی در کنترل مذاب آنها، جوشکاری ذوبی سرامیکها تقريبا امكانپذير نمىباشد. از طرفى بعلت عدم تغيير فرم، جوشكاري فشاري آنها نيز تقريبا غير ممكن است. لذا با توجه به موارد فوق یکی از روشهای کاربردی برای اتصال سرامیک به سرامیک یا سرامیک به فلز، لحیمکاری میباشد. اما قابل ذکر است که یکی از مشکلات اساسی در استفاده از لحیمکاری برای اتصال سرامیکها، ترشوندگی پایین آنها میباشد. جهت حل مشکل عدمترشوندگی سطحسرامیک، در ترکیبات فلزات پرکننده از عناصر فعال تیتانیوم و زیرکونیوم استفاده شده است تا با اکسیژن موجود در سرامیک آلومینا واکنش داده و منجر به تشکیل لایه واکنشی شود. این پژوهش به منظور بررسی اثر هم افزایی عناصر نقره، مس، قلع، تیتانیوم و زیرکونیوم و همچنین

اثر افزودن عنصر زیرکونیوم به فلزات پرکننده در اتصال آلومینا به فلز مس تحت فرایند لحیمکاری سخت القایی طراحی شده است. هدف از انجام پژوهش طراحی و ساخت فیدتروهای لامپ پرتو ایکس از طریق اتصال سرامیک آلومینا به فلز مس میباشد. در این پژوهش از فلزات پرکننده Ag-Cu-Ti-Sn و میباشد. در این پژوهش از فلزات پرکننده Ag-Cu-Ti-Sn و آلومینا و مس استفاده شد. در انتها نیز به بررسی و تحلیل ریزساختار و خواص مکانیکی اتصالات ناحیه لحیمکاری شده پرداخته شده است.

2- مواد و روش پژوهش

سرامیک آلومینا و مس بترتیب با استفاده از تیغه الماسه و ماشینکاری تخلیهی الکتریکی سیمی به ابعاد 5×5×9 میلی مترمربع برش داده شدند. برای انجام فرایند لحیمکاری سخت به یک فلزپرکننده یا لایه میانی بین سرامیک آلومینا و مس نیاز است. در این پژوهش از دو لایه میانی با ترکیب شیمیایی متفاوت (Ag-Cu-Ti-Sn و 3.5Zr%-Ag-Cu-Ti-Sn) استفاده شد. برای تولید فلز پرکننده از سیستم ذوب مجدد قوس خلأ (VAR) استفاده شد. پس از انجام فرایند VAR، آلیاژهای ساخته شده، نورد شدند به طوری که پس از عملیات نورد ضخامت فلزات پرکننده میکرون رسیدند.

سطح فلزات پایه با استفاده از سنباده از شماره 80 تا 1200 آمادهسازی شدند. همچنین به منظور از بین بردن آلودگی سطحی، نمونهها و لایههای واسط در استون تحت موج آلتراسونیک به مدت 30 دقیقه قرار داده شد. پس از آمادهسازی سطوح اتصال، لایه واسط بین فلزات پایه قرارگرفته و کل مجموعه اتصال در یک نگهدارنده که در شکل (1) نشان داده شده، ثابت شد. در پایان، برای انجام فرایند اتصال، از کوره شده، ثابت شد. در پایان، برای انجام فرایند اتصال، از کوره القایی شرکت بهیار صنعت استفاده شد. شکل (2) طرحوارهای از فرایند پیونددهی را نشان می دهد. پیونددهی در کوره القایی تحت اتمسفر خلأ با فلزات پرکننده فعال 840 و 840 درجه



شكل 2- طرحواره مجموعه اتصال Alumina/filler/Cu با روش لحيمكارى سخت القايي.

جدول 1- نتايج آناليز EDS و درصد عناصر موجود در فلزات پركننده.

فلز پرکننده لحیم کاری	ترکیب شیمیایی بر حسب درصد وزنی				
	Ag + Cu + Ti	Sn	Zr		
Ag-Cu-Ti-Sn	9¥/A	۵/۲	-		
Ag-Cu-Ti-Sn-%3.5Zr	۹۰/۱	8/4	۳/۵		

پس از برقراری اتصال، نمونههایی به ابعاد 10×10×10 میلیمتر مربع حاصل شد. با توجه به کوچک بودن ابعاد نمونهها بهمنظور سهولت در فرایند سنبادهزنی نمونهها تحت بستر مانت سرد قرار گفتند. سطحی که تحت فرایند سنبادهزنی قرار گفت سطح عرضی نمونهها است. سنبادهزنی نمونهها با استفاده از کاغذهای سنباده از جنس SiC و به ترتیب با شمارههای 80، 180، 400، 800، 2001 و 2400 انجام شد. به منظور انجام متالوگرافی نوری، سطح نمونههای آمادهسازی شده در مرحله قبل، تحت

اچ، 5 گرم FeCl₃ با 15 میلی لیتر HCl و 75 میلی لیتر اتانول (C₂H₅OH) تركيب شدند. محلول به مدت 15 دقيقه بر روى گرمکن با همزن مغناطیسی قرار گرفت. نمونههای لحیمکاری شده به مدت 30 ثانیه تحت حکاکی شیمیایی قرار گرفتند و پس از آن سطح نمونه با استفاده از الکل شستشو داده شد. ریزساختارهای اتصالات با میکروسکوپ نوری (OM) بررسی شدند و آنالیز شیمیایی اتصالات مختلف با استفاده از میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) مجهز به سیستم طیفسنجی پراکندگی انرژی (EDS) انجام شد. به منظور ارزیابی خواص مکانیکی اتصالات، آزمون،ای ریزسختی و کشش برشی انجام گرفت. آزمون ریزسختی ویکرز نمونههای اتصال در امتداد جهت عمود برخط اتصال با بار 300 گرم و مدتزمان 10 ثانيه اندازه گيري شد. همچنين آزمون استحكام کشش برشی با استفاده از یک نگهدارنده مخصوص صورت گرفت. نمونهها داخل محفظه تعبيهشده درون نگهدارنده قرارگرفته و دو قسمت نگهدارنده جهت کشش به فکهای دستگاه کشش متصل شدند.

3- نتایج و بحث 1-3- بررسی فلزات پرکننده فرایند لحیمکاری

جهت تعیین درصد عناصر تشکیل دهنده فلزات پرکننده لحیمکاری از آنالیز EDS استفاده شد. این آنالیز نشان می دهد که هر دو فلز پرکننده Ag-Cu-Ti-Sn و Ag-Cu-Ti-Sn-%3.5Zr پایه نقره و مس می باشند و عناصر تیتانیوم، قلع و زیرکونیوم با مقادیر خیلی کم به صورت عناصر آلیاژی، فلزات پرکننده را تشکیل می دهند. این بررسی افزودن عنصر Zr به فلزکننده تشکیل می دهند. این بررسی افزودن عنصر Zr به فلزکننده هر دو فلز پرکننده در جدول (1) نمایش داده شده است. جهت بررسی کیفی فلزات پرکننده از آزمون پراش پرتو ایکس استفاده شد. شکل (3) الگو پراش پرتو ایکس هر دو فلز پرکننده مید. می (2) الگو پراش پرتو ایکس هر دو

فنزپر کننده Ag-Cu-11-Sil- او Ag-Cu-11-Sil- را سال می دهد. در این آزمون مشخص شد که هر دو فلزپر کننده پایه نقره و مس هستند و هر دو الگو پراش بسیار مشابه یکدیگرند.

همچنین از این آزمون میتوان برداشت کرد که هیچگونه نشانهای از حضور عنصر اکسیژن و ترکیبات اکسیدی در دو فلز پرکننده وجود ندارد. اتمسفر لحیمکاری تأثیر قابل توجهی بر ترشوندگی فلز پرکننده بر روی سطح سرامیکی دارد. پتانسیل بالای عناصر فعال (TوTZ) در واکنش با اکسیژن در فلزات پرکننده ممکن است منجر به از دست دادن قدرت ترشوندگی و کاهش استحکام اتصال گردد [19].



2-3- ارزیابی ریزساختاری اتصالات لحیم کاری

شکل (4)، تصویر میکروسکوپی نوری اتصال لحیمکاری آلومینا به مس با فلزپرکننده Ag-Cu-Ti-Sn را نشان میدهد. این تصویر در ناحیه اتصال نشان میدهد که ریزساختار اتصال از نوع هیپویوتکتیک است. براساس دیاگرام دوتایی Ag-Cu نوع هیپویوتکتیک است. براساس دیاگرام دوتایی مg-Cu مذاب با کاهش دما به دو فاز مذاب (L) و فاز اولیه α تبدیل میشود. با سرد شدن و کاهش دما و با عبور از دما و خط میشود. با سرد شدن و کاهش دما و با عبور از دما و خط میشود. فاز یوتکتیک و فاز اولیه α غنی از نقره در تصویر (4) مشهود است. فاز یوتکتیک بیشتر شبیه یوتکتیک سوزنی و به میشود است. فاز یوتکتیک بیشتر شبیه یوتکتیک سوزنی و به مسهود است. فاز یوتکتیک بیشتر شبیه یوتکتیک سوزنی و به میشود است. فاز یوتکتیک بیشتر شبیه یوتکتیک موزنی و به میشود دان و فازپرکننده لحیمکاری به عنوان لایه واکنشی مرامیک آلومینا و فلزپرکننده لحیمکاری به عنوان لایه واکنشی موجود در آلومینا واکنش داده و پیوند برقرار میکنند و در واقع مکانیسم برقراری اتصال بین سرامیک و فلزپرکننده در لحیمکاری ایجاد پیوند بین آنها میباشد. شکل (5)، کسر

حجمی دو فاز یوتکتیک و فاز اولیه α اتصال با فلزپرکننده Ag-Cu-Ti-Sn با استفاده از نرمافزار Mip را نشان میدهد. کسر حجمی دو فاز یوتکتیک و فاز اولیه α بترتیب 29 و 71 درصد اندازه گیری شد.





شکل 5- کسر حجمی فاز یوتکتیک و فاز اولیه α اتصال با فلز پرکننده Ag-Cu-Ti-Sn با استفاده از نرمافزار Mip.

شکل (6)، تصویر میکروسکوپی نوری اتصال لحیمکاری آلومینا به مس با فلز پرکننده Ag-Cu-Ti-Sn-%3.5Zr را نشان میدهد. در این تصویر در ناحیه اتصال لحیم نشان میدهد که ساختار اتصال از نوع هیپویوتکتیک است. فاز یوتکتیک و فاز اولیه α در شکل (6) مشهود است که فاز α غنی از نقره میباشد. عناصر Ti و Zr با اکسیژن موجود با آلومینا واکنش داده و لایه واکنشی را ایجاد میکنند. شکل (7)، کسر حجمی دو فاز یوتکتیک و فاز اولیه α اتصال با فلزپرکننده 3.5Zr%-Ag-Cu-Ti-Sn با استفاده از نرم افزار Mip را نشان میدهد. کسر حجمی دو فاز یوتکتیک و فاز اولیه α بترتیب 22 و 78 درصد اندازه گیری شد. در این اتصال کسر حجمی فاز یوتکتیک نسبت به اتصال با

فلز یرکننده Ag-Cu-Ti-Sn کمتر شده است.



شکل 6- تصویر میکروسکوپی نوری اتصال لحیمکاری آلومینا به مس با فلزیرکننده Ag-Cu-Ti-Sn-%3.5Zr.



Ag- مسر حجمی فاز یوتکتیک و فاز اولیه α اتصال با فلز پرکننده Ag-شکل 7- کسر حجمی فاز یوتکتیک و فاز اولیه α اتصال با فلز پرکننده. Mip با استفاده از نرم افزار Mip.

شکل (8)، تصویر میکروسکوپی الکترونی روبشی اتصال Ag-Cu-Ti-Sn با فلزپرکننده Ag-Cu-Ti-Sn را نشان میدهد. واکنشهای شیمیایی بین Al₂O₃ و فلزپرکننده منجر به تشکیل یک لایه واکنشی با ضخامت 14 میکرومتر در سطح مشترک یک لایه واکنشی با ضخامت 14 میکرومتر در سطح مشترک مناع مشترک میکرومتر در مطح مشترک مناع اتمی مناع است. ضریب اکتیویته بالا، جرم و شعاع اتمی کم Ti، نفوذ سریعتر به سمت سطح Al₂O₃ را در مقایسه با سایر عناصر فلزپرکننده ممکن می سازد. جدایش Ti منجر به تشکیل فازهای Cu₃Ti₃O و TiO در مجاورت Al₂O₃ می شود. واکنشهای تجزیه آلومینا و تشکیل TiO به شرح زیر است [22₆22]:

- $Al_2O_3 \rightarrow 2Al^{-3} + 30^{-2}$ (1)
- $Ti + 0 \rightarrow TiO \tag{2}$
- $Al_2O_3 + 3Ti \rightarrow 3TiO + 2Al \tag{3}$

جدول (2)، نتایج آنالیز EDS در 4 نقطه از اتصال که در شکل (8) مشخص شده است را نشان میدهد. نقاط 1، 2، 3 و 4 بترتیب فاز غنی از مس، فاز غنی از نقره، فاز TiO و فاز Cu₃Ti₃O را مشخص میکنند. تجمع عناصر مس جلوی فصل مشترک سرامیک و فلزپرکننده، منجر به تشکیل فاز Cu₃Ti₃O میشود. همچنین یونهای AI به سمت فلزپرکننده نفوذ میکنند و منجر به ایجاد ترکیبات AI₃Ti₃O در لایه واکنشی می شود.



شکل 8- تصویر میکروسکوپی الکترونی روبشی از اتصال لحیمکاری Al₂O3/Cu با فلز پرکننده Al₂O3/Cu.

جدول 2- نتايج أناليز EDS نقاط در شكل8.

نقطه	ترکیب شیمیایی برحسب درصد اتمی						فاز احتمال	
	Ag	Cu	Ti	Sn	Zr	Al	0	
١	۵/۸	19/9	•/٩	•/9	-	1/9	•/٩	فاز غنی از مس
۲	V•/A	24/8	V/1	۲/۸	-	•/۴	•/V	فاز غنی از نقرہ
٣	1/9	¥/V	۳۲/۱	•/9	-	۱۷/۳	44/4	TiO
۴	١/٨	19/A	**/*	•/V	-	Y1/1	**/*	(Al,Cu) ₃ Ti ₃ O

شکلهای (9) و (10)، بترتیب آنالیز شیمیایی نقشه عنصری و خطی از تصویر ریزساختار اتصال Al₂O₃/Cu با فلزپرکننده Ag-Cu-Ti-Sn را نشان میدهد. با توجه به شکل (9)، ملاحظه میشود لایه واکنشی غنی از عناصر Ti، Cu، Ih و فقیر از عناصر Ag و RS میباشد. همچنین ناحیه فلزپرکننده غنی از میاصر Ag و تا حدودی Sn است. تجمع عنصر آلیاژی Ti در جلوی فصل مشترک قابل مشاهده است. ترکیب TiO از طریق نفوذ عناصر Ti به داخل درز و حفرات موجود در سرامیک و ایجاد پیوند با اکسیژن تجزیه شده در آلومینا ایجاد میشود. از شکل (10) مشاهده میشود، عناصر Ti و Cu بیشتر در ناحیه

لایه واکنشی توزیع شدهاند و همچنین ناحیه فلزپرکننده غنی از Ag و Cu می باشد.



شکل 9- آنالیز نقشهای عنصری از تصویر ریزساختار اتصال Al₂O₃/Cu

با فلز پرکننده Ag-Cu-Ti-Sn.



شکل 10- آنالیز خطی عنصری از تصویر ریزساختار اتصال Al₂O₃/Cu با فلزپرکننده Ag-Cu-Ti-Sn.

شکل (11)، تصویر میکروسکوپی الکترونی روبشی از اتصال Al₂O₃/Cu با فلز پرکننده Ag-Cu-Ti-Sn را نشان میدهد. منطقه متاثر از نفوذ (DAZ) در نزدیکی فلز پایه مس قابل مشاهده است اما ضخامت پایینی دارد. از سوی دیگر بدلیل پایین بودن است اما ضخامت پایینی دارد. از سوی دیگر بدلیل پایین اودن انتقال حرارت سرامیک آلومینا منطقه متاثر از حرارت (HAZ) انتقال حرارت سرامیک آلومینا منطقه متاثر از حرارت (HAZ) باشند. ضخامت ناحیه فلزپرکننده لحیم کاری 188 میکرومتر اندازه گیری شد.



شکل 11- تصویر میکروسکوپی الکترونی روبشی از اتصال Al₂O₃/Cu با فلز پرکننده Ag-Cu-Ti-Sn.

شکل (12)، تصویر میکروسکوپی الکترونی روبشی از اتصال Al₂O₃/Cu با فلزپرکننده Ag-Cu-Ti-Sn-%3.5Zr را نشان میدهد. واکنش شیمیایی بین Al₂O₃ و فلز پرکننده -Ag-Cu-Ti میدهد. واکنش شیمیایی بین یک لایه واکنشی با ضخامت Sn-%3.5Zr منجر به تشکیل یک لایه واکنشی با ضخامت میانگین 9 میکرومتر در سطح مشترک Al₂O₃/Cu شده است. واکنشهای تشکیل 2rO₂ به شرح زیر است [22]: (4)

 $\mathbf{Zr} + \mathbf{2O} \to \mathbf{ZrO}_2 \tag{5}$

 $2\mathrm{Al}_2\mathrm{O}_3 + 3\mathrm{Zr} \rightarrow 3\mathrm{Zr}\mathrm{O}_2 + 4\mathrm{Al} \tag{6}$

فاز 2rO₂ با نفوذ یونهای اکسیژن به سمت فلزپرکننده و ترکیب با Zr تشکیل می شود و مس را در جلو فصل مشترک لایه واکنش باقی می گذارد تا رسوبات غنی از مس را تشکیل دهند. اگرچه Ti و Zr هر دو عنصر فعال هستند، جرم اتمی کم و شعاع اتمی کوچک Ti نسبت به Zr منجر به نفوذ سریع Ti از طریق آلیاژ Ag-Cu می شود. پس از ذوب شدن فلزپرکننده، مذاب غنی از Cu-Zr در امتداد مرزهای دانه Al₂O₃ نفوذ می کند و پتانسیل اکسیداسیون بالای Zr می تواند منجر به واکنش اکسایش و کاهش در Al₂O₃ شود [24].

جدول (3)، نتایج آنالیز EDS، 3 نقطه از اتصال که در شکل(12) مشخص شده است را نشان میدهد. نقاط 1، 2 و 3 بترتیب فاز غنی از مس، فاز غنی از نقره و ZrOz و TiO را مشخص میکنند. شکلهای (13) و (14)، بترتیب آنالیز

شیمیایی نقشه عنصری و خطی از تصویر ریزساختار اتصال Al₂O₃/Cu با فلزپرکننده Ag-Cu-Ti-Sn-%3.5Zr را نشان میدهد. با توجه به شکل (13)، ملاحظه میشود منطقه لحیمکاری غنی از عناصر Ag، Ul و Sn و فقیر از عناصر TT و Zr است. همچنین مشاهده میشود منطقه لایه واکنشی غنی از Ti است. همچنین مشاهده میشود منطقه لایه واکنشی غنی از Ul و Zr میباشد. در شکل (14)، آنالیز خطی عنصری Ti دست آمده نشان میدهد بدلیل بالا بودن ضریب نفوذ Ti نسبت به Zr یه اکسیدی TiO نسبت به ZrO سریعتر و نزدیکتر به سطح سرامیک تشکیل میشود.



شكل 12- تصوير ميكروسكوپى الكترونى روبشى از اتصال Al₂O₃/Cu با فلزير كننده Ag-Cu-Ti-Sn-%3.5Zr.

جدول 3- نتايج آناليز EDS نقاط در شكل (12)

نقطه	تركيب شيميايى نقاط برحسب درصد اتمى							فاز احتمالي
	Ag	Cu	Ti	Sn	Zr	Al	0	
١	11/۴	V۶/۶	۲/۸	1/V	۲/۵	۲/۱	۲/۹	فاز غنی از مس
۲	VT/1	14/9	•/٩	۴/۵	٣	1/8	۲/۳	فاز غنی از نقرہ
٣	۲/۶	۱۳/۹	**/*	۲/۶	11/1	•/V	44/4	TiO-ZrO ₂

شكل (15) تصویر میكروسكوپی الكترونی روبشی از اتصال Al₂O₃/Cu با فلزپركننده Ag-Cu-Ti-Sn-%3.5Zr را نشان میدهد. فاز یوتكتیك با مورفولوژی حروف چینی قابل مشاهده است. منطقه متاثر از نفوذ (DAZ) در نزدیكی فلزپایه مس مشخص شده است و ضخامت بالاتری نسبت به اتصال با فلزپركننده Ag-Cu-Ti-Sn دارد. ضخامت منطقه لحیمكاری 473 میكرومتر اندازه گیری شد.

3-3- ارزیابی خواص مکانیکی و شکست نگاری اتصالات شکل (16) نتایج آزمون استحکام برشی اتصالات را نشان میدهد. آزمون استحکام برشی نشان داد اتصال با فلزپرکننده

Ag-Cu-Ti-Sn-%3.5Zr (مگاپاسکال) استحکام برشی بالاتری نسبت به اتصال با فلزپرکننده محیم کاری بالاتر (۹مگاپاسکال) دارد. ضخامت فلزپرکننده لحیم کاری بالاتر (9مگاپاسکال) دارد. ضخامت لایه واکنشی کمتر (9 میکرومتر) در (9 میکرومتر) و ضخامت لایه واکنشی کمتر (9 میکرومتر) در زیرکونیوم نسبت به اتصال با فلزپرکننده حاوی 3/5 درصد وزنی زیرکونیوم نسبت به اتصال با فلزپرکننده داوی 250 درصد وزنی زیرکونیوم میشود اتصال با فلز پرکننده حاوی 3/5 درصد وزنی زیرکونیوم استحکام برشی بالاتری داشته باشد [20و11].

در طول خنک شدن فلزپرکننده لحیمکاری، تبدیل چندشکلی t-ZrO₂ (دارای ساختار بلوری تتراگونال) به m-ZrO₂ (دارای ساختار بلوری مونوکلینیک) با افزایش حجم تقریباً 3 تا 5 درصدی اتفاق میافتد. در نتیجهی تغییر حجم، تنش پسماند ایجاد میشود و میتواند منجر به تشکیل ریز ترکها در لایه واکنش 2rO₂ شود. بنابراین، چقرمگی شکست 2rO₂ کاهش یافته و به شدت مستعد ایجاد ترک است. همچنین افزیش ضخامت لایه واکنشی 2rO₂ در اتصالات منجر به کاهش استحکام اتصال میشود [19].

نمودار ریزسختی ویکرز بر حسب فاصله اتصال سرامیک آلومینا ومس بافلزات پرکننده Ag-Cu-Ti-Sn و Ag-Cu-Ti-Sn-% م به ترتیب در شکلهای (17) و (18) نشان داده شده است. بالاترین سختی در هر دو اتصال مربوط به سرامیک آلومینا با 542 ویکرز می باشد که نشان از سختی بالای این ماده است. در منطقه فلز پرکننده لحیمکاری اتصالات با فلزات پرکننده در منطقه فلز پرکننده لحیمکاری اتصالات با فلزات پرکننده مس، فاز غنی از نقره و ناحیه نزدیک لایه واکنش آزمون مس، فاز غنی از نقره و ناحیه نزدیک لایه واکنش آزمون مس، فاز عنی از نقره و ناحیه ذکر شده بترتیب دارای سختی Ag-Cu-Ti-Sn در سه ناحیه ذکر شده بترتیب دارای سختی Ag-Cu-Ti-Sn و 101 ویکرز می باشد.

همچنین این بررسی افزایش سختی بر اثر افزودن Zr را نشان میدهد. آزمون ریزسختی نشان داد، ناحیه لایه واکنشی اتصال با فلزپرکننده Ag-Cu-Ti-Sn-%3.5Zr دارای سختی 284 ویکرز میباشد که نسبت به اتصال با فلزپرکننده Ag-Cu-Ti-Sn



شكل 13- أناليز نقشه عنصرى از تصوير ريزساختار اتصال Al₂O₃/Cu با فلز پركننده Ag-Cu-Ti-Sn-%3.5Zr.

افزایش 70 درصدی پیدا کرده است. این افزایش را می توان به تجمع عناصر آلیاژی Ti و Zr در جلوی فصل مشترک نسبت داد. مکانیسمهای شکست آلیاژهای مهندسی به طورکلی به دو صورت دروندانهای و بیندانهای (مرزدانهای) اتفاق میافتد. به هر حال بدون توجه به مسير شكست، به طور كلى هفت حالت اساسی شکست عبارتند از شکست دیمیلی، شکست صفحهای يا كليواژ، شكست شبهكليواژ، شكست فلوت، شكست ناشى از پارگی و شکست ناشی از خستگی [25]. مکانیسم شکست در اتصالات با فلزات یرکننده Ag-Cu-Ti-Sn (A) و Ag-Cu-Ti-B) Sn-%3.5Zr) با استفاده از میکروسکوپ الکترونی روبشی بررسی شد. تصاویر SEM از سطوح شکست (A) و (B) در شكل(19) ارائه شده است. جدول (4) نتايج آناليز EDS و فازهای احتمالی در شکل (19-الف) را نشان میدهد. طبق نتایج EDS ملاحظه می شود که نقاط 1 و 2 بترتیب نشان دهنده فاز ۵-Al₂O₃ و TiO می باشند. طبق نتایج بدست آمده، می توان نتیجه گرفت که مسیر شکست ابتدا در لایه واکنشی و سپس سمت آلومينا بوده است. با توجه به تشكيل تركيبات ترد و شکننده در ناحیه اتصال که سختی بالایی نیز دارند، شرایط را برای جوانهزنی و رشد ترک فراهم میکنند [17و18]. جدول (4) نتایج آنالیز EDS و فازهای احتمالی در شکل(19-ب) را نشان میدهد. طبقنتایج EDS ملاحظه می شود که نقاط 1 و 2 بترتیب نشاندهنده فاز α-Al₂O₃ و ZrO₂ میباشند. طبق نتایج میتوان نتيجه گرفت که مسير شکست مشابه اتصال با فلز يرکننده

بدون زیرکونیوم میباشد و شکست در سمت سرامیک و لایه واکنش بدلیل پیوند ضعیف رخ داده است [19].



شکل 14- آنالیز خطی عنصری از تصویر ریزساختار اتصال Al₂O₃/Cu با فلزپرکننده Ag-Cu-Ti-Sn-%3.5Zr.



شكل 15- تصوير ميكروسكوپی الكترونی روبشی از اتصال Al₂O₃/Cu با فلزیر کننده Ag-Cu-Ti-Sn-%3.5Zr.

ستحكام برشى (مكاپاسكال: 14 9 شكل 16- نتايج أزمون استحكام برشي اتصالات لحيمكاري. ميكروسختى مس آلومينا فلز پرکننده لحیم کاری فاصله از فلز بابه مس (um) شکل 17- نمودار ریزسختی ویکرز اتصال ألومینا به مس با فلز پرکننده Ag-Cu-Ti-Sn بر حسب فاصله. روسختى فلز پرکننده لحیم کاری مس 500 فاصله از فلز پایه مس (um) شكل 18- نمودار ريزسختي ويكرز اتصال ألومينا به مس با فلز يركننده Ag-Cu-Ti-Sn-%3.5Zr بر حسب فاصله.

شکل ۱۹- تصاویر SEM از سطوح شکست اتصالات لحیمکاری با فلزات پرکننده Ag-Cu-Ti-Sn (الف) و Ag-Cu-Ti-Sn (ب).

4- نتيجەگىرى

در این پژوهش اتصال Al₂O₃/Cu با استفاده از پرکنندههای چند جزیی Ag-Cu-Ti-Sn و Ag-Cu-Ti-Sn بترتیب در دماهای 840 و 860 درجه سانتی گراد و زمان 15 دقیقه با روش لحیم کاری سخت القایی، با موفقیت انجام گرفت. نتایج بدست آمده به شرح زیر است:

- دراتصال Al₂O₃/Cu لحیم کاری شده با استفاده از پرکننده Ag-Cu-Ti-Sn در منطقه لحیمکاری ترکیب یوتکتیک Ag-Cu-Ti-Sn Cu₃Ti₃O و TiO ترکیب یوتکتیک TiO و Ag-Cu-Ti-Sn (Al₂O₃/TiO/Cu₃Ti₃O/eutectic Ag-Cu/Copper) مشاهده شد. (Al₂O₃/TiO/Cu₃Ti₃O/eutectic Ag-Cu/Copper) ترتیب ساختار نواحی اتصال را نشان میدهد. در اتصال Ag-Cu-Ti- میده با استفاده از پرکننده -Al₂O₃/Cu Ag-Cu-Ti- در منطقه لحیمکاری ساختار یوتکتیک Ag-Cu-Ti sor-%3.5Zr و زمینه مس و در منطقه لایه واکنشی دو فاز اکسیدی TiO و To₂ مشاهده شد. ترتیب ساختار اتصال بصورت (Al₂O₃/TiO/ZrO₂/eutectic Ag-Cu/Copper) میباشد.

- آزمون استحکام برشی نشان داد، اتصال با فلزپرکننده Ag-Cu-Ti-Sn-%3.5Zr (41مگاپاسکال) استحکامبرشی بالاتری نسبت به اتصال با فلز پرکننده Ag-Cu-Ti-Sn (9 مگاپاسکال) دارد. ضخامت فلز پرکننده لحیم کاری بالاتر (250 میکرومتر) و ضخامت لایه واکنشی کمتر (9 میکرومتر) در اتصال لحیم کاری امخامت لایه واکنشی کمتر (9 میکرومتر) در اتصال لحیم کاری این فلز پرکننده حاوی 3/5 درصد وزنی زیرکونیوم استحکام برشی فلزپرکننده حاوی 3/5 درصد وزنی زیرکونیوم استحکام برشی بالاتری داشته باشد.

- آزمون ریزسختی نشان داد، ناحیه لایه واکنشی اتصال با فلزپرکننده Ag-Cu-Ti-Sn-%3.5Zr دارای سختی 284 ویکرز میباشد که نسبت به اتصال با فلز پرکننده Ag-Cu-Ti-Sn افزایش 70 درصدی پیدا کرده است. این افزایش را میتوان به تجمع عناصر آلیاژی TI و Zr در جلوی فصل مشترک سرامیک آلومینا و لایه واکنشی نسبت داد. بررسی سطوح شکست اتصالات نشان داد شکست در مسیر لایه واکنشی و در ادامه در سمت سرامیک رخ داده است.

منابع

Joining of Al2O3 ceramic to Cu using refractory metal foil. Ceramics International.48.

https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2021.10.123

15. Wang, G., Y. Yang, P. Wu, D. Shu, D. Zhu and C. Tan. 2019. Effect of brazing temperature on microstructure and mechanical properties of TiAl/ZrB2 joint brazed with CuTiZrNi filler. Journal of Manufacturing Processes.46:170-176.

https://doi.org/10.1016/j.jmapro.2019.09.001

16. Song, Y., T. Zhu, H. Bian, Y. Lei, D. Liu and X. Song. 2023. Induction brazing of Al2O3 ceramic and 316L stainless steel with Sn-Ti filler alloy. Ceramics International.49(17, Part A):27904-27911.

https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2023.06.015

17. Cao, Y., J. Yan, N. Li, Y. Zheng and C. Xin. 2015. Effects of brazing temperature on microstructure and mechanical performance of Al2O3/AgCuTi/Fe-Ni-Co brazed joints. Journal of Alloys and Compounds.650:30-36.

https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2015.07.237

18. Zhao, Y., Y. Wang, Z. Yang and D. Wang. 2019. Relief of residual stress in Al2O3/Nb joints brazed with Ag-Cu-Ti/Cu/Ag-Cu-Ti composite interlayer. Archives of Civil and Mechanical Engineering. 19(1):1-10.

https://doi.org/10.1016/j.acme.2018.08.001

19. Rajendran, S. H., S. J. Hwang and J. P. Jung. 2021. Active Brazing of Alumina and Copper with Multicomponent Ag-Cu-Sn-Zr-Ti Filler. Metals.11(3).

http://dx.doi.org/10.3390/met11030509

20. Mandal, S., V. Rao and A. Ray. 2004. Characterization of the brazed joint interface between Al2O3 and (Ag-Cu-Ti). Journal of Materials Science.39:5587-5590.

http://dx.doi.org/10.1023/B:JMSC.0000039295.03229.25

21. Dandapat, N., S. Ghosh, B. Guha, S. Datta and V. Balla. 2016. Effect of Processing Parameters on Thermal Cycling Behavior of Al2O3-Al2O3 Brazed Joints. Metallurgical and Materials Transactions B.47.

http://dx.doi.org/10.1007/s11663-016-0731-9

22. Lin, K. L., M. Singh and R. Asthana. 2014. Interfacial characterization of alumina-to-alumina joints fabricated using silver-copper-titanium interlayers. Materials Characterization. 90:40-51.

https://doi.org/10.1016/j.matchar.2014.01.009

23. Kassam, T. A., N. Hari Babu, N. Ludford, S. Yan and A. Howkins. 2018. Secondary Phase Interaction at Interfaces of High-Strength Brazed Joints made using Liquid Phase Sintered Alumina Ceramics and Ag-Cu-Ti Braze Alloys. Scientific Reports.8(1):3352.

https://doi.org/10.1038/s41598-018-20674-w

24. Loehman, R. E., and A. P. Tomsia. 1992. Reactions of Ti and Zr with AlN and Al2O3. Acta Metallurgica et Materialia.40:S75-S83.

(https://doi.org/10.1016/0956-7151(92)90266-H)

25. Laurila, T., A. Paul, V. Vuorinen and S. Divinski. 2014. Thermodynamics, Diffusion And The Kirkendall Effect In Solids.

http://dx.doi.org/10.1007/978-3-319-07461-0

1. Stosz, M., S. Narayanasamy, J. Bell, T. Graule, D. Kata and G. Blugan. 2023. Joining of alumina ceramics with Ti and Zr interlayers by spark plasma sintering. Materials Design.227:111724.

https://doi.org/10.1016/j.matdes.2023.111724

2. Suprapedi, S., M. Muljadi and P. Sardjono. 2018. The characterization of ceramic alumina prepared by using additive glass beads. IOP Conference Series: Materials Science and Engineering.299:012043.

http://dx.doi.org/10.1088/1757-899X/299/1/012043

3. Vakilnejad, M. 2021. Oxide engineering ceramics. Arastoo Pub.

4. Zhang, P., R. Fu, Y. Tang, B. Cao, M. Fei and Y. Yang. 2015. Morphology of thick film metallization on aluminum nitride ceramics and composition of interface layer. Ceramics International.41(10, Part A):13381-13388.

https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2015.07.125

5. Rajkovic, V., D. Bozic, and M. T. Jovanovic. 2010. Effects of copper and Al2O3 particles on characteristics of Cu-Al2O3 composites. Materials & Design.31(4): 1962 1970. https://doi.org/10.1016/j.matdes.2009.10.037

6. Yushan, Z., and A. Hu. 2010. From Microjoining to Nanojoining. The Open Surface Science Journal.3. http://dx.doi.org/10.2174/1876531901103010032

7. Kokabi, A. H. 2008. Welding Ceramic-Metal, Sharif uni

Pub. 8. Niu, G. B., D. P. Wang, Z.W. Yang and Y. Wang. 2017. Microstructure and mechanical properties of Al2O3/TiAl joints brazed with B powders reinforced Ag-Cu-Ti based composite fillers. Ceramics International. 43(1, Part A):439-450.

https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2016.09.178 9. Mansouri, E., and H. Khorsand. 2024. Similar jointing of

Inconel 600 super alloy using nano stracture powder filler with high entropy design. JWSTI.9(2):77-92.

http://dx.doi.org/10.47176/JWSTI.2024.07

10. Ardalani, A., and H. Naffakh-Moosavy. 2024. Brazing of 17-4 PH stainless steel to Ti-6Al-4V alloy using BNi-2 filler metal. JWSTI.9(2):103-113.

http://dx.doi.org/10.47176/JWSTI.2024.09

11. Yang, X., X. Xiong, W. Jin, Y. Peng, R. Liu and Z. Peng. 2020. Research Progress of Ceramic Metallization Technology. Research and Application of Materials Science.2. http://dx.doi.org/10.33142/msra.v2i1.1973

12. Wang, N., D. P. Wang, Z. W. Yang and Y. Wang. 2016. Interfacial microstructure and mechanical properties of zirconia ceramic and niobium joints vacuum brazed with two Ag-based active filler metals. Ceramics International.42(11):12815-12824.

https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2016.05.045

13. Lei, M., J. C. Feng, X. Y. Tian, J. M. Shi. and L. X. Zhang. 2017. Reactive wetting of TiC-Ni cermet by Ag-Cu-Zn alloy during evaporation. Vacuum.138:22-29.

https://doi.org/10.1016/j.vacuum.2017.01.014

14. Jin, B., X. Huang, M. Zou, Y. Zhao and Y. Mao. 2021.