

R1078

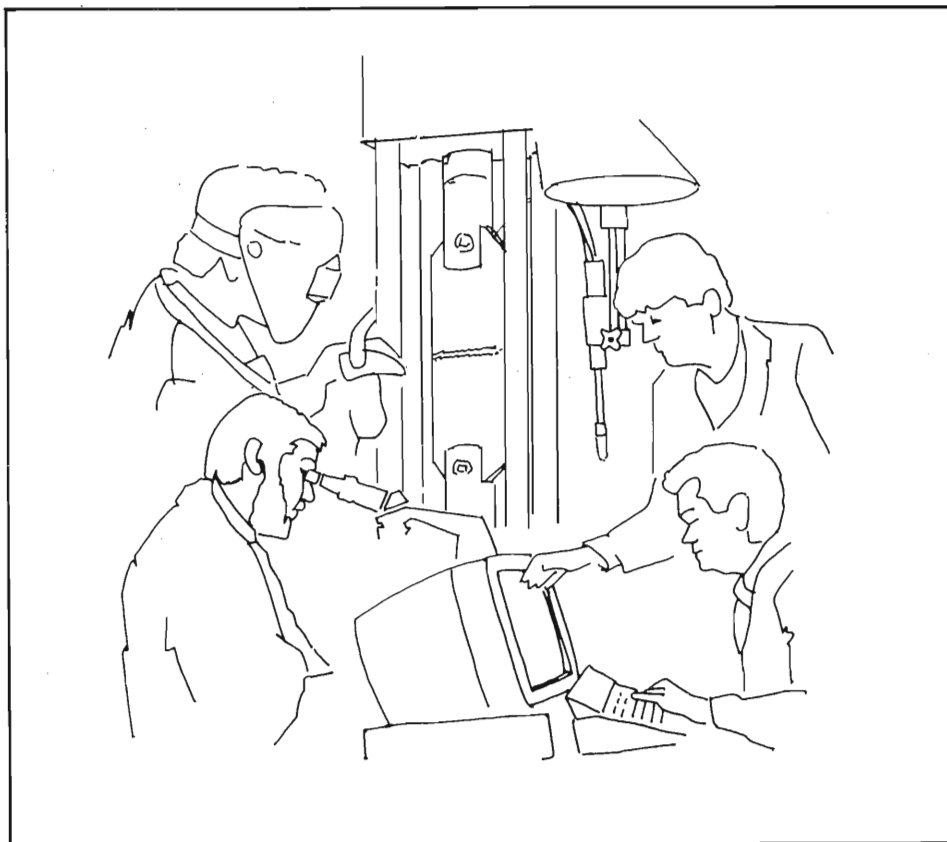
TC-I-A-500-92

Onderzoekprojecten
NIL-project
HOOGTEMPERATUURSOLDEREN

"Transient Liquid Phase Bonding" van
A286 en IN-100

Auteur: ing. C.C.J. Kaasschieter

november 1992



**Nederlands
Instituut voor
Lastechniek**

Rapport

TC-I-A-500-92

"Transient Liquid Phase Bonding" van A286 en IN-100

Bestemd voor:

Het Nederlands Instituut voor Lastechniek

Krimkade 20

2251 KA VOORSCHOTEN

Ter attentie van de voorzitter en de leden van de NIL-Subcommissie TC-I-A

"Hoogtemperatuursolderen"

Samengesteld door: ing. C.C.J. Kaasschieter

Namens de werkgroep "Diffusieverbinden" bestaande uit de heren:

J.H.F.G. Lipperts	ABB	C.C.J. Kaasschieter	IPL-TNO
G.H.M. Gubbels	CTK/TNO/TUE	H.H. van der Sluis	IPL-TNO
K.M. Broek	ECN	M. de Wit	KSLA
W.H. Brouwer	FOM Amsterdam	W. Schouten	KSLA
W. Kersbergen	FOM Rijnhuizen	G.A. Kool	NLR
Chr. van Stiphout	Hardingscentrum Hauzer	S. van Heusden	Philips Nat.lab
C.A.M. Siskens	Hoogovens Ind. Ceramics	R.J. Zaalberg	Thomassen
J. Kamans	Holec	P.Th.H. Steege	V.S.C.
H. Schellekens	Holec		

Datum : November 1992

Opdrachtnummer : 33.2.1058

Oplaag : 45

Dit rapport is het resultaat van onderzoek uitgevoerd door het Instituut voor Produktie en Logistiek TNO in opdracht van het Nederlands Instituut voor Lastechniek.

SAMENVATTING

Als onderdeel van onderzoek op het gebied van diffusieverbinden van diverse materialen, volgens verschillende procesvormen, zijn er experimenten uitgevoerd op de metalen A286 en In-100, waarbij amorf gestolde folies (MBF 75A en MBF 80B) zijn toegepast voor het diffusiesolderen volgens het "Transient Liquid Phase (TLP) Bonding" proces.

Uit het vooronderzoek op de twee metaalsoorten A286 en In-100 in combinatie met de twee foliesoldeertypen bleek het In-100 geen goede resultaten op te leveren terwijl het foliesoldeer MBF 80A een onvoldoende hechting te zien gaf. De keuze voor het bepalen van de mechanische eigenschappen van diffusieverbindingen is derhalve gemaakt voor de combinatie A286 aan A286 met het foliesoldeer MBF 75A.

Verder kan worden vermeld, dat de combinatie In-100 aan In-100 niet mechanisch onderzocht is, daar in het vooronderzoek materiaaldefecten (scheuren, poriën) in het In-100 zijn geconstateerd, waardoor verkeerde conclusies uit het breukgedrag zouden kunnen worden getrokken.

De combinatie A286 aan A286 met het foliesoldeer MBF 75A geeft als resultaat:

- de diffusieverbinding vertoont nog een geringe hoeveelheid restsoldeerelementen, hetgeen er op duidt dat het diffusieproces nog niet volledig is verlopen;
- de grens van òf breuk in de lapnaad òf breuk in het metaal ligt bij een overlapverhouding van ca $6d$ (d =plaatdikte);
- de schuifspanning in de lapnaad is gelijk aan de trekspanning in het metaal (ca 260 N/mm^2) bij een overlapverhouding van ca $1d$ (d =plaatdikte).

Samenvatting

	Inhoud	Pagina
1	INLEIDING	5
2	OPZET EN ACHTERGRONDEN	6
3	MATERIALEN	13
4	UITVOERING EN RESULTATEN	15
4.1	Vooronderzoek	15
4.2	Mechanisch onderzoek	16
4.3	Metallografisch onderzoek	21
5	DISCUSSIE	22
6	CONCLUSIE	23
7	LITERATUUR	24

1 INLEIDING

Het uit te voeren onderzoek op het gebied van het diffusieverbinden van diverse materialen, onderdeel van het programma 1991-1993, heeft het karakter van een zogenaamd demonstratieproject.

De mogelijkheden en beperkingen van het diffusieverbinden zullen experimenteel worden aangetoond, waardoor in het totale programma kennis en ervaring kan worden opgedaan met diverse diffusielas/soldeerprocessen.

Als diffusieverbindingsprocessen worden in het onderzoek toegepast:

- uni-axiaal persen (conventionele methode),
- thermocompressie (snel proces),
- diffusiesolderen met superplastische materialen (snel proces).

Reeds eerder is gerapporteerd over het superplastisch diffusiesolderen van Ti en Ti6Al4V (rapport TC-I-A-476-91).

In dit onderzoekdeel wordt de conventionele methode onderzocht, waarbij volgens het "Transient Liquid Phase Bonding" proces metaal/metaalverbindingen worden gesoldeerd en onderzocht.

Voor het diffusiesolderen in vacuüm met een foliesoldeer worden de volgende metaalcombinaties toegepast:

- A286 aan A286 ;
- In-100 aan In-100;
- A286 aan In-100;

Het doel van het onderzoek is:

1. kennis en ervaring opdoen met het diffusieverbinden;
2. het verkrijgen van betrouwbare verbindingen;
3. het vaststellen van de betrouwbaarheid van de diffusieverbindingsprocessen;
4. het bepalen van de eigenschappen c.q. behoud van eigenschappen van verbindingen respectievelijk basismaterialen.

2 OPZET EN ACHTERGRONDEN

Uit eerder uitgevoerde TC-I-A onderzoeken blijkt telkens weer dat de Al- en Ti-houdende nikkel- en ijzerlegeringen moeilijk soldeerbaar zijn (zie serie TC-I-A-rapporten over het solderen van superlegeringen). Goede reiniging vooraf (bijvoorbeeld via FCC-methode), vernikkelen van het soldeerooppervlak of het beheersen van de atmosfeer (hoogvacuüm, lage inlek) dragen alle bij tot succesvolle verbindingen; echter van tijd tot tijd worden toch problemen met deze hittebestendige metalen ondervonden; onvoldoende doorvloeiing en bevochtiging worden dan geconstateerd. Het soldeerproces berust op bevochtiging. Voorwaarde is dan dat het oppervlak oxydevrij is. Het bevochtigingsprobleem bij de Al- en Ti-houdende metalen is, dat stabiele Al- en Ti-oxyden gevormd worden, die moeilijk ontleed op (zelfs) hoge temperaturen, met gevolg geen of slechte bevochtiging. Deze metalen bevatten Al en Ti om juist bij hoge temperatuur hun mechanische eigenschappen te kunnen behouden: ze zijn dus hoog temperatuurbestendig.

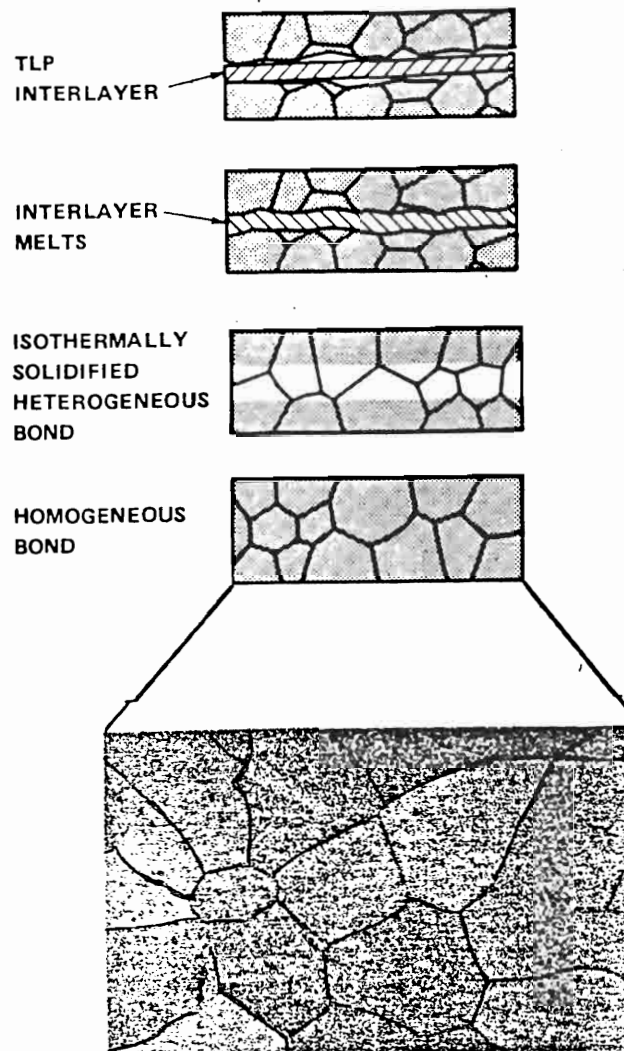
Het "Transient Liquid Phase Bonding" proces is een proces dat bepaald wordt door temperatuur, tijd, druk en atmosfeer. Naarmate de temperatuur hoger is, kan een kortere tijd worden toegepast. In tegenstelling tot vele andere metalen kunnen deze Al- en Ti-houdende metalen langdurig hoge temperatuur doorstaan, zeker indien een beheerste atmosfeer (vacuüm) wordt toegepast. Bij een lichte mechanische druk kan onder gebruikmaking van een tussenmetaal bij hoge temperatuur en een zekere (van te voren ingestelde) tijd een verbinding tot stand worden gebracht. Door het tussenmetaal eerst in de gesmolten toestand te brengen, waarbij uitwisseling van elementen uit tussenmetaal en basismetaal plaatsvindt in de vloeibare toestand (snelle diffusie) kan ten gevolge van samenstellingsveranderingen van het tussenmetaal stolling optreden, bij de toegepaste diffusiesoldeertemperatuur. Voortgezette diffusiebehandeling bij deze hoge temperatuur doet metaal en basismetaal als het ware "in elkaar groeien".

Het "Transient Liquid Phase Bonding" proces is een proces, waarbij gebruik wordt gemaakt van diffusie in zowel de vloeibare als in de vaste toestand en wordt geschematiseerd weergegeven in figuur 1. In figuur 2 wordt het mechanisme in vijf stappen verduidelijkt, gebruikmakend van samenstellingsveranderingen bij isotherme stolling (op constante temperatuur).

Volgens [1] doet diffusiegloeien bij hoge temperatuur en gedurende lange tijd (bijvoorbeeld bij 1200°C resp. 24 uur) structuren ontstaan met verbeterde mechanische (bijvoorbeeld kruip) eigenschappen. In figuur 3 wordt uit [1] de structuur van een naad weergegeven voor Udimet 700 (Ni rest; Cr 15; Co 18,5; Al 4,3; Ti 3,3; Mo 5; C 0,07; B 0,03) aan In-100 diffusiegesoldeerd volgens het "Transient Liquid Phase Bonding" proces. In figuur 4 worden de verbeterde kruipeigenschappen voor de verbindingen tussen deze materialen weergegeven.

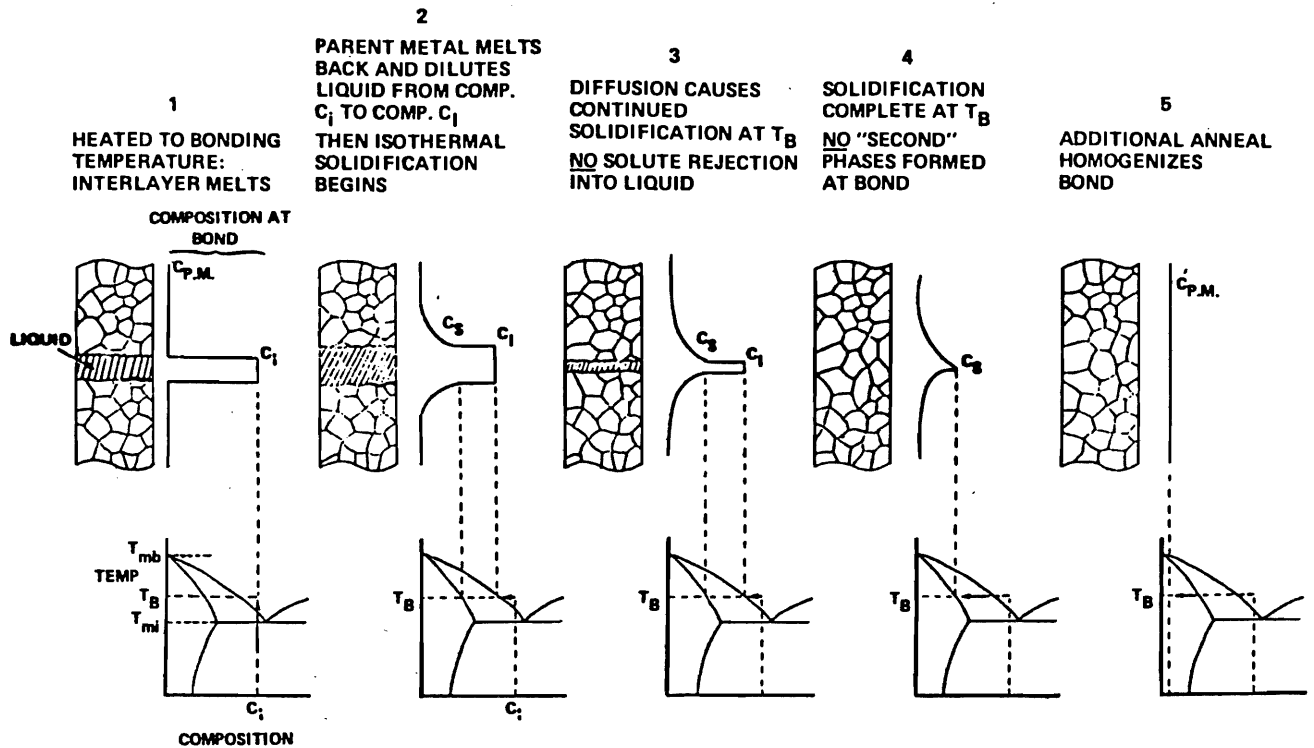
In figuur 5 wordt het verschil getoond tussen de structuur van een volgens "Transient Liquid Phase Bonding" vervaardigde naad in In 713 C (Ni rest; Cr 14; Al 6; Ti 1; Mo 4,5; Nb 2; C 0,14; B 0,01 Zr 0,08) en een gesoldeerde naad in dit materiaal; in de laatste zijn gezien het toegepast nikkel-borium houdende toevoegmateriaal brosse fasen aanwezig die de sterkte negatief kunnen beïnvloeden.

Met deze achtergrondgegevens is een programma opgezet om materialen als A286 en In-100 door middel van het "Transient Liquid Phase Bonding"-proces te verbinden. Als geschikt tussenmetaal wordt volgens [2] METGLAS amorf gestolde folie MBF 75A en MBF 80A toegepast (dikte 50 µm). Aan de hand van diffusiesoldeerproeven uitgevoerd in de Wentgate-oven, gevolgd door visueel en microscopisch onderzoek, wordt een selectie gemaakt voor soldeer-metaalcombinaties die mechanisch worden onderzocht.



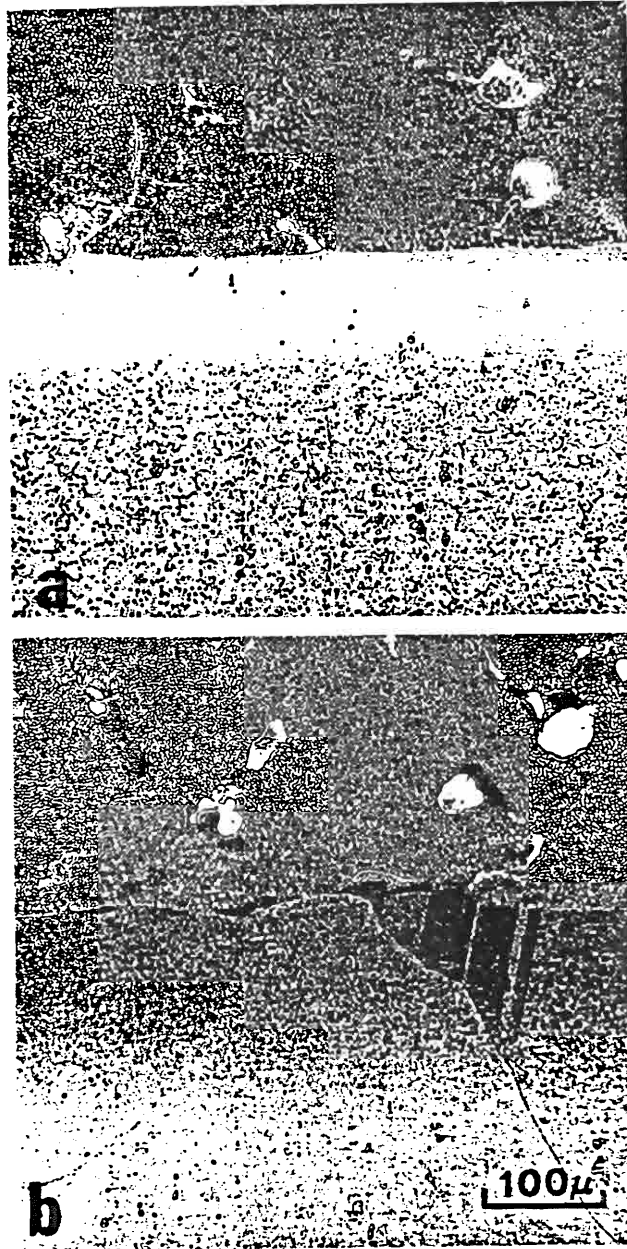
Figuur 1 Schematische weergave van het "TLP Bonding" proces

Opmerking: Figuur 1 t/m 5 uit [1] D.S. Duvall; W.A. Owczarski; D.F. Paulonis; TLP-Bonding: a new method for joining heat resistant alloys; Welding Journal april 1974 p 203-214

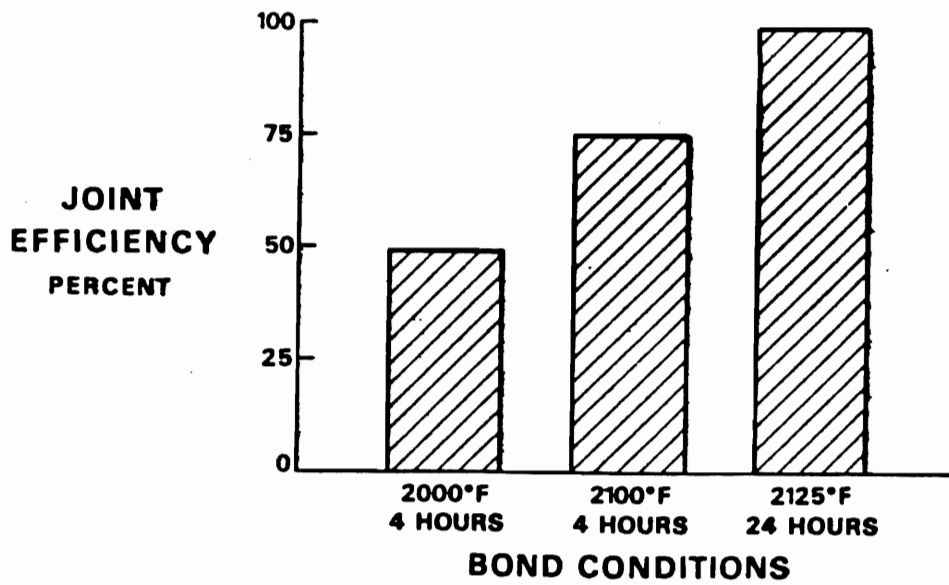


Figuur 2 Het mechanisme schematisch weergegeven in vijf stappen bij isotherme stolling tijdens het "TLP Bonding" proces (voor de eenvoud is een binaire legering genomen, bijvoorbeeld NiB);

- C_i = beginsamenstelling tussenmateriaal;
- C_s = samenstelling van de vaste fase (solidus) bij de diffusietemperatuur T_B ;
- C_l = samenstelling van de vloeibare fase (liquidus) bij de diffusietemperatuur T_B ;
- $C_{P.M.}$ = samenstelling van het basismateriaal;
- T_{mb} = smelttemperatuur van het basismateriaal;
- T_{mi} = smelttemperatuur tussenmetaal.

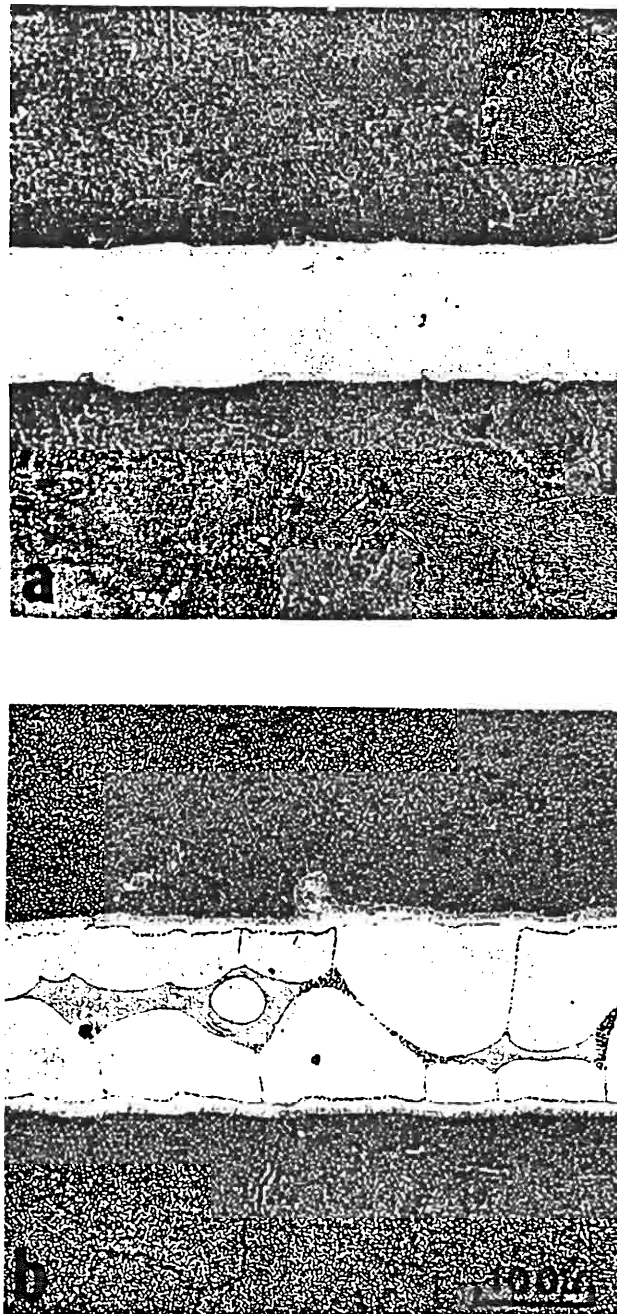


Figuur 3 Diffusieverbinding volgens "TLP Bonding"
proces voor Udimet 700 aan In 100;
a. 1093°C - 4 uur;
b. 1149°C - 4 uur + 1163°C - 24 uur.



Figuur 4 Naadverbetering van een Udimet 700 aan In 100-verbinding als functie van de diffusieverbindingsconditie; naadverbetering berekend naar de eisen van Udimet 700 basismateriaaleigenschappen.

kruipcondities: 760°C - 421 MPa



Figuur 5 Het verschil tussen een "TLP Bonding" verkregen naad in In 713C (a) en een gesoldeerde naad in dit materiaal (b); de laatste bevat brosse boriden.

3 MATERIALEN

METALEN

Bij de keuze van de metalen voor het eerste onderdeel is uitgegaan van twee metalen, die met behulp van een amorf gestold soldeerfoliemateriaal aan elkaar worden verbonden.

In de onderstaande tabel 1 worden de toegepaste metalen beschreven met hun eigenschappen.

Tabel 1: Toegepaste metalen en diffusiesoldeersoorten

Metaaltype	Samenstelling	materiaalvorm	Treksterkte uitgangstoestand N/mm ²	Leverancier
A286 (FeNiCr-leg.)	26Ni; 15Cr; 1,3Mo; 0,2Al; 2Ti; 0,05B; 1,3Mn; 0,5Si; 53,6Fe	plaat 1,5 mm	1000 ^{x/}	DMVS
In-100 (NiCoCr-leg.)	60Ni; 10Cr; 15Co; 3Mo; 5,5Al; 4,7Ti; 0,014Bo; 0,18C; 1,0V; 0,06Zr	staf Ø 40 mm	794	ELBAR
MBF-75A (1057-1165°C) [■]	rest Ni; 23Co; 10Cr; 5,5Fe; 7Mo; 3,5B	folie 0,05 mm	—	METGLAS
MBF-80A (1020-1065°C) [■]	rest Ni; 15,2Cr; 4B	folie 0,05 mm	—	METGLAS

x/ in oplosgloe- en verouderde toestand

■ solidus-liquidus-temperatuur

SOLDEER

Voor het diffusiesolderen van het A286 en In-100 is het foliesoldeer van METGLAS type MBF-75A en type MBF-80A met een dikte van 50 µm gebruikt. De samenstelling van het METGLAS type MBF-75A soldeer is Cr 10, Co 23, Fe 5.5, Mo 7, B 3.5 en Ni rest (51), waarbij het soldeertemperatuurgebied loopt van 1175-1230°C met een optimum bij 1200°C. De samenstelling van het METGLAS type MBF-80A soldeer is Cr 15.2, B 4 en Ni rest (80.8), waarbij het soldeertemperatuurgebied loopt van 1065-1205°C met een optimum bij 1175°C.

Als voorbehandeling worden zowel het soldeerfolie als de metalen delen ontvet.

De gebruikte diffusiesoldeercyclus in vacuüm is voor MBF-75A:

- 1200°C gedurende 16 uur
- 1200°C gedurende 16 uur (zelfde toestand) + 8 uur extra (zelfde cyclus);
- langzaam afkoelen.

De diffusiesoldeercyclus in vacuüm voor MBF-80A is:

- 1100°C gedurende 24 uur;
- langzaam afkoelen.

4 UITVOERING EN RESULTATEN

4.1 Vooronderzoek

Op proefstukjes ter grootte van 15x15x1 mm van A286 en 20x15x2 mm van In-100 zijn diffusiesoldeerproeven uitgevoerd; deze proefstukken zijn vervolgens metallografisch onderzocht, zie tabel 2.

Tabel 2 Resultaten metallografisch onderzoek op diffusiegesoldeerde proefstukken

Diffusiesoldeer	Basismateriaal		
	A286 - A286	A286 - In-100	In-100 - In-100
MBF - 75A (1200°C - 16 uur) + 8 uur extra	goed gehecht; geïsoleerde brosse fasen	gedeeltelijk gehecht; geïsoleerde fasen; In-100 bevat scheuren en holten	gedeeltelijk gehecht; geïsoleerde fasen; In-100 bevat scheuren en holten
	brede band met geïsoleerde fasen	gedeeltelijk gehecht; geïsoleerde fasen; In-100 bevat scheuren en holten	geïsoleerde fasen; holten op hechtvlak + poriën in In-100
MBF - 80A (1100°C - 24 uur)	slechts klein gedeelte gehecht; rest van naad geen soldeer aanwezig	slechts klein deel gehecht	nauwelijks gehecht; In-100 bevat scheuren

Op basis van het metallografisch onderzoek is een keuze gemaakt voor het diffusiesoldeer MBF-75A, teneinde A286 - A286 verbindingen te onderzoeken op mechanische eigenschappen.

Het metaaltype In-100 kwam niet in aanmerking, daar dit materiaal moeilijker te bevochtigen is, en erosieverschijnselen en scheuren vertoonde. Het MBF-80A soldeer bleek eveneens niet geschikt vanwege onvoldoende hechting en optredende ontvochtiging.

4.2 Mechanisch onderzoek

Het mechanisch onderzoek aan diffusiesoldeerverbindingen van A286 aan A286 wordt uitgevoerd met behulp van afschuifproeven. Hierbij wordt, met gebruikmaking van een soldeermal, een tiental overlapverbindingen met een foliesoldeer diffusiegesoldeerd in een vacuümoven. De toegepaste diffusiesoldeercyclus is: soldeertemperatuur 1200°C gedurende 16 uur gevolgd door een extra cyclus gelijk aan de voorgaande cyclus maar dan gedurende 8 uur.

PROEFSTUKKEN

Ter bepaling van het mechanisch gedrag van de diffusiegesoldeerde overlapverbinding in de afschuifproef is een vijftal overlaplengten gekozen, bij een plaatdikte van $d = 1,5$ mm:

1/2 d (0,75 mm), 1 d (1,5 mm), 2 d (3 mm), 4 d (6 mm), 6 d (9 mm).

Alle afschuifproeven zijn in 2-voud uitgevoerd.

De proefstukken zijn opgebouwd uit 2 strippen van 16,5 mm breed en 100 mm lang, waarbij het middengedeelte ter plaatse van de overlap, na het solderen, door middel van frezen is verjongd tot 12,5 mm, zie figuur 6.

UITVOERING AFSCHUIFPROEVEN

Bij de uitvoering van de afschuifproeven in een trekbank is in verband met het zoveel mogelijk verhinderen van optredende buiging ter plaatse van de lapnaadverbinding gebruik gemaakt van het opvullen van de einden van het proefstuk met strippen van dezelfde dikte als het te beproeven materiaal, waardoor de verbinding in lijn wordt belast.

RESULTATEN AFSCHUIFPROEVEN

De proefstukken zijn voor het beproeven visueel bekeken, hetgeen resulteert in aantal opmerkingen:

- één van de proefstukken met een overlaplengte van 1/2 d is bij het aanbrengen van de verjonging gebroken en kon derhalve niet worden beproefd;
- het soldeer aan de uiteinden heeft zich soms enigszins teruggetrokken, waardoor er kleine spleten (kieren) ontstaan.

De sterkteresultaten van de afschuifproeven op diffusieverbindingen van A286 aan A286 met het foliesoldeer MBF-75A zijn weergegeven in tabel 3. Tevens is het verloop weergegeven van de schuifspanning in de lapnaad en de trekspanning in het metaal ten opzichte van de verhouding overlap/plaatdikte in figuur 7.

Over de sterkteresultaten van de diffusieverbindingen is het volgende op te merken:

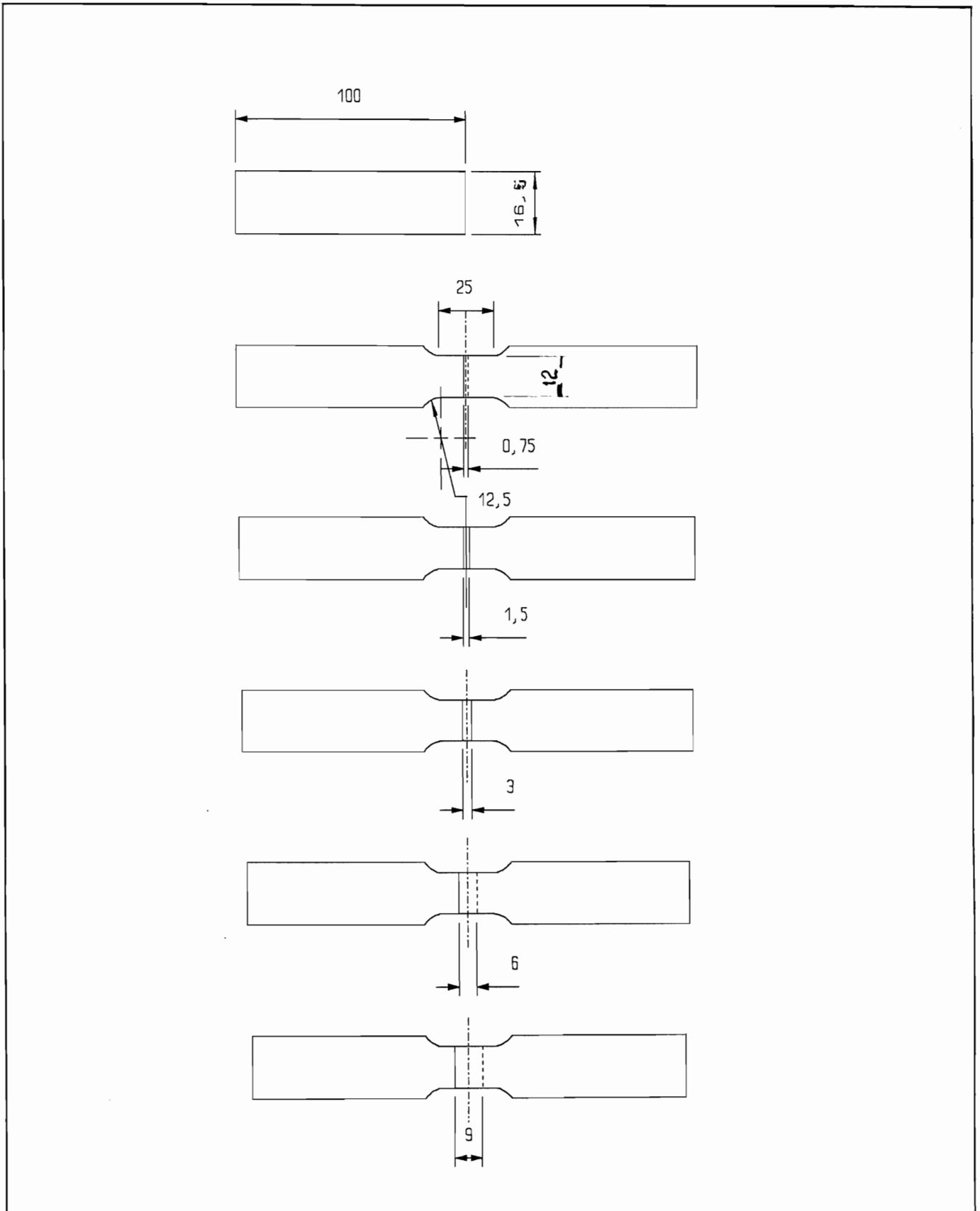
- eerst bij een overlaplengte van ca $6d$ treedt er breuk in het metaal op in plaats van in de overlap;
- bij een overlaplengte van $1d$ is de gemiddelde afschuifspanning bij breuk gelijk aan de gemiddelde trekspanning in het metaal (ca 260 N/mm^2);
- de maximum treksterkte in het metaal na het solderen is gemiddeld 467 N/mm^2 , hetgeen ca 47% bedraagt van de treksterkte in uitgangstoestand (gemiddeld 1000 N/mm^2);
- met behulp van de grafiek is men in staat om bij een gewenste sterkte van de verbinding een overlaplengte te bepalen.

Tabel 3 : Resultaten afschuifproeven op diffusiegesoldeerde verbindingen van A286 aan A286

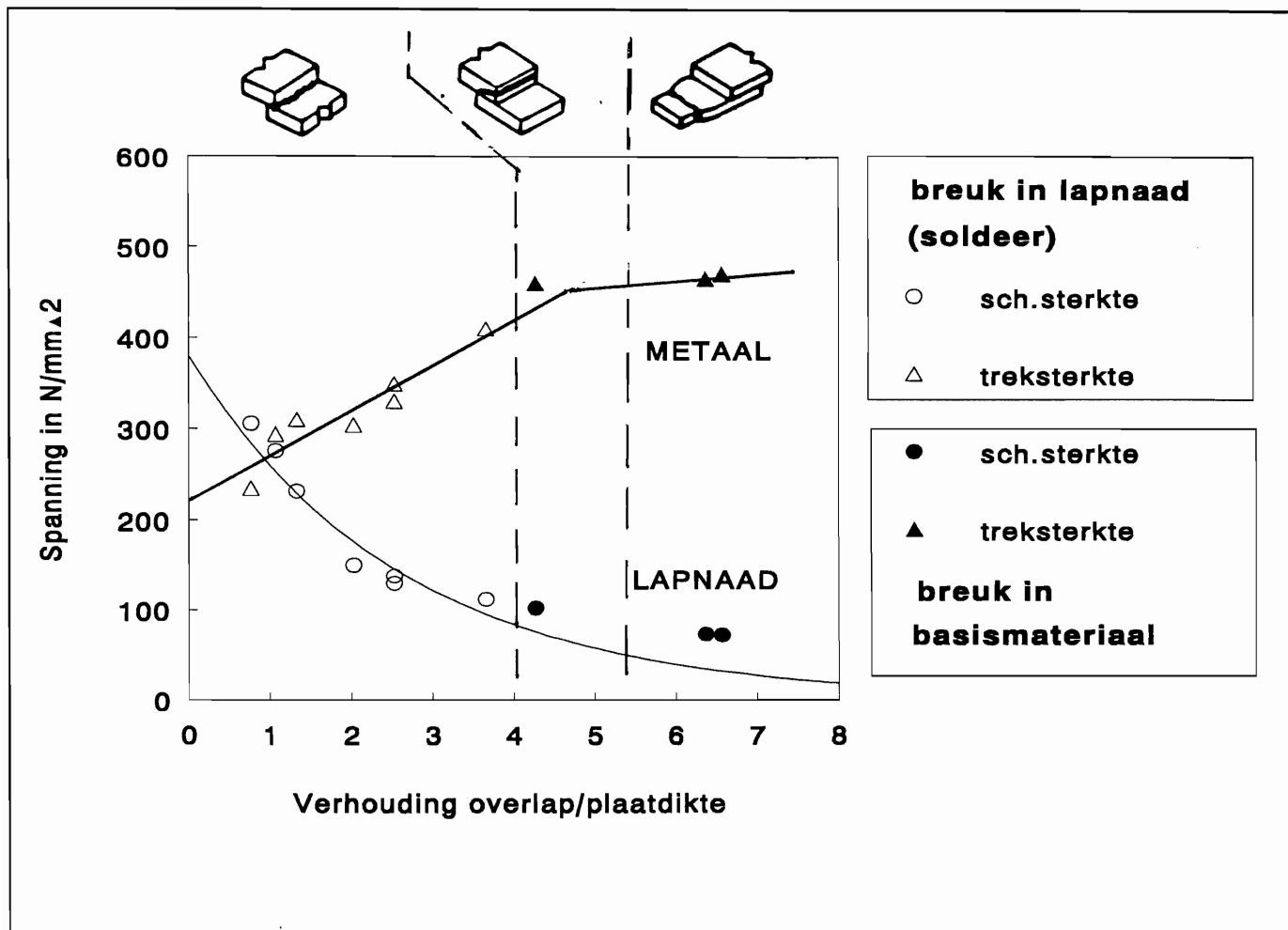
Proef- nr	Overlap mm	Breedte mm	Breuk- belast. N	(Breuk)Spanning		Beoordeling breukvlak	Opmerking
				lapnaad N/mm ²	metaal N/mm ²		
A1	1,15	12,5	4400	306	235	kleine scheur in metaal	
A2	1,05	12,5	-	-	-		bij bewerken ge- broken
A3	1,6	12,46	5500	276	294	licht ingescheurd bij overgang lapnaad; glad breukvlak	
A4	2,0	12,48	5800	232	310	breuk half in soldeer en half in metaal	
A5	3,05	12,5	5700	150	304	glad breukvlak	
A6	3,8	12,42	6150	130	330	glad breukvlak	
A7	3,8	12,4	6500	138	349	licht ingescheurd bij overgang lapnaad; half glad half ruw breukvlak	
A8	6,4	12,3	8000	102	460		11,6 mm ^o in metaal gebr.
A9	5,5	12,44	7650	112	410		
A10	9,55	12,54	8750	73	465		in metaal gebr.
A11	9,85	12,2	8600	72	470		in metaal gebr.

o - buiten lapnaad iets dunner gedeelte (bewerkingsfout; te ver ingenomen)

grijze velden duiden op breuk in het metaal



Figuur 6 Afschuifproefstukken voor het diffusieverbinden van A286 met foliesoldeer MBF-75A



Figuur 7 Resultaten afschuifproeven op diffusieverbindingen van A286 aan A286 met foliesoldeertyp MBF-75A (50 μm)

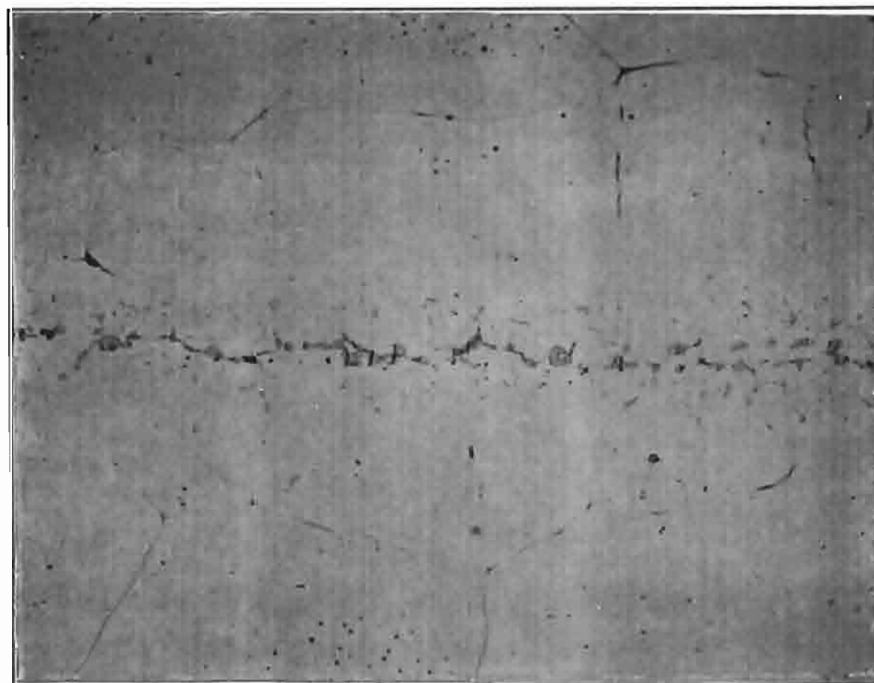
4.3 Metallografisch onderzoek

Voor het kunnen beoordelen van de kwaliteit van de op afschuiving beproefde diffusiesoldeerverbindingen is van de niet gebroken lapnaadverbinding van proefstuk A11 een doorsnede gemaakt en microscopisch onderzocht.

De doorsnede van proefstuk A11 wordt weergegeven in figuur 8.

Over de diffusieverbinding van A286 aan A286 diffusiegesoldeerd met het foliesoldeertype MBF-75A kan het volgende worden opgemerkt:

- de diffusieverbinding vertoont slechts nog een geringe hoeveelheid brosse fasen in het soldeer;
- er is aanzienlijke korrelgroei opgetreden in het A286 ten opzichte van de uitgangstoestand.



Figuur 8 Doorsnede van een diffusieverbinding van A286 aan A286 gesoldeerd met foliesoldeertype MBF-75A (50 μm).
V = 64x (fotonr M2475)

5 DISCUSSIE

Het diffusiesolderen van A286 aan A286 blijkt goed uitvoerbaar te zijn, hoewel er in de onderzochte soldeer- verbindingen nog brossen fasen in het soldeer aanwezig zijn. Door het optimaliseren van de soldeerparameters moet het mogelijk zijn een goede diffusieverbinding te realiseren. Bij het diffusiesolderen van het onderzochte A286 treedt er wel aanzienlijke korrelgroei op, waardoor de treksterke van het basismateriaal ongeveer gehalveerd wordt ten opzichte van de sterkte in uitgangstoestand. Deze achteruitgang in sterkte zal derhalve geaccepteerd moeten worden, wanneer deze verbindingstechniek wordt toegepast.

Het metaal In-100 gaf een slecht resultaat, daar dit materiaal moeilijker te bevochtigen is. Ook werd enige erosie geconstateerd; In-100 vertoonde scheuren. Het MBF-80A soldeer bleek niet geschikt vanwege de onvoldoende hechting en optredende ontvochtiging.

6 CONCLUSIE

Materiaal In-100

Het diffusiesolderen van het In-100 in combinatie met zichzelf of met A286 geeft geen goed resultaat, in verband met het sterk terugtrekken van de soldeerfolie c.q. oplossen in het In-100. Bovendien vertoont het basismateriaal na het solderen scheuren en holten (poriën).

Materiaal A286

Het diffusiesolderen van A286 aan A286 met het foliesoldeer MBF-75A geeft het volgende resultaat:

- uit het vooronderzoek blijkt TLP Bonding goed hechtende verbindingen te geven;
- uit mechanisch onderzoek blijkt dat eerst bij een overlaplengte van ca 6 breuk optreedt in het metaal in plaats van in de overlap;
- bij een overlaplengte van 1d is de gemiddelde afschuifspanning bij breuk gelijk aan de gemiddelde trekspanning in het metaal (ca 260 N/mm²);
- de maximum treksterkte in het metaal na het solderen is gemiddeld 467 N/mm², hetgeen ca 47% bedraagt van de sterkte van het metaal in uitgangstoestand (gemiddeld 1000 N/mm²);

Het diffusiesolderen van A286 aan A286 met het foliesoldeer MBF-80A leverde als resultaat een slechte spleetvulling ten gevolge van terugtrekken c.q. oplossen van het diffusiesoldeermateriaal in het basismateriaal.

Instituut voor Productie en Logistiek TNO

Afd. Produktietechnologie

ing. C.C.J. Kaasschieter



ir H.H. v.d. Sluis



7 LITERATUUR

- [1] D.S. Duvall; W.A. Owczarski; D.F. Paulonis
TLP-Bonding: a new method for joining heat resistant alloys.
Welding Journal april 1974, p 203-214

- [2] METGLAS[®] brazing foils (specifications / properties)
Folder van METGLAS PRODUCTS DEPARTMENT
Informatie bij: Allied-Signal Inc., Haarode Research Park-Grauwmeer,
B-3001 Heverlee (Leuven) België (tel. 32-16391211)