

行政院國家科學委員會專題研究計畫 成果報告

陶瓷低溫活性軟銲接合之反應機理研究

計畫類別：個別型計畫

計畫編號：NSC92-2216-E-002-023-

執行期間：92年08月01日至93年07月31日

執行單位：國立臺灣大學材料科學與工程學研究所

計畫主持人：莊東漢

計畫參與人員：張世穎、顏秀芳、曹龍泉、林士硯

報告類型：精簡報告

處理方式：本計畫可公開查詢

中 華 民 國 93 年 10 月 11 日

行政院國家科學委員會專題研究計畫成果報告

陶瓷低溫活性軟鐸接合之反應機理研究

Reaction Mechanism for Low Temperature Active Soldering of Ceramics

計畫編號：NSC92-2216-E002-023

執行期限：92年8月1日至93年7月31日

主持人：莊東漢 台大材料所教授

研究人員：張世穎、顏秀芳、曹龍泉、林士硯

一、中文摘要

本計畫針對添加稀土元素之低溫活性軟鐸填料在陶瓷接合的反應機理進行探討，接合實驗材料包括：氧化鋁、氧化鋯及硫化鋅等陶瓷，另外亦加入一些難潤濕材料的接合，例如：石墨、玻璃、鈦、發泡鋁等，接合後的工件分析其界面結構與反應生成物，並量測其接合強度。

關鍵詞：陶瓷接合、低溫活性軟鐸、填料、稀土元素、反應機理

Abstract

The objectives of this project are to conduct an in-depth investigation of the reaction mechanism responsible for the joining of various ceramics using a low temperature active solder added with rare earth elements. The bonding experimental materials involved various ceramics, such as alumina, zirconia and ZnS. The joining of some difficultly wettable materials was added in this study, such as graphite, glass, Ti, and foam Al. The interfacial microstructure

as well as the reaction products after bonding will be analyzed, and their bonding strengths measured.

Keywords: ceramic bonding, low temperature active soldering, fillers, rare-earth elements, reaction mechanism

二、計畫緣由與目的

陶瓷接合在工程有其特定的應用需求，活性填料硬鐸接合的發展改善了傳統鉬錳法接合陶瓷的複雜過程^{1,2}，更使得硬鐸接合法成為陶瓷接合工程的主流，然而硬鐸接合溫度一般均在700℃以上，容易造成陶瓷脆裂，由其在與金屬接合時所產生的熱應力常是接合失敗的主因。德國 Degussa 公司在數年前開發 Sn10Ag4Ti(CS1) 與 Pb4In4Ti(CS2) 兩種低熔點活性填料³，但由於受限於其活性元素(Ti)與陶瓷的反應溫度⁴，其接合仍須在700℃以上，因此仍歸屬於硬鐸接合的範疇^{5,6}。

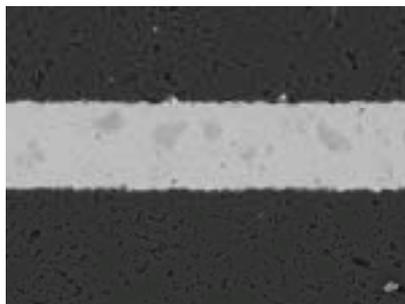
工程上有許多應用組件對溫度極為敏感，開發一名符其實的陶瓷「低溫活性鐸料」接合技術在相關產業上期盼已久（軟鐸接合的定義為接合溫度400℃以下）。此一夢想最近已經獲

得實現，德國 Euromat 公司成功研發出一種添加稀土元素(Ce 或 Ga)於 Sn 基及 Zn 基活性鋅錫內的特殊軟鋅填料，可以在 250 至 400 直接進行陶瓷接合，更加另人振奮的是其接合製程可在大氣環境進行^{7,8}(過去的陶瓷活性硬鋅填料均必須在真空或保護氣氛接合)。

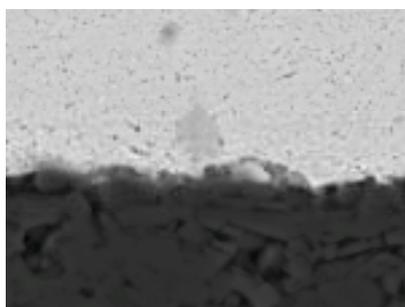
本計畫主要將針對此低溫活性軟鋅填料對陶瓷接合的反應機理仍有待更深入研究，包括：稀土元素(Ce 與 Ga)的作用及其與活性元素(Ti)的關聯及其潤濕元素(Ga)在此填料組成的必要性，並由此建立此填料對陶瓷的潤濕與接合機構。

三、實驗結果

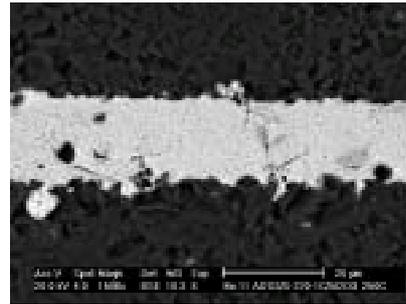
(一)陶瓷接合



(a)



(b)



(c)

圖 1. (a)(b)Al₂O₃/S220/ Al₂O₃接合界面
(c) Al₂O₃/S220-1Cu/ Al₂O₃接合界面顯微組織

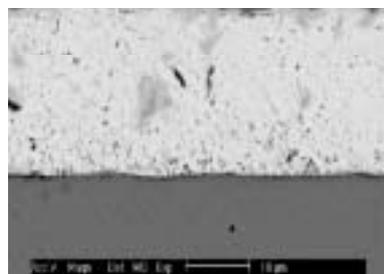
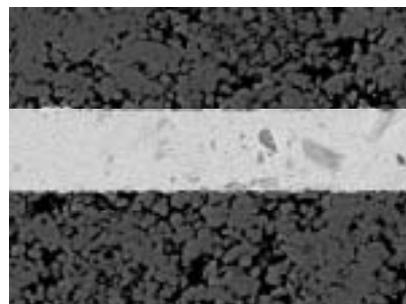
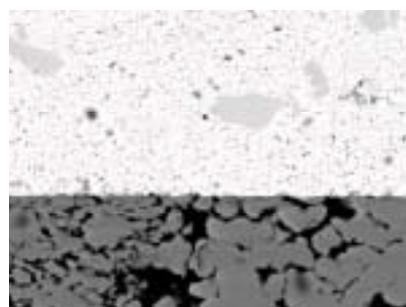


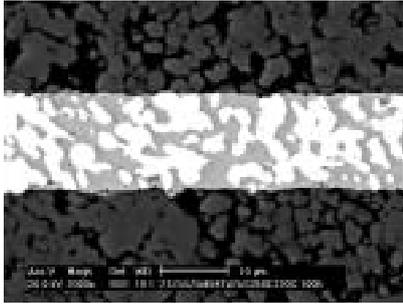
圖 2. ZrO₂/S220 接合界面顯微組織



(a)

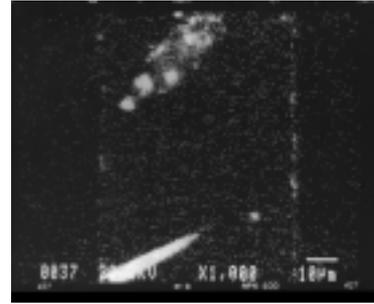


(b)



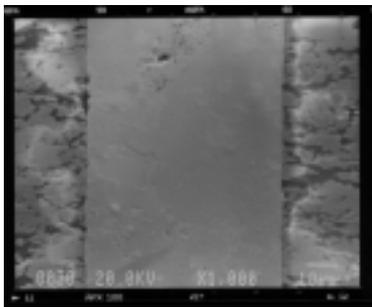
(c)

圖 3. (a)(b)ZnS/S220/ZnS 接合界面 (c) ZnS/SnBiTi(Ce.Ga)/ZnS 接合界面顯微組織



(d)

圖 4. ZnS/S220/ZnS 接合界面 EPMA 元素分布 (a) 擴散接合界面 (b) Ce (c) Ga (d) Ti



(a)

(二)石墨接合

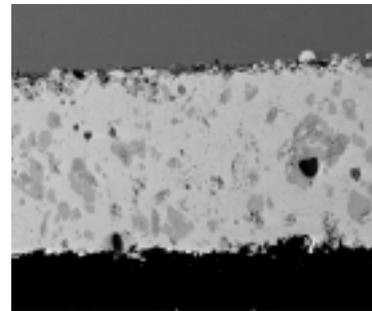
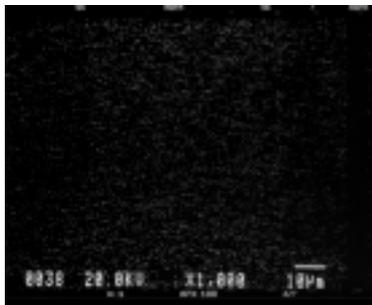
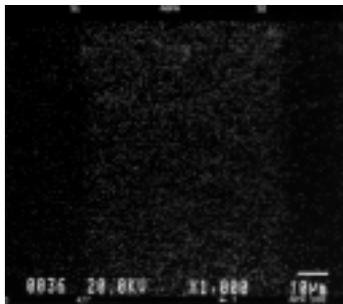


圖 5.C/S220 接合界面顯微組織



(b)

(三)玻璃接合



(c)

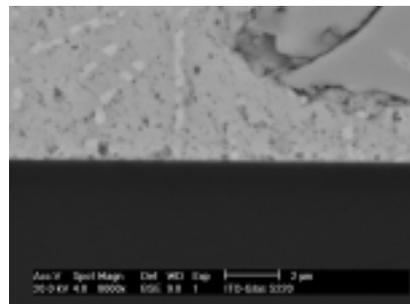
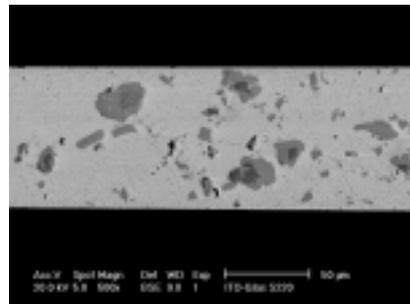


圖 6.Glass/S220/Glass 接合界面顯微組織

(四)難潤濕金屬接合

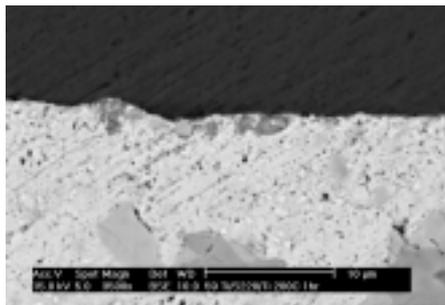
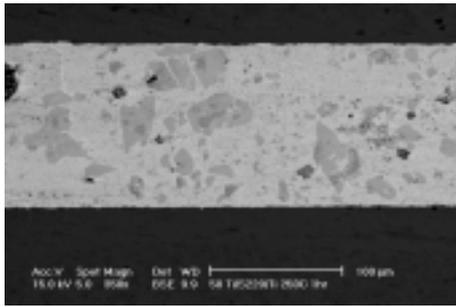


圖 7. Ti/S220/Ti 接合界面顯微組織

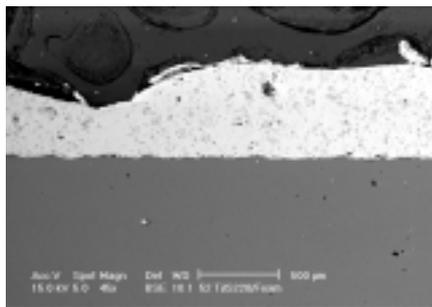


圖 8. foam Al/S220/Ti 接合界面顯微組織

四、討論

綜合以上的接合實驗結果，大致可推斷此一新開發低溫活性填料的接合機構主要是利用稀土元素的極高活性在接合界面偏析，由此形成界面原子的潤濕與鍵結而一般活性填料元素 Ti 及促進潤濕元素 Ga，功能並不顯著，後續發展此特殊填料的合金設計重點應在稀土元素的種類及濃度。

五、計畫成果自評

經由本計畫有系統的探討添加稀土低溫活性填料對氧化鋁、氧化鋯、硫化鋅、石英玻璃、石墨、鈦、發泡鋁等難潤濕材料的接合實驗，大致可確定其接合機構（以稀土元素為關鍵元素），此機構略有別於一般陶瓷硬鋸接合的活性填料（以 Ti 為關鍵元素），這對後續發展此填料合金及其應用提供了較明確的方向。

六、參考文獻

1. H. J. Nolte: Metallized Ceramic, US Patent 2,667,432, Jan., 1954.
2. W. B. Hanson, K. I. Ironside, and J. A. Fernie, "Active Metal brazing of Zircoia", *Acta Mater.*, 48(2000)4673-4676.
3. W. Weise, W. Malikowski, and W. Bohm, *Firmenschrift Degussa Hanau Ag, Hanau, Germant.*
4. 翟雲翔、蔡騰群、莊東漢：低熔點活性填料與陶瓷之界面反應熱分析，*材料季刊*，29，1（1997）1-12.
5. T. H. Chuang, M. S. Yeh, and Y.H. Chai, *Metall. Mat. Trans.*, 31A (2000) 1591-1597.
6. Y. C. Chai, W. P. Weng, and T. H. Chuang, "Ceram. Inter.", 24 (1998) 273-279
7. F. Hillen, D. Pickart-Castillo, J. R. Huckelhover, and E. Lugscheider, *Welding & Cutting*, 52 (2000) E162-162.
8. Ronald W. Smith, , *Welding Journal*, Oct., (2001) 30-35.