Het verbinden van keramiek aan staal

K.M. Broek

In de meeste gevallen dat technisch keramiek wordt toegepast, is er sprake van een constructie waarin ook metalen delen voorkomen. De constructeur zal vaak veel aandacht moeten besteden aan de vraag hoe de verbinding tussen metaal en keramiek tot stand kan worden gebracht. In het voorliggende artikel zal een aantal mogelijkheden de revue passeren. Er wordt onderscheid gemaakt tussen een drietal verbindingsmogelijkheden:
- **mechanische verbindingen;**
- **verbindingen met organische of anorganische tussenlagen;**
- **verbindingen met metallische tussenlagen.**

De technische keramieken onderscheiden zich op een aantal punten van de gebruikelijke constructiematerialen. Ze zijn slijt- en vormvast door hun hoge stijfheid en sterkte; echter door hun geringe taaiheid is de trekvastheid gering: een drukbelasting verdient de voorkeur. De thermische uitzetting is in de regel lager dan bij metalen. Bij hogere temperaturen gaan de mechanische eigenschappen relatief weinig achteruit. De corrosiebestendigheid van de technische keramieken is in verschillende milieu's beter dan die van metalen.
Een aantal voorbeelden van technische keramieken volgt hieronder.

• Aluminiumoxyde (Al_2O_3)
Dit is een van de oudere technische keramieksoorten. Deze soort vindt al geruime tijd toepassing in de elektrotechnische industrie vanwege de goede elektrische isolatiewaarde.
Een type aluminiumoxyde van hoge zuiverheid is dat met de aanduiding "Al_2O_3 99,7". Dit is aluminiumoxyde met een hoge zuiverheid. Voor elektrotechnische toepassing wordt vaak een lagere zuiverheid toegepast, bijvoorbeeld Al_2O_3 94 of Al_2O_3 97;

• Zirkoniumoxyde (ZrO_2)
Dit is een materiaal met een hogere sterkte dan Al_2O_3 en een hoge taaiheid, althans bij de met yttriumoxyde gestabiliseerde PSZ-soorten. Dit keramiek heeft een relatief hoge uitzettingscoëfficiënt;

• Sialon (Si-Al-O-N)
Dit materiaal wordt wel als mengvorm van aluminiumoxyde en siliciumnitride bestempeld. Sommige eigenschappen zijn beter dan die van siliciumnitride, zoals de sterkte bij hoge temperatuur. Aan sialon wordt veelal yttriumoxyde toegevoegd; de "y" komt terug in de merknaam Syalon. Een type sialon is Syalon 201, waarin een kristallijne fase van YAG aanwezig is. Dit materiaal is bij hoge temperatuur (1400°C) relatief sterk en het heeft goede kruipeigenschappen. Volgens opgave van de leverancier is Syalon 201 ook toepasbaar in milieus met gesmolten metalen;

• Siliciumnitride (Si_3N_4)
Dit niet-oxydische keramiek kan worden toegepast bij hogere temperaturen, zoals die in bijvoorbeeld een automotor zullen optreden.
Op grond van de produktiewijze kunnen ruwweg vier kwaliteiten onderscheiden worden: RB (reactie gebonden), S (gesinterd), HP (heet geperst) en HIP (heet isostatisch geperst). De RB-kwaliteit is het goedkoopst, maar heeft ook de slechtste eigenschappen. De S-kwaliteit is wat duurder en wat beter. Bij het verbinden met metallische tussenlagen wordt de voorkeur gegeven aan de duurdere HP- en HIP-kwaliteiten, waarvan de laatste het meest kostbaar is;

• Siliciumcarbide (SiC)
Qua eigenschappen en toepassingen lijkt dit materiaal op Si_3Ni_4. De elektrische weerstand is echter laag.

	soort.massa (kg/m^3)	σ_{buig} (MPa)	dl/l (µm/m · K)
Al_2O_3 (99,7%)	4,0 10^3	340	8,0
ZrO_2 (PSZ)	5,8 10^3	610	10,6
Syalon 201	3,2 · 10^3	825	3,2
Si_3N_4 (HP)	3,2 · 10^3	900	3,2
SiC (S)	3,1 10^3	485	4,3

Tabel 1. Enige keramieksoorten met soortelijke massa, buigsterkte en thermische uitzettingscoëfficiënt bij kamertemperatuur; vrij naar [1].

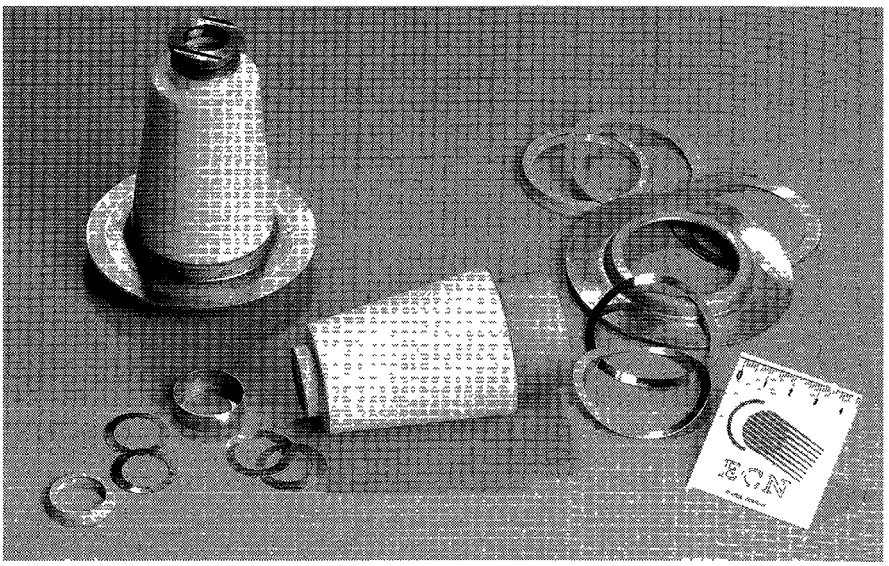
Metaal	dl/l (µm/m K)	Temperatuurgebied (°C)
Aluminium (AA1050)	25,5	0-300
Ongelegeerd staal (SAE1018)	15	20-700
	13 2)	20-1000
Roestvaststaal AISI 316L	18	20-1000
Koper	20,5	20-1000
Nikkel	16,56	20-1000
Fernico (53Fe-29Ni-18Co)(merknaam Kovar)	5 3)	20-450
Molybdeen (TZM)	5,5	20-1000
Wolfraam	4,5	20-1000

Tabel 2. De gemiddelde thermische uitzettingcoëfficiënt[1] voor enkele metalen en metaallegeringen.

Opmerkingen
1) De gevonden waarden voor dl/l zijn afgerond op 0,5 Bij gebruik van deze waarden moet enige voorzichtigheid in acht worden genomen, ze zijn afkomstig van verschillende bronnen en gemeten met onbekende nauwkeurigheden Bovendien zijn alle metalen en metaallegeringen in verschillende technische kwaliteiten te verkrijgen, een verschil van 10 procent met de tabelwaarde is daardoor niet ondenkbaar
2) Bij de overgang van ferriet naar austeniet ontstaat krimp
3) Boven 450°C wordt dl/l van fernico ongeveer driemaal zo groot

Ook bij de siliciumcarbides wordt onderscheid gemaakt in RB-, S-, HP- en HIP-kwaliteiten.

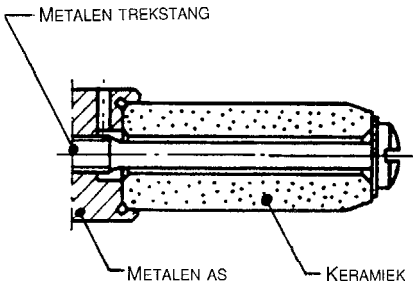
In tabel 1 zijn richtwaarden voor een aantal mechanische eigenschappen van de keramieken vermeld. In tabel 2 staan de mechanische eigenschappen van enkele metalen vermeld. Sommige van deze metalen worden veel toegepast als constructiemateriaal, zoals roestvaststaal, staal en koper. In tabel 2 zijn ook metalen opgenomen die soms als metallische buffer gebruikt worden, omdat hun uitzettingsgedrag meer aansluit bij dat van het keramiek. Voorbeelden hiervan zijn fernico (een ijzer-nikkel-kobaltlegering), molybdeen en wolfraam.



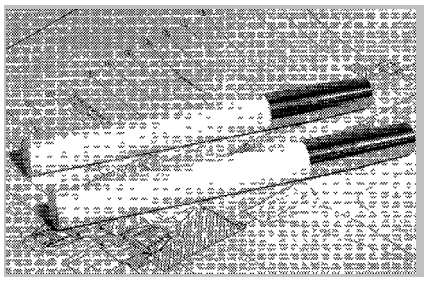
Onderdeel van een röntgenkanon. De materialen zijn aluminiumoxyde en ijzer-nikkel-kobalt. Het aluminiumoxyde is gemetalliseerd en het metaal is vernikkeld. Als soldeer wordt Ag-Cu in preformfolie toegepast.

Mechanische verbindingen

Keramiek en metaal kunnen in principe mechanisch aan elkaar verbonden worden; hierbij kan worden gedacht aan schroeven en klemmen.
Van deze twee mogelijkheden zal *schroeven* veelal niet worden toegepast. Dit komt enerzijds doordat het aanbrengen van een schroefdraad in keramiek een kostbare zaak is. Anderzijds kan vaak niet worden voldaan aan de eis dat de krachten gelijkmatig over de keramische schroefdraad verdeeld zullen worden; dit zal in de regel alleen bij zachte, sterk vervormbare materialen als kunststoffen het geval zijn.



Figuur 1. Mechanische verbinding van een keramische plunjer aan een metalen as. Het betreft hier een onderdeel van een hogedruk waterpomp; uit Spur [2]



Figuur 2. Plunjer van aluminiumoxyde, verlijmd aan een roestvaststalen as. De plunjer is gemaakt voor een homogenisator voor het verwerken van ongezouten wei.

Bij *klemmen* kan het keramische onderdeel tussen twee metalen delen onder drukspanning worden gebracht. Een voorbeeld hiervan is de plunjer in figuur 1. Ook hier geldt dat het keramiek gelijkmatig moet worden belast; de contactvlakken tussen keramiek en metaal dienen goed vlak te zijn.
Bij een andere klemmethode wordt het metalen onderdeel verwarmd en om het keramische onderdeel gekrompen. Het keramiek wordt hierbij onder druk belast; ook hier moet voor een gelijkmatige drukverdeling worden gezorgd. Door Fernie en Sturgeon [3] wordt een voorbeeld aangehaald van een bougie, waarbij op deze wijze een gasdichte verbinding wordt gemaakt. Een goede krachtverdeling komt tot stand door gebruik te maken van een vervormbare tussenlaag, in dit geval aluminium.

Verbindingen met organische of anorganisch tussenlagen

Bij verbindingen met organische en anorganische tussenlagen moet gedacht worden aan:
- organische lijmen (lagetemperatuurtoepassingen, tot 250°C);
- anorganische lijmen (hogetemperatuurtoepassingen, tot 2200°C);
- smeltglazen (lagetemperatuurtoepassingen).

Organische lijmen

Een voorbeeld van een organische lijmverbinding voor gebruik bij niethoge temperaturen toont figuur 2.
Lijmverbindingen kunnen op vele manieren worden ingedeeld, bijvoorbeeld naar hun chemische samenstelling (epoxylijm), verschijningsvorm (dispersielijm) of uithardingssnelheid (secondenlijm). Voor meer informatie over de naamgeving en toepassing van verschillende lijmsystemen wordt verwezen naar literatuur [4] en [5]. In deze paragraaf zal worden volstaan met het geven van een korte opsomming van een aantal organische lijmsoorten die voor keramiek-metaalverbindingen kunnen worden toegepast.

- De *anaerobe lijmsoorten* bestaan uit vloeibare kunstharsen die bij kamertemperatuur uitharden; dit gebeurt alleen bij afwezigheid van zuurstof en in principe alleen op een metaaloppervlak. Het toe te passen temperatuurgebied voor de constructie ligt tussen –55°C en 200°C. Op het keramiek dient vooraf een activator te worden aangebracht.

Het verbinden van keramiek aan staal

• *Epoxylijmen* harden uit tussen kamertemperatuur en 120°C, afhankelijk van het type harder. Deze lijmsoorten hebben een relatief hoge eigensterkte (>10 MPa).
Het metaaloppervlak dient met een primer te worden voorbehandeld in verband met de corrosie-eigenschappen van de verbinding. Een goede reiniging van de oppervlakken is noodzakelijk
• *Polyurethaanlijmen* kunnen worden toegepast voor het maken van elastische verbindingen. Hierbij kan ondermeer onderscheidt worden gemaakt tussen één- en tweecomponentsystemen·
– Eéncomponentsystemen hebben een geringe sterkte; de chemisch bestendigheid is goed. De te verbinden oppervlakken moeten droog, stofvrij en vetvrij zijn.
– Tweecomponentsystemen hebben een hogere sterkte (>10 MPa). Samen met de elastische eigenschappen maakt dit de lijm geschikt voor verbindingen in dynamisch belaste constructies. Indien de constructie in een vochtig milieu wordt toegepast, moet het metaal met een primer worden voorbehandeld.
• *Cyanoacrylaatlijmen* hebben een hoge uithardingssnelheid; vaak wordt deze lijmsoort met "secondenlijm" aangeduidt. Van deze lijm bestaan diverse typen met verschillende chemische en fysische eigenschappen. De lijmen zijn in de regel meer geschikt voor het maken van "puntverbindingen" (sterkte tot 35 MPa), dan voor het verbinden van grote vlakken. Bij de verwerking moet met de volgende zaken rekening worden gehouden:
- de te verbinden vlakken moeten vetvrij zijn;
- de te verbinden vlakken moeten goed op elkaar passen zodat een zeer dunne lijmlaag ontstaat;
- de luchtvochtigheid heeft een grote invloed op het hardingsproces.

Anorganische lijmen

Anorganische lijmen zijn ontwikkeld voor het maken van verbindingen die langdurig bestand zijn tegen temperaturen boven 1000°C; de te verbinden materialen zijn glas en keramiek, onderling of aan metalen. Kenmerken van deze lijmen zijn een lage sterkte, een geringe krimp, een hoge hardheid, een lage schokbestendigheid en een grote porositeit (met name bij de lijmen op waterbasis).
De lijmen zijn volgens H.Schwartz [6] opgebouwd uit de basisstoffen, een bevochtigingsmiddel, een anti-schuimmiddel, een "levelling agent" en een bindmiddel of activator.
De basisstoffen zijn veelal oxydisch van aard: bijvoorbeeld een combinatie van aluminiumoxyde, siliciumoxyde, magnesiumoxyde en zirkoniumoxyde. Voor het verbinden van niet-oxydische keramieken wordt ook gewerkt aan mengsels met titaanboride, boriumnitride, siliciumnitride en dergelijke. In sommige gevallen worden zelfs metaaldeeltjes van roestvaststaal, aluminium of koper toegevoegd.
De aard van het bindmiddel is van belang omdat sommige bindmiddelen beter aan keramiek hechten en andere aan metalen.
Na het aanbrengen van de lijmen zijn er twee uithardingsmogelijkheden:
- de lijmen op waterbasis worden gedroogd aan lucht;
- de andere lijmen worden uitgehard bij temperaturen tot boven 400°C; hierbij kan een begin van glasvorming ontstaan.

Smeltglazen

Verwant aan de anorganische lijmen zijn de smeltglazen. De temperatuur waarbij de verbinding gemaakt wordt ligt echter hoger (800-1500°C), terwijl de maximum gebruikstemperatuur lager ligt. Door het smelten van de basisstoffen (verglazing) ontstaat een gesloten gasdichte verbinding. Bij keramiek-metaalverbindingen worden metalen toegepast met een lage uitzettingscoëfficiënt, zoals molybdeen. Zeer geschikt zijn ook de ijzer-nikkel-legeringen die in het temperatuurgebied tot 600°C een lage uitzetting vertonen.
Bij het gebruik van smeltglazen moet veel aandacht worden besteed aan het ontwerp van de verbinding: spanningsopbouw moet worden vermeden of door de constructie worden opgevangen.

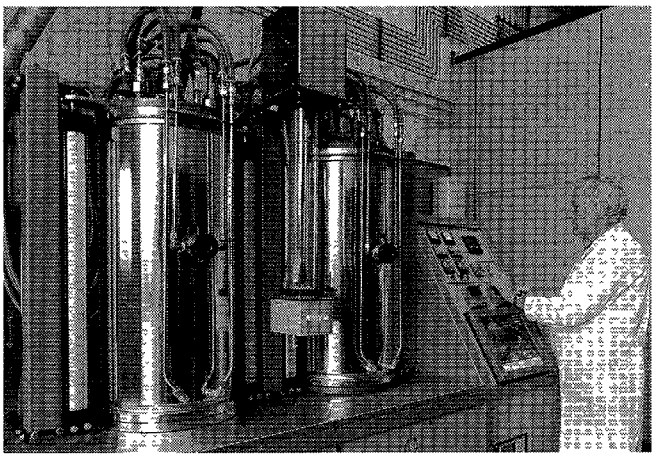
Verbindingen met metallische tussenlagen

Er kunnen sterke verbindingen worden gemaakt door gebruik te maken van metallische tussenlagen. Hierbij treden op het grensvlak keramiek-metaal reacties op tussen de verschillende componenten; deze zorgen voor een hechte binding.
Bij de oudste in zwang zijnde techniek worden de keramische onderdelen van te voren gemetalliseerd. Hierna kan met bijvoorbeeld zilver-kopersoldeer worden gesoldeerd.

Om deze omslachtige methode te omzeilen, wordt daarom steeds meer "actief gesoldeerd". Bij deze methode is aan het soldeer een actief element toegevoegd; hierdoor wordt het mogelijk om de verbinding in één stap te realiseren. De metallische tussenlaag (het soldeermateriaal) wordt door verwarming vloeibaar gemaakt. Bij twee andere methoden is dit niet het geval, namelijk bij diffusieverbinden en bij thermocompressie. Deze methoden worden kort behandeld in de laatste paragraaf.

Samenstelling	Vorm	Smelt-traject (°C)	Soldeer-temperatuur (°C)	Atmosfeer
67,1Ag – 26,5Cu – 6,4Ti	pasta		840-960	Vacuüm
72,5Ag – 19,5Cu – 3Ti – 5In	folie	730-760	850-950	Vacuüm
96Ag – 4Ti	folie	970	1000-1050	Inert gas
70,5Ag – 26,5Cu – 3Ti	folie	780-805	850-950	Vacuüm
64Ag – 34,5Cu – 1,5Ti	folie	770-810	850-950	Vacuüm

Tabel 3. Enkele actieve zilverbasis-soldeersoorten.



Figuur 3. Twee-kamer oven bij ECN die zowel geschikt is voor het metalliseren in reducerend milieu als voor het solderen in hoogvacuüm (beiden tot 1750°).

Solderen met metallisatie vooraf

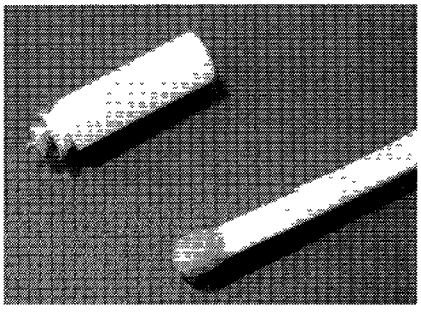
Als er in dit artikel sprake is van solderen, zal daarmee telkens het hogetemperatuursolderen worden bedoeld. Kenmerkend voor dit proces is het ontbreken van een vloeimiddel ("flux") doordat het solderen in een beheerste atmosfeer plaatsvindt. Hierbij wordt van een hoge temperatuur gebruik gemaakt (boven 800°C) omdat dan bij de te verbinden metalen de oxydehuid vaak relatief eenvoudig verbroken kan worden. Dit is belangrijk omdat oxyden in de regel remmend werken op de bevochtiging. Het soldeermateriaal kan dan wel tot smelten worden gebracht, maar het zal niet uitvloeien (vergelijk het niet-bevochtigen van een glasplaat door een druppel kwik).

Uit het bovenstaande zou de conclusie kunnen worden getrokken dat aluminiumoxyde niet te solderen is: immers, dit bestaat volledig uit een oxyde en het zal dus niet bevochtigd worden. Dit is in het algemeen juist. Daarom zal het oppervlak van het keramiek een speciale behandeling moeten ondergaan: de metallisatie.

Al voor de tweede wereldoorlog werd aluminiumoxyde gemetalliseerd volgens het mangaan-molybdeenprocede [7]. Hierbij wordt op het keramiek een pasta aangebracht die bestaat uit mangaan, molybdeen en een bindmiddel. Bij 1500°C wordt in een natte stikstof-waterstofatmosfeer een hechte binding gevormd tussen mangaan, molybdeen en aluminiumoxyde (het bindmiddel is uitgestookt). Hierop kan echter nog niet worden gesoldeerd. In een tweede processtap wordt langs galvanische weg een dunne laag nikkel neergeslagen (ordegrootte 10 μm). Deze laag wordt bij 800 tot 1000°C in vacuüm ingestookt. Hierdoor wordt de hechting van de nikkellaag verbeterd; tevens is deze behandeling een controle op de hechting van de nikkellaag (slechte lagen bladderen er vaak af). Tenslotte kan met bijvoorbeeld zilver-kopersoldeer bij circa 820°C worden gesoldeerd.

Er zijn inmiddels metalliseerpasta's op de markt gekomen die bij lagere of hogere temperaturen ingezet kunnen worden. Het voordeel van de eerste ligt in het gebruik van goedkopere ovens. De tweede soort maakt het solderen bij hogere temperaturen mogelijk; daarvoor is dan wel een speciale oveninstallatie nodig, zoals bijvoorbeeld is weergegeven in figuur 3.

Het aanbrengen van metallisatiepasta kan gebeuren door middel van zeefdrukken, door verspuiten of door gebruik te maken van een penseel. Vooral bij de laatste methode is het lastig om een uniforme laagdikte in het gewenste diktebereik (10 tot 50 μm) te realiseren.



Figuur 4. Verbinding van aluminiumoxyde aan een ijzer-nikkel-kobaltlegering met behulp van een actief soldeerfolie. Het betreft hier een sensor voor toepassing in de ruimtevaart.

De grootste nadelen van solderen met metallisatie vooraf, liggen in het benodigde aantal processtappen, in het verkrijgen van de juiste laagdikte en in het voorkomen van porositeiten.

Solderen met actief soldeer

Elementen als titaan, zirkonium en hafnium hebben een grote chemische aantrekkingskracht op elementen in het keramiek. Door enkele procenten van bijvoorbeeld titaan toe te voegen aan een soldeermateriaal, kan er direct een verbinding met ondermeer aluminiumoxyde worden gevormd. Het "actieve element" titaan vormt hierbij een TiO-laag op het keramiek. Het gehalte aan actieve elementen moet beperkt blijven tot enkele procenten. Daarboven ontstaan vaak brosse intermetallische verbindingen in het soldeer. Een toepassingsvoorbeeld van een actief gesoldeerd produkt staat in figuur 4.

Enkele voorbeelden van commerciëel verkrijgbare actieve soldeersoorten staan in tabel 3; het betreft hier de veel toegepaste zilverbasis-soldeersoorten. De meeste typen worden geleverd in folievorm; in pastavorm is de keuze beperkt. Foliesoldeer heeft het voordeel dat de dikteverdeling homogeen is. Pasta is moeilijk homogeen op te brengen; een voordeel ten opzichte van folie is dat ook complex gevormde vlakken met soldeer bedekt kunnen worden.

Het gebruik van actieve soldeermaterialen beperkt zich niet tot het solderen van aluminiumoxyde. Ook met zirkoniumoxyde, sialon, siliciumnitride en siliciumcarbide kunnen verbindingen worden gevormd. De relatief goedkope reactiegebonden typen siliciumcarbide en siliciumnitride zijn minder goed soldeerbaar dan de heet geperste of de heet isostatisch geperste varianten. Dit heeft te maken met de aanwezigheid van vrij silicium, waarmee titaan brosse silicaten vormt.

Bij het maken van keramiek-metaalverbindingen speelt het verschil in thermische uitzettingscoëfficiënt een grote rol; zie hiervoor het hoofdstuk "Constructieve aspecten in verband met temperatuurverhogingen".

Door Van der Sluis en Kaasschieter [8] wordt melding gemaakt van een ver-

Het verbinden van keramiek aan staal

Keramiek	Pastasoldeer 67,1Ag-26,5Cu-6,4Ti (MPa)	Foliesoldeer 71Ag-27Cu-2Ti (MPa)
Al_2O_3 99,7	34	38
Si_3N_4 (HP)	45	34
Syalon 201	70	60

Tabel 4. Treksterkte van roestvaststaal AISI 316L aan technische keramiek [8].

binding tussen een plaatje roestvaststaal en keramiek; het plaatje had een dikte van 1 mm en een breedte van 25 mm. Er werd gebruik gemaakt van twee actieve soldeermaterialen, een pasta- en een foliesoldeer. Het plaatje werd kops aan een stuk keramiek bevestigd (verbindingsvlak 25 x 1 mm). In tabel 4 staan de gemiddelde treksterkten van duploproeven vermeld. De tabel dient alleen als indicatie voor te behalen sterkten omdat er geen sprake was van een genormeerde trekproef.

Overige technieken

In deze paragraaf komt met name diffusieverbinden aan de orde. Voor diverse andere, vaak produktspecifieke technieken wordt verwezen naar M.M.Schwartz [9] en Nicholas [10].

● *Diffusieverbinden*

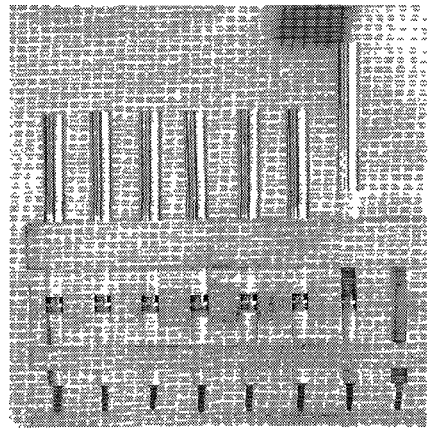
Bij diffusieverbinden wordt een verbinding tussen twee materialen gerealiseerd door deze met de grensvlakken op elkaar te drukken en vervolgens de temperatuur te verhogen. Tussen de twee materialen kan uitwisseling van atomen plaatsvinden door middel van diverse diffusieprocessen. Omdat de grensvlakken op microniveau altijd verre van vlak zijn, zullen er in het begin van het verbindingsproces diverse holten aanwezig zijn. Door plastische vervorming, kruip en diffusie verdwijnen deze holten na verloop van tijd. Door de uitwisseling van atomen zullen er in het grensvlak vaak chemische verbindingen ontstaan. De verbindingssterkte zal hierdoor lokaal veelal toenemen. Echter, doordat intermetallische verbindingen vaak bros zijn, kan het effect op de macroscopische verbindingsterkte negatief uitvallen.

In tegenstelling tot hetgeen bij solderen gebruikelijk is worden bij diffusieverbinden alleen stompe verbindingen toegepast. Een voordeel van diffusieverbinden boven solderen is, dat er in principe een hogere toepassingstemperatuur te bereiken is. Daar staat ook een aantal nadelen tegenover:

– Een belangrijk nadeel is de gevoeligheid van de verbinding voor mechanische spanningen in het grensvlak, zoals die onder meer ontstaan bij verschillen in thermische uitzetting. Daarom zal er bij keramiek-metaalverbindingen vrijwel altijd met een metallische tussenlaag moeten worden gewerkt; deze kan de spanningen opvangen. Hierbij kan worden gedacht aan zilver, koper, nikkel, molybdeen en fernico.

– De vorming van brosse intermetallische fasen maakt soms het aanbrengen van extra metaallagen noodzakelijk; deze dienen als barrièrelaag tegen de diffusie van bijvoorbeeld silicium uit siliciumnitride en siliciumcarbide. Bij niet-oxydische keramieken veroorzaakt dit verschijnsel vaak meer problemen dan bij de oxydische soorten.

– De voorbewerking van de oppervlakken vereist ook bij deze techniek de nodige aandacht; zo zullen de te verbinden oppervlakken vlak en glad moeten zijn. Het keramiekdeel zal daarom gelept of gepolijst moeten worden.



Solderen van een aantal sensoren (als figuur 4). De sensor zit aan de onderkant. Op elke sensor komt een aandrukgewicht.

De in te stellen procesparameters zijn de contactdruk, de temperatuur, de aandruktijd en de atmosfeer. De druk wordt zo hoog gekozen dat de oppervlakken goed contact met elkaar maken, terwijl de produkten niet sterk plastisch deformeren; de waarde ligt vaak in het gebied van 0,1 tot 10 MPa. De temperatuur ligt vaak op 60 tot 90 procent van de smelttemperatuur (Kelvin) van het laagst smeltende metaal (veelal de tussenlaag). Procestijden kunnen erg uiteenlopen, namelijk van enkele minuten tot een dag. De korte procestijden worden meestal gecombineerd met hoge temperaturen en hoge drukken. Het diffusieverbinden vindt plaats in vacuüm of in licht reducerend milieu (bijvoorbeeld Ar-5%H_2); gewone lucht wordt soms toegepast bij oxydische keramiek, bijvoorbeeld in combinatie met platina.

Veel toepassingen voor diffusieverbinden zijn ontwikkeld voor aluminiumoxyde aan metaal. Metelkin [11] noemt al in 1967 geslaagde verbindingen tussen Al_2O_3-99,5 enerzijds en roestvaststaal, laaggelegeerd staal, fernico, nikkel en titaan anderzijds. Het betreft hier feitelijk keramiek-keramiekverbindingen met een dunne metalen tussenlaag (0,3-0,5 mm). Een vierpuntsbuigproef aan het cilindrische proefstuk (∅13 mm) met een roestvaststalen tussenlaag geeft een buigsterkte van circa 200 MPa. Deze verbinding is gevormd bij 1250-1300°C in vacuüm; de contactdruk bedraagt 0,16 MPa en de procestijd is tien minuten.

Het diffusieverbinden van niet-oxydische keramieken zoals siliciumnitride en siliciumcarbide geeft veel problemen door de diffusie van silicium. Onderzoek naar het verbinden van Si_3N_4 aan roestvaststaal AISI 316 zonder tussenlaag levert een afschuifsterkte op van 37 MPa; met een Invar-tussenlaag wordt een maximum afschuifsterkte van 76 MPa behaald door Stoop [12]. Het verbinden van SiC aan AISI 316 lukt niet zonder tussenlaag, maar ook niet met tussenlagen van koper of nikkel. Uiteindelijk wordt met een tussenlaag van Cu-5%Ni een gemiddelde afschuifsterkte van 17 MPa behaald door Krugers [13]. Diffusieverbinden lijkt een veelbelovende techniek die al met succes is toegepast in verschillende verbindingen.

Om de techniek algemeen toepasbaar te maken voor het verbinden van keramiek aan metaal, is echter nog veel onderzoek nodig.

• *Thermocompressie*
Thermocompressie is sterk verwant aan diffusieverbinden. De techniek kenmerkt zich door het toepassen van relatief korte procestijden (minuten tot uren) en het gebruik van een ductiele tussenlaag die plastisch wordt vervormd. Als tussenlaag wordt meestal aluminium genomen, maar er kan ook worden gedacht aan lood en indium (lager smeltpunt) of aan zilver en goud (hoger smeltpunt). Als temperatuur wordt vaak meer dan 90 procent van de smelttemperatuur van de tussenlaag aangehouden.
Een verbinding van roestvaststaal AISI 321 aan aluminiumoxyde met een 0,5 mm dikke aluminium tussenlaag wordt beschreven door Nicholas en Crispin [14]. De meeste proeven worden uitgevoerd in vacuüm (10^{-4} tot 10^{5-} mbar). Bij een temperatuur van 625°C, een contactdruk van 50 MPa en een procestijd van dertig minuten wordt een treksterkte van circa 40 MPa verkregen.
Het gebruik van aluminium als tussenlaag impliceert dat de gevormde verbinding beperkt temperatuurbestand is en dat de corrosieweerstand evenmin erg groot zal zijn.

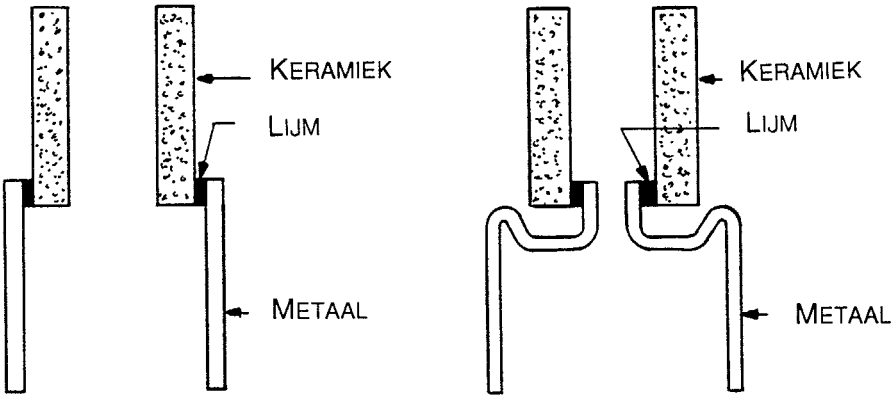
Constructieve aspecten in verband met temperatuurverhogingen

Keramiek-metaalverbindingen worden in een aantal gevallen blootgesteld aan verhoogde temperaturen. Hierbij zal rekeningen moeten worden gehouden met verschillen in uitzettingsgedrag tussen metaal en keramiek.
In het geval van (thermisch) klemmen wordt van dit uitzettingsverschil juist gebruik gemaakt om een verbinding te realiseren; de verbinding is overigens alleen geschikt om in de buurt van kamertemperatuur gebruikt te worden.
In het geval van anorganische lijmverbindingen dient de verbinding juist op hoge temperatuur toegepast te worden. En tenslotte is in het geval van solderen en diffusieverbinden een verhoogde temperatuur juist nodig om de verbinding tot stand te laten komen.

• Bij *lijmen* is het belangrijk dat de dikte van de lijmlaag goed is ingesteld op de gebruikstemperatuur van de verbinding. De gewenste dikte ligt vaak in het bereik van 0,05 tot 0,2 mm. Bij een kleinere dikte wordt de krachtverdeling over de keramiekkorrels minder uniform; bij grotere dikte wordt de laag op eigensterkte belast. In het algemeen moet ervoor worden gezorgd dat de lijmlaag onder drukspanning staat. Dit houdt in dat bij anorganische lijmen die bij hoge temperatuur worden toegepast, het keramiek (met lage uitzettingscoëfficiënt) aan de buitenzijde van de verbinding wordt aangebracht. Een voorbeeld van een dergelijke constructie toont figuur 5; door het omvormen van de metalen buis is de constructie bovendien beter bestand geworden tegen mechanische schokken. Als de verbinding op kamertemperatuur wordt toegepast en het lijmen bij verhoogde temperatuur plaatsvindt, is het verstandig om het keramiek nu aan de binnenzijde te plaatsen.

• Bij *solderen* moet erop gelet worden dat de in te stellen soldeerspleet de juiste breedte heeft op soldeertemperatuur, omdat anders de capillaire werking van de spleet niet kan functioneren. Evenals bij lijmlagen het geval is, mag de soldeerlaag niet op trek worden belast. Ook moet ervoor gezorgd worden dat het keramiek onder drukspanning komt te staan. In het algemeen zal daarom bij keramiek-metaalconstructies worden geprobeerd om het metaal aan de buitenzijde van een constructie aan te brengen.

• Bij *diffusieverbinden* is in de regel sprake van stompe verbindingen. Het is hierdoor meestal niet mogelijk om in het keramiek een drukbelasting aan te brengen. Voor het opvangen van spanningen moeten een of meer ductiele tussenlagen worden toegepast.



Figuur 5. Voorbeeld van twee buisverbindingen van keramiek aan metaal. Het linkerontwerp is ongeschikt voor gebruik bij verhoogde temperatuur, doordat dan een trekspanning in de lijmlaag ontstaat. Het rechterontwerp kan beter tegen temperatuurverhoging en is bovendien meer schokbestand; vrij naar H.Schwartz [6].

Literatuur
[1] Hoogtemperatuursolderen (VM 82), Vereniging FME, Zoetermeer, 1992
[2] G Spur, Keramik bearbeitung, Carl Hanser Verlag, Munchen, Wien 1989
[3] J Fernie en A Sturgeon, Joining ceramic materials, Ceramic Technology International 1993 — I Birkby (ed), Sterling Publications Limited, Hong Kong, p 183-186
[4] Lijmen algemeen (VM 86), Vereniging FME, Zoetermeer, 1991
[5] Lijmen van metalen (VM 87), Vereniging FME, Zoetermeer, 1991
[6] H Schwartz, Ceramic Adhesives for High-Temperature Bonding, Conf Adhesives 1986, Baltimore, Maryland, Uitgave AD86-865, SME, Dearborn, Michigan
[7] H Schellekens en J Kamans, Actief solderen van metaalkeramiekverbindingen een praktijkvoorbeeld, Voorlichtingsdag Hoogtemperatuursolderen van Hoogwaardigen Materialen, oktober 1992, Ned Instituut voor Lastechniek, Voorschoten
[8] H H van der Sluis en C C J Kaasschieter, Actief solderen van technische keramiek, Voorlichtingsdag Hoogtemperatuursolderen van Hoogwaardigen Materialen, oktober 1992, Ned Instituut voor Lastechniek, Voorschoten
[9] M M Schwartz, Ceramic Joining, ASM International, Ohio, USA 1990
[10] M G Nicholas (ed), Joining of Ceramics, Chapman and Hall, Londen 1990
[11] J J Metelkin e a , Welding together ceramics and metals, Welding Prod , 14(1967)6, p 10-12
[12] B T J Stoop, Diffusion bonding of silicon nitride to austenitic stainless steel, Proefschrift T U Delft 1992
[13] J P H M Krugers, Joining silicon carbide to austenitic stainless steel through diffusion welding, Proefschrift T U Delft 1993
[14] M G Nicholas and R M Crispin, Diffusion bonding stainless steel to alumina using aluminium interlayers, J Mat Sci 17 (1982) p 3347-3360

Auteursnoot
De auteur, ir K M Broek is werkzaam bij de unit ECN-Technologie van het Energieonderzoek Centrum Nederland te Petten