



(19)
Bundesrepublik Deutschland
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 601 19 695 T2** 2006.09.21

(12)

Übersetzung der europäischen Patentschrift

(97) **EP 1 257 383 B1**

(21) Deutsches Aktenzeichen: **601 19 695.3**

(86) PCT-Aktenzeichen: **PCT/FI01/00169**

(96) Europäisches Aktenzeichen: **01 911 788.6**

(87) PCT-Veröffentlichungs-Nr.: **WO 2001/062432**

(86) PCT-Anmeldetag: **21.02.2001**

(87) Veröffentlichungstag
der PCT-Anmeldung: **30.08.2001**

(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: **20.11.2002**

(97) Veröffentlichungstag
der Patenterteilung beim EPA: **17.05.2006**

(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: **21.09.2006**

(51) Int Cl.⁸: **B23K 35/00** (2006.01)

B23K 20/16 (2006.01)

B23K 1/20 (2006.01)

(30) Unionspriorität:

20000409 23.02.2000 FI

(73) Patentinhaber:

Outokumpu Technology Oy, Espoo, FI

(74) Vertreter:

Zipse & Habersack, 80639 München

(84) Benannte Vertragsstaaten:

**AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT,
LI, LU, MC, NL, PT, SE, TR**

(72) Erfinder:

**POLVI, Veikko, FIN-28200 Pori, FI; TASKINEN,
Pekka, FIN-28220 Pori, FI; SUORTTI, Tuija,
FIN-28200 Pori, FI**

(54) Bezeichnung: **VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG EINER VERBINDUNG ZWISCHEN KUPFER UND ROSTFREIEM STAHL**

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99 (1) Europäisches Patentübereinkommen).

Die Übersetzung ist gemäß Artikel II § 3 Abs. 1 IntPatÜG 1991 vom Patentinhaber eingereicht worden. Sie wurde vom Deutschen Patent- und Markenamt inhaltlich nicht geprüft.

Beschreibung

[0001] Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren gemäß dem Oberbegriff von Anspruch 1.

[0002] Im Stand der Technik sind mehrere verschiedene Verfahren zur Herstellung von Verbindungen zwischen rostfreiem Stahl und Kupfer bekannt. Beim Zusammenfügen von Kupfer und rostfreiem Stahl müssen mehrere Faktoren in Betracht gezogen werden, wie u.a. die verschiedenen Festigkeiten der Materialien bei hohen Temperaturen oder ihre Unterschiede in der thermischen Leitfähigkeit, der thermischen Ausdehnung oder ihren Schmelztemperaturen. Bei den Verbindungsverfahren, wie beispielsweise dem Weichlöten, Hartlöten oder Schweißen, werden Probleme durch die sogenannte Löt-Versprödung hervorgerufen, was eine Durchdringung von Kupfer in einer Diffusions-Verbindung an die Korngrenzen vom Stahl bedeutet, was die Verbindung beträchtlich spröde werden lässt. Das US-Patent 4,194,672 offenbart ein Verfahren zum Verbinden von Kupfer und rostfreiem Stahl durch Diffusionsschweißen. In diesem Verfahren wird eine dünne Schicht aus Nickel, aus Nickellegierungen, Chrom, Ni + Cr oder Cr + Ni zwischen den Verbindungsoberflächen der zusammenzufügenden Stücke verwendet, um zu verhindern, dass Kupfer an die Korngrenzen des rostfreien Stahls diffundiert, und um eine Adhäsion zu verbessern. Die Verbindung wird mittels Diffusionsschweißen bei einer Temperatur von 850°–950°C erhalten. Das Verfahren erfordert eine relativ hohe Temperatur und eine lange Zeitdauer einer thermischen Behandlung, um die Verbindung zu schaffen. Ferner ist die Festigkeit der durch dieses Verfahren erhaltenen Verbindung begrenzt. Das US-Patent 5,664,723 schlägt eine Löttechnik vor, bei der ein Stück Kupfer mit einem Metall oder einem Keramikmaterial verbunden wird. Die in dieser Veröffentlichung aufgezeigte Verbindung von Kupfer und rostfreiem Stahl wird unter Verwendung einer extrem dünnen Nickelschicht als Diffusionsbarriere auf der Stahloberfläche bewerkstelligt, wobei zusätzlich eine Zinnschicht als Lötmedium auf der Kupferfläche verwendet wird. Die Stücke werden zusammengeführt und in zwei Schritten erwärmt, zunächst auf 400°C für die Dauer von einer Stunde und nachfolgend zusätzlich auf 800°C für die Dauer von 20 Minuten. Das angewendete Verfahren erfordert damit eine relativ lange Erwärmzeit in zwei Schritten.

[0003] Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es, ein Verfahren zur Herstellung einer Verbindung zu realisieren, wobei die bekannten Nachteile von Lösungen im Stand der Technik vermieden sind.

[0004] Eine weitere Aufgabe der Erfindung ist es, eine Verbindung zu realisieren, die gut elektrisch leitfähige Kapazitäten selbst unter korrosiven Bedingungen einer extensiven Dauer aufrecht erhält. Eine wei-

tere Aufgabe der Erfindung ist es, eine Verbindung zu realisieren, die einen guten Widerstand bei hohen Temperaturen hat.

[0005] Die Erfindung ist durch die beigefügten Ansprüche im Einzelnen gekennzeichnet.

[0006] Das erfindungsgemäße Verfahren ist hauptsächlich dadurch gekennzeichnet, dass eine erste Zwischenschicht auf die Verbindungsfläche des Stahlobjekts oder gegen diese Oberfläche gebracht wird, hauptsächlich um den Nickelverlust von dem Stahlobjekt zu verhindern, und zumindest eine zweite Zwischenschicht auf der Verbindungsoberfläche des Kupferobjekts oder gegen diese Oberfläche eingebracht wird, um die Schaffung einer Diffusionslösung zu aktivieren. Gemäß einer bevorzugten Ausführungsform ist die erste Zwischenschicht aus der folgenden Gruppe gewählt: Nickel (Ni), Chrom (Cr), eine Mischung oder Legierung aus Nickel und Chrom (Ni + Cr), oder eine Mischung aus Chrom und Nickel (Cr + Ni). Gemäß einer bevorzugten Ausführungsform besteht die zweite Zwischenschicht hauptsächlich aus Zinn (Sn).

[0007] Gemäß der Erfindung ist zusätzlich zumindest eine dritte Zwischenschicht zwischen der ersten Zwischenschicht und dem Kupferobjekt angeordnet. Gemäß einer bevorzugten Ausführungsform des Verfahrens sind zumindest eine zweite Zwischenschicht und zumindest eine dritte Zwischenschicht eingebracht, wobei die Schmelztemperatur der zweiten Zwischenschicht niedriger als diejenige der dritten Zwischenschicht ist. Die dritte Zwischenschicht besteht hauptsächlich aus Silber (Ag) oder kann eine Legierung oder eine Mischung aus Silber (Ag) und Kupfer (Cu) sein. Gemäß einer bevorzugten Ausführungsform des Verfahrens wird der Verbindungsbereich in einem Schritt erwärmt.

[0008] Das erfindungsgemäße Verfahren hat verschiedene wichtige Vorteile. Wenn beim Herstellen der Verbindung eine Nickelschicht auf der Stahloberfläche aufgebracht wird, ist es möglich, einen Nickelverlust zu verhindern, der von dem austenitischen rostfreien Stahl in Richtung des Kupfers auftritt und den Stahl spröde werden lassen könnte. Die Schaffung der Verbindung wird mittels einer Lötmittelschicht an der Verbindungsfläche zwischen der Kupferoberfläche und der nickelplattierten Stahlschicht aktiviert. Mittels des Aktivators können niedrigere Verbindungstemperaturen vorgesehen sein, so dass die in dem Verbindungsbereich hervorgerufenen thermischen Belastungen geringer sind. Bei der Verwendung der Zwischenschichten gemäß der Erfindung kann ein einstufiges Erwärmen der Verbindung bei der Schaffung der Verbindung angewendet werden. Mittels der erfindungsgemäßen Einrichtung werden Verbindungen erhalten, die eine bessere Zugfestigkeit im Vergleich zu konventionellen Diffusionsver-

bindungen haben.

[0009] In dieser Anmeldung bezieht sich der Begriff Kupfer neben aus Kupfer gefertigten Objekten auch auf Legierungsmaterialien mit einem Kupfergehalt, der im Wesentlichen mindestens 50% Kupfer umfasst. Der Terminus rostfreier Stahl bezieht sich in dieser Anmeldung hauptsächlich auf austenitische Legierungsstähle, wie beispielsweise rostfreie und säurefeste Stähle.

[0010] Die Erfindung wird nachfolgend in größerem Detail mit Bezug auf die beigelegten Zeichnungen erklärt, in denen

[0011] [Fig. 1](#) die Struktur einer Verbindung vor dem Erwärmungsschritt illustriert,

[0012] [Fig. 2](#) die Struktur einer Verbindung gemäß der Erfindung vor dem Erwärmungsschritt darstellt und

[0013] [Fig. 3](#) die Struktur einer dritten Verbindung gemäß der Erfindung vor dem Erwärmungsschritt zeigt.

[0014] In dem erfindungsgemäßen Verfahren wird eine Verbindung zwischen einem Objekt **1** aus hauptsächlich Kupfer und einem austenitischen rostfreien Stahl **2** hergestellt, in welchem Verfahren mehrere Zwischenschichten zwischen den zu verbindenden Flächen vorgesehen sind, wobei mindestens eine der Zwischenschichten aus einem Lötmetall besteht. Die Flächen werden aneinander gesetzt und zusammengepresst, so dass das Lötmetall zwischen den komprimierten Flächen verbleibt. Wärme wird zumindest an die Verbindungsstelle geführt, so dass eine Diffusionsverbindung geschaffen wird.

[0015] [Fig. 1](#) veranschaulicht eine Ausführungsform eines Verbindungsverfahrens in Querschnitts-Darstellung vor der thermischen Behandlung. Ein im Wesentlichen aus Kupfer bestehendes Objekt **1** und ein weiteres Objekt **2**, das aus austenitischem rostfreien Stahl besteht, werden dabei miteinander verbunden. In der Verbindung zwischen den zwei Objekten sind Zwischenschichten **3**, **4** angeordnet. Die erste gegen den Stahl gesetzte Zwischenschicht **3** umfasst hauptsächlich Nickel (Ni). Zusätzlich wird bei der Herstellung der Verbindung auch eine zweite Zwischenschicht **4**, d.h. eine sogenannte Aktivierungsschicht verwendet, die in dem Fall dieses Beispiels exemplarisch aus Zinn (Sn) ist. Zinn funktioniert als der Aktivator und führt zu einer Herabsetzung der Temperatur, die zur Schaffung der Verbindung erforderlich ist.

[0016] Die erste Zwischenschicht **3** kann auf der Fläche des rostfreien Stahls mittels einer separaten Behandlung gefertigt sein. Wenn Nickel als die erste

Zwischenschicht **3** verwendet wird, kann diese Schicht auf der Oberfläche des rostfreien Stahls beispielsweise mittels einer Elektrolyse geschaffen werden. Eine Nickelbeschichtung wird typischerweise so ausgeführt, dass die auf der Oberfläche des rostfreien Stahls vorgesehene Passivierungsschicht kein Hindernis für den Materialtransfer auf der Verbindungsfläche zwischen rostfreiem Stahl und Nickel darstellt. Die erste Zwischenschicht **3** kann auch in der Form einer Folie existieren.

[0017] Beim Erwärmen des Verbindungsbereichs wird eine Diffusionsverbindung auf den Oberflächen der miteinander zu verbindenden Objekte geschaffen; dies erfolgt einerseits als Folge der Nickeldiffusion und andererseits aus der jeweiligen Diffusion der Kupfer- und Stahlkomponente. Die Herstellung der Diffusionsverbindung und die darin geschaffenen Strukturen werden mittels einer extrem dünnen zweiten Zwischenschicht **4** aktiviert, die durch die angewendeten Herstellungsbedingungen und die gewünschte Verbindung erforderlich ist, d.h. die Lötmitelschicht, oder mittels einer Mischung mehrerer Zwischenschichten **4**, **5**, die auf der Verbindungsfläche zwischen dem nickelplattierten Stahlobjekt **2** und dem Kupferobjekt **1** angeordnet sind.

[0018] Die eingesetzten Lötmetalle der Zwischenschichten **4**, **5** wie auch die diffusionsaktivierenden Mittel können Silber-Kupfer-Legierungen und Zinn als reine Stoffe oder spezielle Schichtstrukturen sein. Mechanisch feste Verbindungen werden in einem Temperaturbereich von 600°C–800°C erhalten. Die Wahl der thermischen Behandlungs-Perioden kann derart ausgeführt werden, dass die Schaffung von spröden intermetallischen Phasen in der letztendlichen Verbindung vermieden ist. Die Lötmetall-Dicken wie auch die thermische Behandlungstemperatur und -dauer werden so gewählt, dass der Nickelverlust vom Stahl als Folge der Legierung mit einem hohen Nickelgehalt vermieden wird, der auf der betreffenden Oberfläche vorgesehen ist. Ein Vorteil einer niedrigen Verbindungstemperatur liegt darin, dass die in dem Verbindungsbereich geschaffenen thermischen Belastungen minimal sind.

[0019] [Fig. 2](#) zeigt eine bevorzugte Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verbindungsverfahrens vor der thermischen Behandlung. Ein im Wesentlichen aus Kupfer bestehendes Objekt **1** und ein weiteres, aus austenitischem rostfreien Stahl bestehendes Objekt **2** werden hierbei zusammengefügt. In der Verbindung zwischen den zwei Objekten sind mehrere Zwischenschichten **3**, **4**, **5** angeordnet. Die erste gegen den Stahl platzierte Zwischenschicht **3** umfasst hauptsächlich Nickel (Ni). Zusätzlich wird bei der Herstellung der Verbindung auch eine zweite Zwischenschicht **4** verwendet, d.h. ein sogenanntes Aktivierungsmittel, das im vorliegenden Fall beispielhaft Zinn (Sn) ist. Zinn funktioniert als ein Aktivator beim

Herstellen der Verbindung und führt zu einem Herabsetzen der Temperatur, die zur Schaffung der Verbindung erforderlich ist. Zusätzlich zu der Zinnschicht umfasst die Verbindung zwischen der Zinnschicht **4** und der Nickelschicht **3** eine dritte Zwischenschicht **5**, die vorteilhafterweise aus einem anderen Lötmetall besteht. In einer bevorzugten Ausführungsform ist dies ein Ag + Cu-Lötmetall, vorteilhafterweise in der Form einer Folie. Gemäß einer bevorzugten Ausführungsform weist das zweite Lötmetall 71% Ag und 29% Cu in Gewichtsprozent auf. Vorteilhafterweise zeigt das Lötmetall mit einer vorgegebenen Legierungszusammensetzung eine eutektische Zusammensetzung mit Kupfer.

[0020] **Fig. 3** zeigt eine weitere Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens vor dem Erwärmen der Verbindung. Hier ist eine zweite Zwischenschicht **4** auf beiden Flächen der dritten Zwischenschicht **5** vorgesehen, bzw. gegen diese Flächen. In dieser Ausführungsform kann typischerweise eine Schichtfolie verwendet werden, wobei eine oder beide Flächen der Folie beispielsweise mit Zinn behandelt sind.

[0021] Die Dicken der in dem Verfahren verwendeten Zwischenschichten können variieren. Die Dicke der als erste Zwischenschicht eingesetzten Ni-Schicht ist typischerweise 2–50 µm. Nach einer Elektrolyse ist diese typischerweise 2–10 µm als eine Folie der Größenordnung 20–50 µm. Die Dicke der als dritten Zwischenschicht eingesetzten Ag- oder Ag + Cu-Folie ist typischerweise 10–500 µm, vorzugsweise 20–100 µm. Die Dicke der zweiten Zwischenschicht **4** ist typischerweise von der Dicke der dritten Zwischenschicht **5** abhängig und beträgt beispielsweise 10–50% der Dicke der dritten Zwischenschicht. Äußerst hoch qualitative Verbindungen sind durch Verwendung einer beispielsweise 5–10 µm dicken Zinnschicht auf den Flächen einer 50 µm dicken Ag + Cu-Lötmetallfolie erzielt worden. Die Zinnschichten können beispielsweise durch Eintauchen des in der Form einer Folie vorliegenden Lötmetalls in geschmolzenes Zinn gebildet werden, wobei nach Bedarf nachfolgend ein Walzen der Folie zum Glätten erfolgen kann.

Beispiel 1

[0022] Säurefester Stahl (AISI 316) und Kupfer (Cu) wurden zusammengefügt. Auf der Stahlverbindungsfläche wurde als eine erste Zwischenschicht eine Nickel(Ni)-Schicht mit der Dicke von 7 µm vorgesehen. Als ein Diffusionsaktivator und Lötmetall wurde ein Ag + Cu-Lötmetall mit einer eutektischen Zusammensetzung verwendet, die 71% Ag und 29% Cu in Gewichtsprozent aufwies. Das Lötmetall lag in der Form einer Folie mit der Dicke von 50 µm vor, wobei auf der Folienfläche ebenso eine Zinn(Sn)-Schicht mit einer Dicke im Größenbereich von 5–10 µm gebildet wur-

de. Die zu verbindenden Objekte wurden aneinander platziert, so dass die Folie zwischen den Verbindungsflächen verblieb. Die Objekte wurden zusammengepresst, und der Verbindungsbereich wurde auf eine über der Schmelztemperatur des Lötmetalls liegende Temperatur von ca. 800°C erwärmt. Die Dauer betrug ca. 10 Min. Die Verbindung gemäß diesem Beispiel war äußerst erfolgreich.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung einer Verbindung zwischen Kupfer oder Kupferlegierungen und Legierungen aus austenitischem Stahl, in welchem Verfahren zwischen den Verbindungsflächen der zusammenzufügenden Objekte mindestens eine Zwischenschicht angeordnet ist, so dass die Verbindungsflächen einschließlich ihrer Zwischenschichten zusammengepresst werden, und wobei zumindest der Verbindungsbereich zur Schaffung einer Diffusionsverbindung erwärmt wird, wobei eine erste Zwischenschicht (**3**) auf die Verbindungsfläche des Stahlobjekts (**2**) oder gegen diese Oberfläche gebracht wird, hauptsächlich um den Nickelverlust von dem Stahlobjekt (**2**) zu verhindern, und wobei zumindest eine zweite Zwischenschicht (**4**) auf die Verbindungsfläche des Kupferobjekts (**1**) oder gegen diese Fläche gebracht wird, um die Schaffung einer Diffusionsverbindung zu aktivieren, **dadurch gekennzeichnet**, dass zumindest eine dritte Zwischenschicht (**5**) zwischen der ersten Zwischenschicht (**3**) und dem Kupferobjekt (**1**) angeordnet wird, welche dritte Zwischenschicht im Wesentlichen aus Silber (Ag) oder aus Silber (Ag) und Kupfer (Cu) sowohl als eine Legierung oder in einer Mischung davon besteht.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die erste Zwischenschicht (**3**) aus der folgenden Gruppe ausgewählt ist: Nickel (Ni), Chrom (Cr), eine Mischung oder eine Legierung aus Nickel und Chrom (Ni + Cr), eine Mischung aus Chrom und Nickel (Cr + Ni).

3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass die zweite Zwischenschicht (**4**) im Wesentlichen aus Zinn (Sn) besteht.

4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1–3, dadurch gekennzeichnet, dass zumindest eine zweite Zwischenschicht (**4**) und mindestens eine dritte Zwischenschicht (**5**) aufgebracht werden, und dass die Schmelztemperatur der zweiten Zwischenschicht (**4**) niedriger ist die Schmelztemperatur der dritten Zwischenschicht (**5**) als.

5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1–4, dadurch gekennzeichnet, dass der Verbindungsbereich in einem Schritt erwärmt wird.

6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1–5, da-

durch gekennzeichnet, dass der Verbindungsbereich auf eine Temperatur von 600°–850°C erwärmt wird.

7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1–6, dadurch gekennzeichnet, dass die Dicke der ersten Zwischenschicht **(3)** ca. 2–50 µm beträgt.

8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1–7, dadurch gekennzeichnet, dass die Dicke der dritten Zwischenschicht **(5)** ca. 10–500 µm beträgt.

9. Verfahren nach einem der Ansprüche 1–8, dadurch gekennzeichnet, dass die zweite Zwischenschicht **(4)** auf die Fläche der dritten Zwischenschicht **(5)** gebracht wird.

10. Verfahren nach einem der Ansprüche 1–9, dadurch gekennzeichnet, dass zumindest eine der Zwischenschichten **(3, 4, 5)** an den Verbindungsbereich in der Form einer Folie gebracht wird.

Es folgt ein Blatt Zeichnungen

Anhängende Zeichnungen

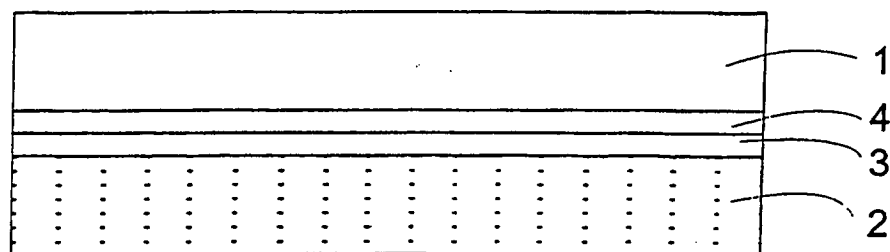


Fig. 1

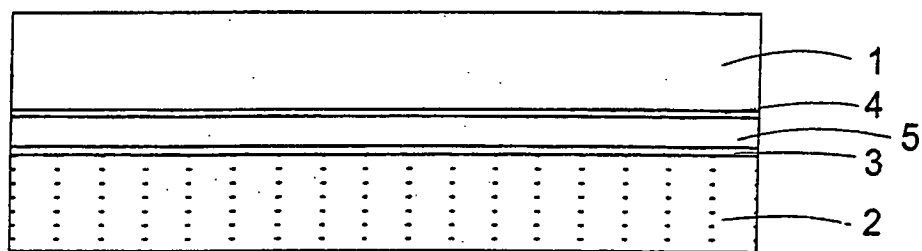


Fig. 2

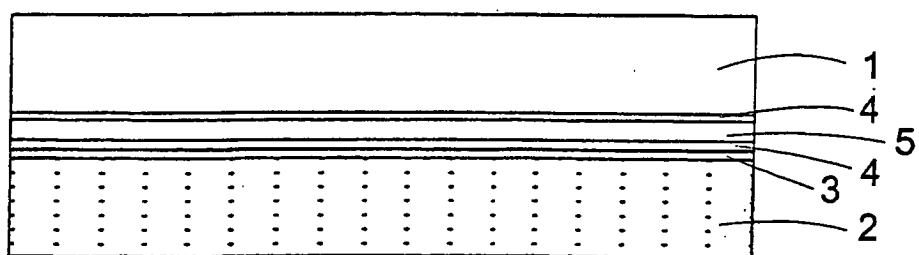


Fig. 3