

DOI: 10.7512/j.issn.1001-2303.2025.04.06

# SPS 工艺下 Ti 中间层连接 SiC 陶瓷的接头组织与强度研究

胡伟钦, 谢 悠, 徐芯茹, 谭瑞轩\*, 杨腾飞

湖南大学 材料科学与工程学院, 湖南 长沙 410082

**摘 要:** 采用 20  $\mu\text{m}$  高纯 Ti 膜作为中间层, 常压烧结 SiC 陶瓷作为基材, 利用放电等离子工艺 (SPS) 进行扩散连接。借助扫描电子显微镜、电子能谱、剪切试验、透射电子显微镜和 X 射线衍射仪等手段探究了不同保温时间 (5 min、10 min 和 20 min) 下 SiC 接头的微观组织和力学性能。研究发现, SiC 接头平均剪切强度与保温时间存在一定关联, 随着保温时间的延长, 剪切强度呈上升趋势。保温 5 min 的接头平均剪切强度为 51.57 MPa, 保温 10 min 后提高至 54.83 MPa, 保温 20 min 时达到 58.65 MPa。得益于牢固的界面结合, 接头剪切断裂主要发生在基材。微观组织表征结果显示, SiC 接头界面结合质量较高, 不同保温时间的中间层结构类似, 各个位置的中间层厚度均匀。接头的主要相组成为  $\text{Ti}_3\text{SiC}_2$ 、TiC 和  $\text{Ti}_5\text{Si}_3$ 。随着保温时间的延长,  $\text{Ti}_3\text{SiC}_2$  与  $\text{Ti}_5\text{Si}_3$  相含量也增多,  $\text{Ti}_5\text{Si}_3$  相的增加会导致界面裂纹, 而  $\text{Ti}_3\text{SiC}_2$  相的产生则有效提升了接头强度。

**关键词:** SiC 陶瓷; 扩散连接; Ti 中间层; 放电等离子烧结 (SPS); 抗剪切强度

中图分类号: TQ174 文献标识码: A 文章编号: 1001-2303(2025)04-0040-09

## Microstructure and Strength of SiC Ceramic Joints Diffusion Bonded by Sparks Plasma Sintering with the Ti Interlayer

HU Weiqin, XIE You, XU Xinru, TAN Ruixuan\*, YANG Tengfei

School of Materials Science and Engineering, Hunan University, Changsha 410082, China

**Abstract:** In this study, the 20  $\mu\text{m}$  high-purity Ti films were used as the interlayer, and the pressureless-sintered SiC was used as the substrate, for joining of SiC ceramics by the spark plasma sintering. The microstructure and strength of SiC joints under different holding times were investigated by means of scanning electron microscopy, electron energy spectroscopy, shear strength tests, transmission electron microscopy, and X-ray diffractometer. Through shear tests, the shear strengths of the SiC joints bonded under different holding times were compared. There is a certain correlation between the average shear strength of the joints and the holding time. The average shear strength of the joint with a holding time of 5 min was 51.57 MPa. When the holding time was extended to 10 min, the average shear strength of the joint increased to 54.83 MPa. When the holding time was further extended to 20 min, the average shear strength of the joint reached 58.65 MPa. Benefiting from the strong interfacial bonding, the shear fracture of the joint mainly occurred in the substrate. The results of microstructure characterization showed that the interfacial bonding quality of the SiC joint was high. The structures of the interlayer under different holding times were similar, and the thickness of the interlayer at each position was uniform. The main phase components of the joint were  $\text{Ti}_3\text{SiC}_2$ , TiC, and  $\text{Ti}_5\text{Si}_3$ . With the increase of the holding time, the detected contents of  $\text{Ti}_3\text{SiC}_2$  and  $\text{Ti}_5\text{Si}_3$  also increased.

**Keywords:** diffusion bonded; Ti interlayer; silicon carbide; spark plasma sintering; shear strength

收稿日期: 2025-01-13 修回日期: 2025-02-13

基金项目: 国家重点研发计划 (2023YFB3711100); 国家磁约束核聚变能发展研究专项 (2024YFE03150000)

作者简介: 胡伟钦 (2000—), 男, 硕士研究生, 主要从事 SiC 陶瓷及其复合材料的研究。

通讯作者: 谭瑞轩 (1985—), 男, 博士, 副教授, 主要从事热解炭、碳化物及氮化物陶瓷的化学气相沉积机理、功能型涂层和高性能复合材料的研制以及大型、特种化学气相沉积装备的研制及工艺配套等研究。E-mail: trx119@163.com。

引用格式:胡伟钦,谢悠,徐蕊茹,等. SPS工艺下Ti中间层连接SiC陶瓷的接头组织与强度研究[J]. 电焊机, 2025, 55(4): 40–48.

Citation: HU Weiqin, XIE You, XU Xinru, et al. Microstructure and Strength of SiC Ceramic Joints Diffusion Bonded by Sparks Plasma Sintering with the Ti Interlayer[J]. Electric Welding Machine, 2025, 55(4): 40–48.

## 0 引言

碳化硅(SiC)基陶瓷作为一种高性能的结构陶瓷材料,具有高温强度大、抗腐蚀性好、耐氧化性能好、抗辐照性能好、中子吸收截面小、热稳定性高以及热膨胀系数小等卓越性能,是极端环境中的理想材料之一<sup>[1-4]</sup>。在核电领域中,SiC陶瓷材料以及连续SiC纤维增强碳化硅基复合材料具有更高的损伤和缺陷容忍度,有望取代锆(Zr)基合金作为轻水反应堆(LWRs)的燃料包壳材料<sup>[5]</sup>。然而,SiC陶瓷包壳管与端塞之间的可靠连接技术一直是其工程应用中的关键瓶颈<sup>[6]</sup>。由于SiC自身具有强共价键和低自扩散系数<sup>[7]</sup>,使得包壳管与端塞之间的有效高强度连接难题长期以来未能得到有效解决。因此,开发一种适用于SiC包壳管与端塞的高效高强度连接技术是SiC陶瓷及其复合材料在极端核能环境中得以应用的关键。

近年来,SiC陶瓷连接技术得到了广泛研究,多种SiC/SiC和SiC/金属连接技术(如固态扩散连接<sup>[8]</sup>、反应连接<sup>[9-10]</sup>、钎焊<sup>[11-13]</sup>、MAX相连接<sup>[13-14]</sup>等)被相继开发。这些连接方法多依赖于传统的热压烧结技术,需要在长时间(>1 h)的高温(>1 500 °C)条件下进行<sup>[15]</sup>。然而,过高的反应温度和过长的烧结时间不仅对设备要求苛刻,还存在尺寸限制,使其难以满足核用SiC包壳管的工程需求。放电等离子烧结工艺(SPS,也称电流场辅助烧结工艺,FAST)是一种先进的中低温烧结工艺,因其升温快、冷却快、烧结时间短等优点被广泛运用,现已成功应用于SiC陶瓷复合材料连接当中<sup>[16]</sup>。与传统的热压烧结相比,SPS工艺通过精确的局部加热能够显著提高界面处的原子扩散速率,为SiC陶瓷的高效连接提供了新的可能性<sup>[17]</sup>。

此外,连接中间层的微观结构、成分与性能是决定SiC陶瓷连接质量的关键因素之一。在极端高温、高压和高辐照环境中,中间层往往成为接头中最薄弱的部分,中间层不仅需要具备抗辐照和耐腐

蚀性能,还必须要考虑在SiC界面的反应性<sup>[18]</sup>。Singh等人<sup>[19]</sup>研究表明,活性金属Ti在SiC衬底上具有优异的浸润性。Rizzo等人<sup>[16]</sup>将C/SiC复合材料与不同厚度(30 μm和130 μm)的Ti膜进行连接,在1 700 °C连接温度、3 min保温时间下,分别得到了剪切强度为27.1 MPa和21.6 MPa的接头。然而,过高的温度(>1500 °C)和使用较厚的Ti膜(>30 μm)会导致残余Ti的过度反应,生成Ti-Si金属相,不利于接头整体力学性能的提升。Yang等人<sup>[21]</sup>在1 000 °C的连接温度下,使用厚度为6 μm的Ti涂层实现了SiC陶瓷的连接,获得了弯曲强度为49.9±38.5 MPa的SiC接头。这些研究表明,连接温度、Ti膜厚度以及保温时间等因素对SiC相关接头的性能有着复杂且关键的影响,不同参数组合下的反应过程和接头性能差异显著,值得深入研究。

本研究中以厚度为20 μm的高纯Ti膜作为连接中间层,利用SPS工艺将常压烧结SiC陶瓷与Ti膜进行了扩散连接。在保持连接温度和压力不变的条件下,系统研究不同保温时间对接头中间层微观结构组织和抗剪切强度的影响,为优化基于纯Ti中间层的SiC陶瓷连接工艺优化提供试验依据。

## 1 试验

### 1.1 原料

采用常压烧结碳化硅片(密度>3.12 g/cm<sup>3</sup>,纯度>99%)作为基材,购自福州鹏鲲光电科技有限公司,尺寸为50 mm×50 mm×8 mm。以高纯Ti膜(纯度为99.99%)作为中间层,购自深圳海源科研金属,厚度为20 μm。

### 1.2 连接前准备

将碳化硅基材加工成尺寸10 mm×10 mm×8 mm的方块。Grasso等人<sup>[20]</sup>研究表明,压力和表面抛光对SPS连接SiC的质量具有关键作用,连接之前,使用金刚石砂纸(目数由低到高分别为2000、4000、8000、9000)对连接表面进行打磨和抛光处理,随后

将其置于丙酮中超声清洗 30 min。将准备好的 Ti 膜置于两块处理好的碳化硅方块中间,形成 SiC-Ti-SiC 三明治结构(见图 1a),组装完成的样品被放置于石墨圆筒模具中,并放入放电等离子烧结炉(SI 型号:LABOX-325R)内,该设备的烧结温度由顶部的高温计控制,用于测量顶部石墨压头的内底面温度。由于界面的接触电阻高于 SiC 基体,连接层的实际温度可能高于测量温度。所有样品在脉冲电流下进行真空加热,烧结温度设定为 1 300 °C,加热和冷却速率均为 100 °C/min,施加轴向压力为 30 MPa。通过设计不同的保温时间,系统研究 SPS 连接 SiC 接头的焊缝微观结构变化及其力学性能。

### 1.3 抗剪切强度测试

连接完后,使用金刚石线切割机(STX-202AQ 型)将所有样品切割成 10 mm×5 mm×5 mm 的矩形条,用于抗剪切强度测试(图 1c 为抗剪切强度样品制备的切割路径)。测试之前,矩形条接头表面再次打磨、抛光并超声清洗 30 min。利用实验室自制抗剪切强度装置(见图 1d)对 SiC 接头进行抗剪切强度测试,该测试与电子万能试验机(AGX-V50kN)配合使用,试验机的最大试验力可达 50 kN。测试过程中,加载速率设定为 0.5 mm/min,抗剪切强度计算公式如下:

$$\tau = F/A \quad (1)$$

式中  $\tau$  为抗剪切强度(单位:MPa); $F$  为最大载荷(单位:N); $A$  为矩形条接头的实际连接面积(单位:mm<sup>2</sup>)。每种保温时间制备 2 个试样进行测试,并取其平均值作为最终结果。

### 1.4 微观结构表征

采用扫描电镜(SEM-Tescan Mira4, Zeiss Sigma 300 VP)和电子能谱(EDS)观察接头组织的微观形貌并分析其相组织化学成分;物镜球差校正透射电子显微镜(TEM, Themis Z (3.2))对界面结合处周围的微观组织和元素组成进行了测定分析。TEM 观察箔的制作过程:首先,用金刚石砂纸将截面试样抛磨成直径为 3 mm,厚度约 60 μm 的圆形薄片,随后利用离子减薄仪(Fischione 1051, 美国)对样品进行最终减薄,形成适合 TEM 观察的薄区;X 射线衍射(XRD)用于分析接头断口中反应产物的相组成,由于部分样品断裂位置发生在基体部分,XRD

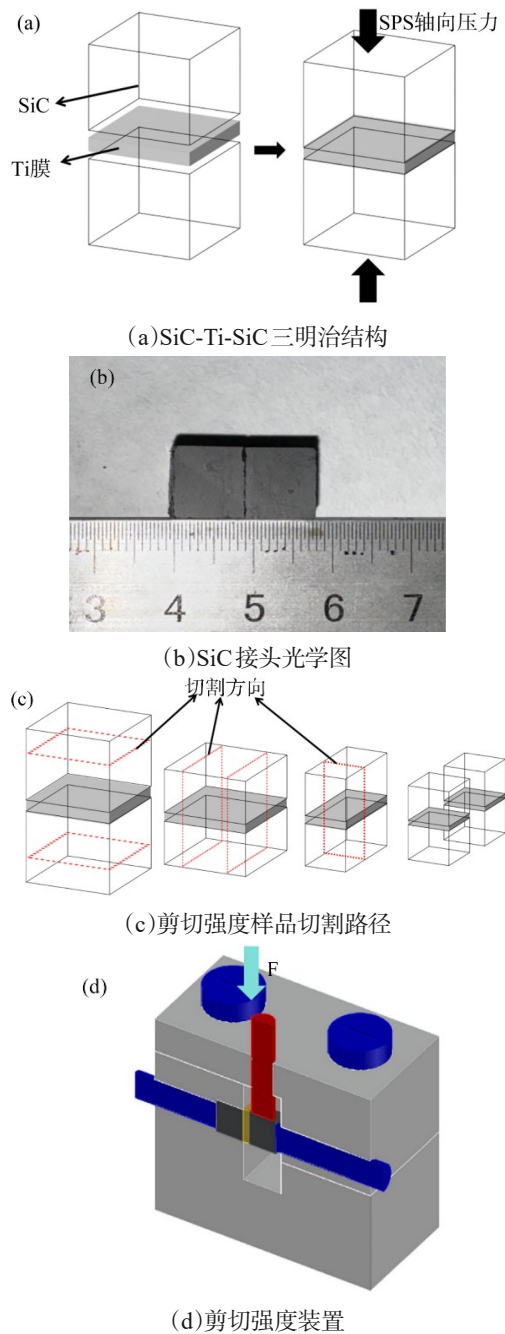


图 1 SiC 接头及其抗剪切装置

Fig. 1 SiC joint and its anti-shear device

测试样通过逐层抛磨制备而成,以确保测试结果的准确性。

## 2 结果与讨论

### 2.1 抗剪切强度

在 SPS 扩散连接 SiC 陶瓷试验中,在每种保温

时间条件下均连接两个 SiC 接头,确保试验的可重复性。依据图 1c 所示切割路径制备样品,并对测试结果计算平均值和实际偏差。抗剪切强度测试装置如图 1d 所示。测试前,对所有样品表面进行磨抛处理与超声清洗,同时将接头各棱边磨抛成倒角以降低应力集中程度,保证试验结果的可靠性。

SPS 扩散连接 SiC 陶瓷与 Ti 膜的工艺参数以及力学性能数据如表 1 所示。结果表明,SiC 陶瓷即使在保温 5 min 的条件下也能通过 SPS 工艺与 Ti 膜成功连接在一起,并表现出一定的强度(平均剪切强度 51.57 MPa)。在试验条件范围内,保温时间与 SiC 接头的平均抗剪切强度存在一定关联,随着保温时间从 20 min 减少至 5 min,平均剪切强度呈现先略微下降后显著降低的趋势。具体表现为:保温 20 min,平均剪切强度为 58.65±21.89 MPa(偏差较大);保温 10 min,平均剪切强度为 54.83±0.05 MPa(偏差最小);保温 5 min,平均剪切强度为 51.57 MPa。总体而言,延长保温时间有利于提高接头剪切强度,表明接头强度与原子扩散程度和反应进行的程度密切相关。综合平均剪切强度及偏差稳定性来看,保温 10 min 的接头平均剪切强度与保温 20 min 接头接近,但偏差更小,这意味着在该工艺条件下 SPS 连接 SiC 接头具有相对较高的质量稳定性。

表 1 不同保温时间下 SiC 接头的抗剪切强度

| Tab. 1 Shear strength of SiC joints under different holding time |           |          |      |          |      |                   |
|------------------------------------------------------------------|-----------|----------|------|----------|------|-------------------|
| 连接温度/℃                                                           | Ti 膜厚度/μm | 保温时间/min | 接头编号 | 剪切强度/MPa | 断裂位置 | 平均剪切强度/MPa        |
| 1 300                                                            | 20        | 20       | 1    | 80.54    | 基材   | 58.65<br>(±21.89) |
|                                                                  |           |          | 2    | 36.76    | 界面   |                   |
|                                                                  |           | 10       | 3    | 54.88    | 基材   | 54.83<br>(±0.05)  |
|                                                                  |           |          | 4    | 54.78    | 基材   |                   |
|                                                                  |           | 5        | 5    | 54.98    | 基材   | 51.57<br>(±3.41)  |
|                                                                  |           |          | 6    | 48.16    | 界面   |                   |

保温时间对接头强度差异的机理分析:(1)原子扩散与增强相形成。保温时间越短(5~10 min),原子扩散不充分,参与反应生成增强相(如 Ti<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub>)的原子数量较少,接头强度相对较低;随着保温时间延长(10 min),原子扩散更加充分,界面处能形成更多的增强相,有效提升接头强度。然而,当保温时间过长时(20 min),SPS 局部加热可能导致接头中间层部分区域过度烧结,产生诸如晶粒异常长

大、组织不均匀等问题,导致强度偏差过大(如接头 1 展现出了更高的剪切强度潜力(80.54 MPa),这可能与接头中间层的微观结构优化有关,其稳定性优化机制将在后续研究中进一步探讨)。(2)基材热影响与工艺参数匹配。尽管保温时间缩短可减少基材热影响(SPS 快速加热/冷却特性),但试验结果显示保温 5 min 的强度并未达到理论峰值。这表明中间层反应程度是更关键的限制因素:保温时间过短时,中间层反应未充分完成,即使基材热影响小,界面结合强度仍不足;保温时间为 10 min 时,界面结合强度与基材热影响的综合作用最优。(3)温度梯度与组织缺陷。长保温时间(20 min)下,SPS 局部加热导致中间层实际温度高于设定值,产生温度梯度,引发晶粒粗化、孔洞残留等缺陷,显著降低力学性能稳定性。

2.2 断口形貌分析

对剪切试验之后的断口进行宏观形貌分析,接头断裂位置主要发生在 SiC 基材处,而非界面连接处。选择其中典型的接头断面进行观察。图 2a~2c 为接头断裂在基材处的光学图和断口形貌,断裂主要发生在靠近 Ti 中间层的基材侧,断面粗糙不平,布满大小各异的颗粒和片状结构,整体呈现出脆性断裂的典型特征。图 2d~2f 为断裂在界面处的光学图和断口形貌。断面处 Ti 中间层存在多条明显的贯穿性裂纹,裂纹边缘较为锐利,同样是典型的脆性断裂特征。由于 SPS 高温高压的连接条件,接头内部可能产生微裂纹或孔洞等缺陷,且试样在剪切试验中不可避免地存在应力集中现象,从而导致接头在较低强度下发生断裂。然而,从试验结果来看,SiC 接头的断裂位置主要发生在基材处,而非界面处。这是由于 SPS 连接工艺使接头界面结合牢固,在承受剪切力时,基材部分成为相对薄弱的区域,从而导致断裂主要发生在基材处,这也从侧面反映出接头界面结合处具有较高的强度。

2.3 微观结构表征

2.3.1 微观形貌及成分分析

图 3 为不同保温时间 SiC 接头的 SEM 高倍与低倍背散射电子图像。所有 SiC 接头中间层最终厚度均超过了 26 μm,相较于初始 Ti 膜厚度有显著增加,其主要是由于在化学势驱动下 Ti 膜和 SiC 中原子相

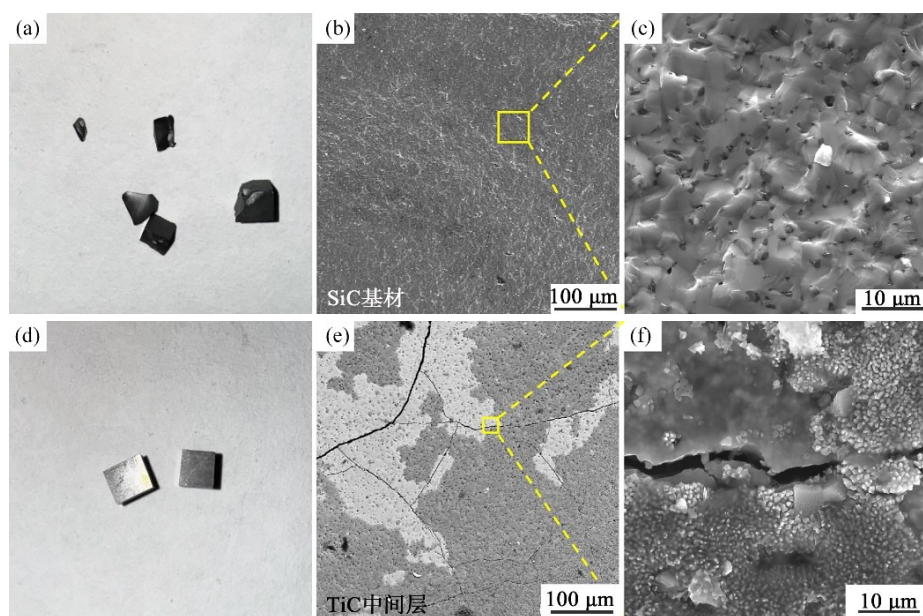


图2 SiC接头剪切断面SEM形貌

Fig. 2 SEM morphology of the shear fracture surface of the SiC joint

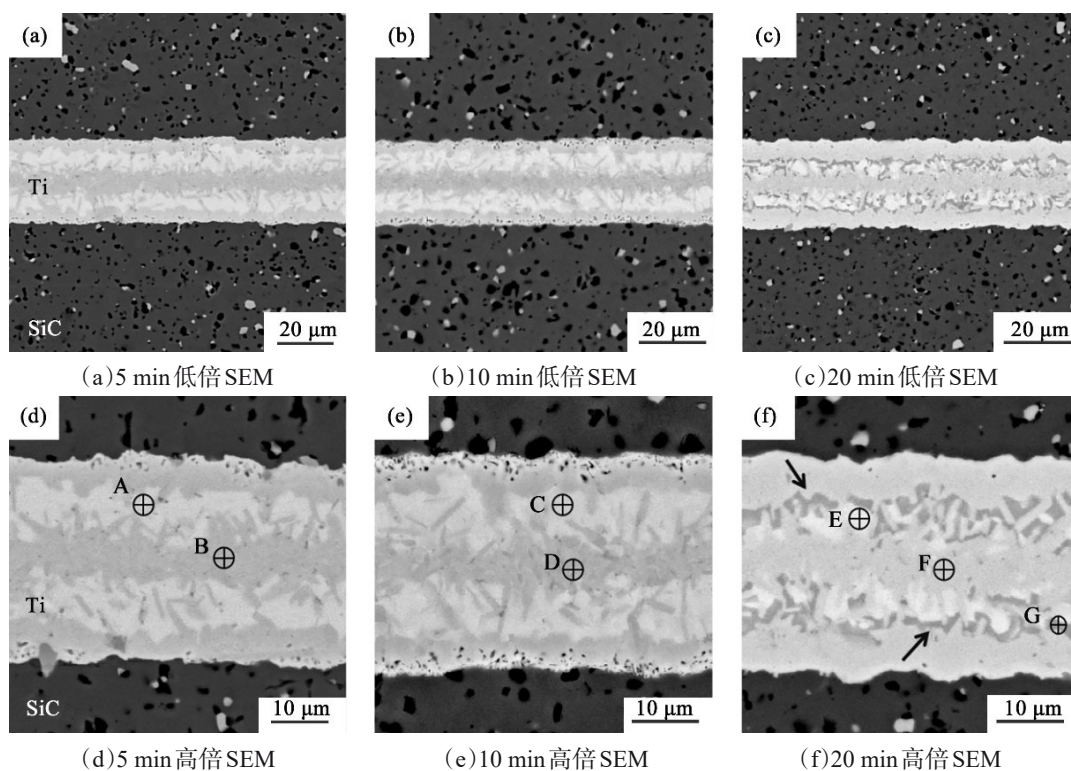


图3 不同保温时间下SiC接头的SEM高倍与低倍背散射电子图像

Fig. 3 High and low magnification SEM backscattered electron images of SiC joints at different insulation times

互扩散造成的原子级混合引起的<sup>[21]</sup>。试验表明,在1 300 °C的连接温度下,SiC陶瓷能在5 min、10 min、20 min的保温时间下通过SPS工艺成功地与厚度为20 μm的Ti膜连接一起。连接后的中间层厚度均

匀,与SiC界面结合紧密且连续,未出现明显未连接区域。尽管在SPS烧结过程中样品不可避免地承受强烈的剪切力与摩擦力,但在SEM中并未观察到裂纹。从整体形貌来看,不同保温时间下,接头中间

层总体结构相似,主要由深色衬度相与浅色衬度相交替组成,且浅色衬度相中分布着众多大小各异的条状深色衬度相。在与SiC基材结合处,可观察到中间层两侧存在黑色孔洞,有团聚的浅色衬度相填充于基材表面缺陷中(孔洞或裂纹)。值得注意的是,基材内孔洞尺寸相对较大,中间层侧孔洞尺寸较小,这表明在连接后的中间层仍具有不错的致密化效果,且致密程度优于常压烧结SiC基材。然而,保温20 min的中间层区域中浅色衬度相组织有所减少,出现了明显的第三相结构(图3f黑色箭头),不过此情况在整条焊缝中并非连续存在,考虑到SPS工艺具有局部加热的特性,在连接过程中接头内部存在温度梯度,从而致使其微观组织形貌产生差异。这种组织分布的不均匀性将严重损害接头的整体力学性能。

为明确接头中间层反应产物组成,采用SEM附带的电子能谱(EDS),分别对浅色衬度相(标记为点A、C、E)、深色衬度相(标记为点B、D、F)和第三相(点G)进行化学成分分析。表2呈现了各点的能谱分析结果,不同保温时间下各相的相成分类似,均仅含Ti、Si、C这三种元素,且Ti含量占据主导。其中,浅色衬度相呈现出明显的富Si特征;而深色衬度相则表现为富Ti+C的特点;第三相同样也是富Si的。结合Ti-Si-C三元体系的等温相图<sup>[22]</sup>,在SPS连接SiC接头中间层区域中可能存在Ti-Si-C相、Ti-C相和Ti-Si金属相,其中第三相中Ti和Si的原子比近似为5:3,强烈地暗示了该相为 $Ti_5Si_3$ 相。

表2 图3c、3f、3i中各点化学成分分析(原子分数,%)

Table 2 Chemical composition analysis of each point in Fig. 3c, 3f, 3i (at. %)

| 保温时间/min | 点 | Ti    | Si    | C     | 可能的物相   |
|----------|---|-------|-------|-------|---------|
| 5        | A | 69.59 | 23.64 | 6.77  | Ti-Si   |
|          | B | 74.93 | 13.08 | 11.99 | Ti-Si-C |
| 10       | C | 69.38 | 23.79 | 6.74  | Ti-Si   |
|          | D | 73.75 | 12.32 | 13.92 | Ti-Si-C |
|          | E | 68.32 | 24.24 | 7.44  | Ti-Si   |
| 20       | F | 59.81 | 21.00 | 19.19 | Ti-Si-C |
|          | G | 55.72 | 36.86 | 7.42  | Ti-Si   |

### 2.3.2 接头反应产物

由于在SEM中观察到保温20 min的SiC接头中相组织更为复杂多样,选择对该保温时间下制备

的接头进行TEM观察,有利于进一步确定中间层反应产物的相组织成分。图4为中间层与基材结合处的高角环形暗场探头图像(HAADF)以及元素分布。

在图4a中,左侧为SiC基材,右侧为中间层区域。用黑色虚线将中间层划分成两部分,其中亮白区域(I)对应深色衬度相,另一侧(II)为浅色衬度相。可观察到在区域II中存在众多条状晶粒,结合SEM结果能够推断该晶粒属于深色衬度相的条状晶粒。依据图4b、4d的元素分布状况可知,SiC基材侧C含量极少而Si含量较多,这表明大部分C已先于Si扩散至中间层区域与Ti发生反应。与此同时,区域I中元素分布呈现出Ti含量>C含量>Si含量的特征,根据Ti-Si-C三元等温相图<sup>[22]</sup>,推测该相中存在MAX相 $Ti_3SiC_3$ ;区域II为显著的富Si相,且存在一定量的Ti,这与EDS中浅色衬度相中Si含量增加的结果相符;区域II中的条状晶粒几乎未检测到Si元素,仅含有Ti和C,根据Ti-C二元等温相图<sup>[23]</sup>,推测该晶粒为TiC。

抗剪切强度测试后,采用X射线衍射仪(XRD)分析了SiC接头中间层的相成分。根据图5显示,

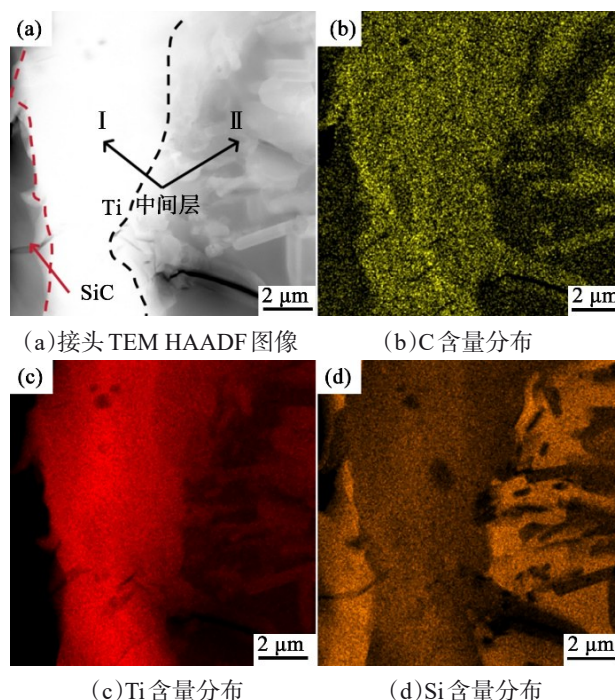


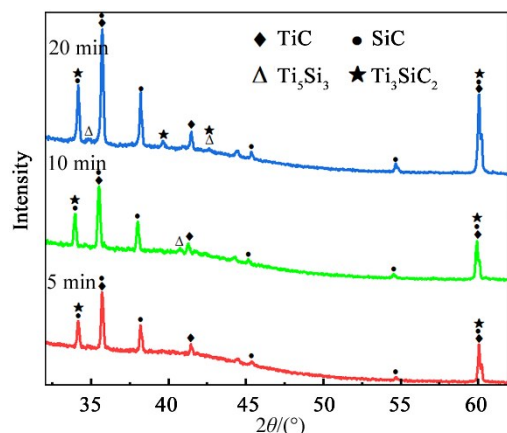
图4 保温20 min SiC接头的TEM HAADF图像以及元素分布

Fig. 4 TEM HAADF images and elemental distribution maps of the SiC joint under a holding time of 20 min

反应后的中间层相成分有四种,除了 SiC 基材以外,还检测到了几种新相,分别为 TiC、 $Ti_5Si_3$  和  $Ti_3SiC_2$ ,这与 TEM 的结果一致。Zhang 等人<sup>[24]</sup>研究表明,在高温下金属 Ti 与 Si、C 及 SiC 具有较强亲和力,可发生诸多反应。保温 5 min 的接头中间相仅检测到 TiC 和  $Ti_3SiC_2$ ,这是由于在 SPS 的温度和压力的共同作用下,基材中的 C 原子的扩散速度高于 Si 的扩散速度<sup>[25]</sup>,率先与中间层 Ti 发生反应(2)。生成的 TiC 势垒会限制 Si 元素的扩散,从而导致 Si 滞留,因此大部分的 Si 原子被 TiC 阻挡在基材和区域 II 中。



同时,部分已经到达中间层的 Si 会与残余的 Ti 和 C 发生反应(3)生成  $Ti_3SiC_2$ <sup>[26]</sup>。



(a) 5 min; (b) 10 min; (c) 20 min

图5 不同保温时间的SiC接头XRD图像

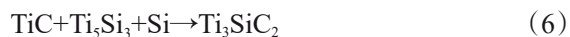
Fig. 5 XRD of SiC joints with different holding time

XRD 结果显示,在保温 10 min 和 20 min 的中间层均检测出了  $Ti_5Si_3$  金属相。这是由于反应(4)的吉布斯自由能为  $-577 \text{ kJ}$ ,因此金属 Ti 与体系中自由扩散的 Si 很容易发生反应(4)<sup>[27]</sup>。随着保温时间的增加,基体中的 SiC 也会与互扩散的 Ti 发生反应(5)。在保温 5 min 的 SiC 接头中,由于保温时间较短,反应生成  $Ti_5Si_3$  的含量较少,因此在 XRD 中并未检测到。



Yang 等人<sup>[28]</sup>研究报道了反应生成的  $Ti_5Si_3$  和 TiC 继续与 Si 发生反应(6),从而继续生成  $Ti_3SiC_2$  相。因此,与较低保温时间相比,保温 20 min 接头

的中间层检测到的  $Ti_3SiC_2$  相更多。 $Ti_5Si_3$  属于脆性硅化物,容易导致界面结合处产生裂纹;而  $Ti_3SiC_2$  是一种兼具了金属和陶瓷性能的三元 MAX 相,具有优异的力学和热学性能。



XRD 结果表明,SPS 连接 SiC 接头相组织分别为 TiC 相、 $Ti_3SiC_2$  相和  $Ti_5Si_3$  相,结合 EDS 与 TEM 的结果可知,中间层区域浅色衬度相是  $Ti_5Si_3$ ,深色衬度相是 TiC 和  $Ti_3SiC_2$ 。随着保温时间延长至 20 min,虽然生成了更多如  $Ti_3SiC_2$  等增强相,但同时脆性的  $Ti_5Si_3$  相也增多,并且 SPS 局部加热的特点带来的负面影响可能超过了增强相的强化作用,导致接头 2 的剪切强度最低。此外,在进行剪切试验时,接头切割位置是不可控的,虽然接头 1 在同样保温时间下,也经历了相组织变化,但可能由于试样切割位置差异,其内部可能未出现严重的过度烧结和脆性相(第三相结构)大量生成的情况, $Ti_3SiC_2$  等增强相的强化作用得以较好体现,所以展现出更高的剪切强度。

### 3 结论

采用放电等离子烧结(SPS)工艺,以  $20 \mu\text{m}$  厚的高纯 Ti 膜为中间层,在  $1300^\circ\text{C}$ 、30 MPa 的工艺参数下,分别在保温 5 min、10 min 和 20 min 的时间下,成功实现了常压烧结 SiC 陶瓷的高强度连接。主要结论如下:

(1)接头平均剪切强度与保温时间存在一定关系,保温 5 min 时平均剪切强度为 51.57 MPa,保温时间提高到 10 min 和 20 min 后平均剪切强度达到了 54.83 MPa 和 58.65 MPa。然而,保温时间过长会导致局部过度烧结,组织不均匀,从而降低接头性能的稳定性。综合平均值偏差考虑,保温 10 min 为最佳保温时间,此时接头质量稳定性较高。

(2)微观结构表征表明,不同保温时间下接头内微观组织结构相近,中间层仍保持着较高致密度。接头主要反应相为 TiC 相、 $Ti_5Si_3$  以及  $Ti_3SiC_2$  相,TiC 的生成使得 Si 滞留在中间层两侧和基材表面。保温时间增加会使中间层反应生成的  $Ti_5Si_3$  相和  $Ti_3SiC_2$  相含量增加。其中, $Ti_5Si_3$  脆性易致界面裂

纹,而 $\text{Ti}_3\text{SiC}_2$ 相的产生能有效提升接头强度。

(3)SPS连接工艺可以有效实现SiC陶瓷的高强度连接,界面结合牢固,剪切断裂主要发生在SiC基材处。

#### 参考文献:

- [1] 徐彬,杨会永,罗瑞盈,等.连续纤维增强SiC基复合材料界面相力学及抗氧化改性研究进展[J].航空动力学报,2023,38(4):921-930.  
XU B, YANG H Y, LUO R Y, et al. Research Progress on Mechanics and Anti-oxidation Modification of Interphase in Continuous Fiber Reinforced SiC Matrix Composites[J]. Journal of Aerospace Power, 2023, 38(4): 921-930.
- [2] 欧阳琴,王艳菲,徐剑,等.核用碳化硅纤维增强碳化硅复合材料研究进展[J].无机材料学报,2022,37(08):821-840.  
Ouyang Q, WANG Y F, XU J, et al. Research Progress of Silicon Carbide Fiber Reinforced Silicon Carbide Composites for Nuclear Applications [J]. Journal of Inorganic Materials, 2022, 37(8): 821-840.
- [3] 刘万理. SiC及其复合材料的制备和光催化性能研究[D]. 山东:山东大学, 2021.  
LIU W L. Research on the Preparation and Photocatalytic Properties of SiC and Its Composites [D]. Shandong: Shandong University, 2021.
- [4] 徐晓卫,李宁,刘自豪,等.碳化硅陶瓷连接技术研究现状[J].电焊机,2022,52(8):10-19.  
XU X W, LI N, LIU Z H, et al. Research Status of Silicon Carbide Ceramic Joining Technology [J]. Electric Welding Machine, 2022, 52(8): 10-19.
- [5] Zinkle S J, Terran K A, Gehin J C, et al. Accident tolerant fuels for LWRs: a perspective[J]. Journal of Nuclear Materials, 2014, 448(1): 374-379.
- [6] 王亚峰,魏连峰,杨富荃,等. SiC- $\text{Al}_2\text{O}_3$ - $\text{Y}_2\text{O}_3$ 中间层放电等离子扩散连接SiC陶瓷的接头组织与强度[J].电焊机,2023,53(12):1-6.  
WANG Y F, WEI L F, YANG F Q, et al. Microstructure and Strength of SiC Ceramic Joints by Spark Plasma Diffusion Bonding with SiC- $\text{Al}_2\text{O}_3$ - $\text{Y}_2\text{O}_3$  Interlayer [J]. Electric Welding Machine, 2023, 53(12): 1-6.
- [7] Rossi G A, Pelletier P J. Joining of SiC parts by polishing and hipping. United States, Invention Patent, US4925608A[P]. 1990-05-15.
- [8] Moore T J. Feasibility study of the welding of SiC[J]. Journal of the American Ceramic Society, 1985, 68(6): C151.
- [9] LUO Z H, JIANG D L, ZHANG J X, et al. Development of SiC-SiC joint by reaction bonding method using SiC/C tapes as the interlayer[J]. Journal of the European Ceramic Society, 2012, 32(14): 3819-3824.
- [10] TIAN W B, Kita H, Hyuga H, et al. Reaction joining of SiC ceramics using  $\text{TiB}_2$ -based composites[J]. Journal of the European Ceramic Society, 2010, 30(15): 3203-3208.
- [11] Prakash P, Mohandas T, Raju P D. Microstructural characterization of SiC ceramic and SiC-metal active metal brazed joints [J]. Scripta Materialia, 2005, 52(11): 1169-1173.
- [12] Riccardi B, Nannetti C A, Petrisor T, et al. Issues of low activation brazing of SiCf/SiC composites by using alloys without free silicon[J]. Journal of Nuclear Materials, 2005, 329-333(A): 562-566.
- [13] Tatarko P, Casalegno V, Hu C F, et al. Joining of CVD-SiC coated and uncoated fibre reinforced ceramic matrix composites with pre-sintered  $\text{Ti}_3\text{SiC}_2$  MAX phase using Spark Plasma Sintering [J]. Journal of the European Ceramic Society, 2016, 36(16): 3957-3967.
- [14] Zhou X B, Han Y H, Shen X F, et al. Fast joining SiC ceramics with  $\text{Ti}_3\text{SiC}_2$  tape film by electric field-assisted sintering technology [J]. Journal of Nuclear Materials, 2015, 466(15): 322-327.
- [15] Sha J, Nozawa T, Park J, et al. Effect of heat treatment on the tensile strength and creep resistance of advanced SiC fibers[J]. Journal of Nuclear Materials, 2004, 329: 592-596.
- [16] Rizzo S, Grasso S, Salvo M, et al. Joining of C/SiC composites by spark plasma sintering technique [J]. Journal of the European Ceramic Society, 2014, 34(4): 903-913.
- [17] Li H X, Shen W J, Yang F Q, et al. Microstructural, electrical, and mechanical properties of conductive SiC ceramics fabricated by spark plasma sintering[J]. International Journal of Applied Ceramic Technology, 2022, 19(6): 3376-3391.
- [18] Li M, Zhou X B, Yang H, et al. The critical issues of SiC materials for future nuclear systems [J]. Scripta Materialia, 2018, 143: 149-153.
- [19] Singh M, Shpargel T P, Morscher G N, et al. Simple test to determine the effectiveness of different braze compositions for joining Ti-tubes to C/C composite plates[J]. Materials Science and Engineering A, 2006,

- 418(1):19-24.
- [20] Grasso S, Tatarko P, Rizzo S, et al. Joining of  $\beta$ -SiC by spark plasma sintering[J]. Journal of the European Ceramic Society, 2014, 34(7):1681-1686.
- [21] Yang H, Zhou X B, Shi W, et al. Thickness-dependent phase evolution and bonding strength of SiC ceramics joints with active Ti interlayer[J]. Journal of the European Ceramic Society, 2017, 37(4):1233-1241.
- [22] 甘国友, 陈敬超, 孙加林, 等. Ti-Si-C 三元系化学势稳定性相图及其应用[J]. 昆明理工大学学报, 2002(1):34-37+85.
- GAN G Y, CHEN J C, SUN J L, et al. Chemical Potential Stability Phase Diagram of Ti-Si-C Ternary System and Its Application[J]. Journal of Kunming University of Science and Technology, 2002(1):34-37+85.
- [23] Weinberger Christopher R, Thompson Gregory B. Review of phase stability in the group IVB and VB transition-metal carbides[J]. Journal of the American Ceramic Society, 2018, 101(10):4401-4424.
- [24] 张宇昆, 陈继春, 张劲松. 碳化硅复合材料与碳钢钎焊接头的抗剪强度及微观结构[J]. 焊接学报, 2020, 41(7):78-82.
- ZHANG Y K, CHEN J C, ZHANG J S. Shear Strength and Microstructure of Brazed Joints between Silicon Carbide Composites and Carbon Steel[J]. Transactions of the China Welding Institution, 2020, 41(7):78-82.
- [25] Naka M, Feng J C, Schuster J C. Phase reaction and diffusion path of the SiC/Ti system[J]. Metallurgical and Materials Transactions A, 1997, 28(6):1385-1390.
- [26] Jung Y I, Kim S H, Kim H G, et al. Microstructures of diffusion bonded SiC ceramics using Ti and Mointerlayers[J]. Journal of Nuclear Materials, 2013, 441(1/2/3):510-513.
- [27] 吴利翔, 薛佳祥, 马海滨, 等. SiC 陶瓷的 Ti-Si 钎焊连接机理和性能研究[J]. 陶瓷学报, 2023, 44(1):66-71.
- WU L X, XUE J X, MA H B, et al. Research on the Brazing Connection Mechanism and Properties of SiC Ceramics with Ti-Si[J]. Journal of Ceramics, 2023, 4(1):66-71.
- [28] Yang S L, Sun Z M, Hashimoto H. Reaction in  $Ti_3SiC_2$  powder synthesis from a Ti/Si/TiC powder mixture[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2004, 368(1/2):312-317.

编辑部网址: <http://www.71dhj.com>

☞ 上接第 39 页

- tion of Collaborative Robots in Ship Welding[J]. Ship Engineering, 2022, 44(03):112-118.
- [6] 李文博, 张涛, 周建民. 基于协作机器人的柔性焊接生产线设计[J]. 制造业自动化, 2022, 44(08):67-72.
- LI W B, ZHANG T, ZHOU J M. Design of Flexible Welding Production Line Based on Collaborative Robot. Manufacturing Automation, 2022, 44(08):67-72.
- [7] 王振伟, 王志宏, 孙凤丹, 等. 船舶智能焊接技术发展现状与趋势[J]. 中国舰船研究, 2023, 18(04):39-45+51.
- WANG Z W, WANG Z H, SUN D F, et al. Development Status and Trends of Intelligent Welding Technology for Ships. China Ship Research, 2023, 18(04):39-45+51.
- [8] 陈晓东, 张伟, 李军. 机器人技术基础[M]. 北京:清华大学出版社, 2020:123.
- [9] 李恒, 杨娇娇, 李升波, 等. 基于改进 YOLOv5s-BLS 的钢结构智能焊接缺陷识别方法[J]. 东北大学学报(自然科学版), 2023, 44(10):1404-1412.
- LI H, YANG J J, LI S B, et al. Intelligent Welding Defect Recognition Method for Steel Structures Based on Improved YOLOv5s-BLS[J]. Journal of Northeastern University, 2023, 44(10):1404-1412.
- [10] 王富强, 王凯, 赵熹, 等. 基于激光视觉传感的大型结构件智能焊接方法研究进展[J]. 机械科学与技术, 2023, 42(03):499-506.
- WANG F Q, WANG K, ZHAO X, et al. Research Progress on Intelligent Welding Method for Large Structural Components Based on Laser Vision Sensing[J]. Mechanical Science and Technology, 2023, 42(03):499-506.
- [11] 陈晓东, 李军, 张伟. 基于深度强化学习的协作机器人焊接参数优化[J]. 中国机械工程, 2021, 32(20):2456-2463.
- CHEN X D, LI J, ZHANG W. Optimization of Welding Parameters for Collaborative Robots Based on Deep Reinforcement Learning[J]. China Mechanical Engineering, 2021, 32(20):2456-2463.

编辑部网址: <http://www.71dhj.com>