

以 SiC 为连接层主相的 SiC 陶瓷及其复合材料连接研究进展

郭伟明¹, 何盛金¹, 詹创添¹, 薛佳祥², 朱林林¹, 吴利翔², 马海滨², 翟剑晗², 陈原彬¹, 林华泰¹

(1. 广东工业大学机电工程学院, 广州 510006; 2. 中广核研究院有限公司, 广东 深圳 518026)

摘 要: 由于高脆性、高硬度、高耐磨等特点, SiC 陶瓷较难直接加工成大型结构复杂的零部件, 发展连接技术是推动其工程化应用的主要方法之一。在众多连接方法中, 以 SiC 为连接层主相的连接方法制备的接头具有连接强度高、接头应力小、抗辐照、抗化学腐蚀和耐高温等优势, 成为 SiC 陶瓷连接重点关注的技术, 包括纳米浸渍瞬态共晶相连接(NITE 相连接)、硅—碳反应连接(Si—C 反应连接)和前驱体连接。本工作从连接机理、连接工艺、接头成分、微观结构和连接强度等方面综述了上述 3 种以 SiC 为连接层主相的 SiC 陶瓷及其复合材料的连接技术, 并对 3 种连接技术的优缺点进行了对比分析, 最后对发展趋势进行了展望。

关键词: 碳化硅陶瓷连接; 纳米浸渍瞬态共晶相连接; 硅—碳反应连接; 前驱体连接

中图分类号: TQ174 文献标志码: A 文章编号: 0454-5648(2022)09-2527-11

网络出版时间: 2022-08-12



Research Progress on Joining of SiC Ceramics and Its Composites Using SiC as Major Phase of Joining Layer

GUO Weiming¹, HE Shengjin¹, ZHAN Chuangtian¹, XUE Jiaxiang², ZHU Linlin¹, WU Lixiang², MA Haibin², ZHAI Jianhan², CHEN Yuanbin¹, LIN Huatai¹

(1. School of Electromechanical Engineering, Guangdong University of Technology, Guangzhou 510006, China;

2. China Nuclear Power Technology Research Institute, Shenzhen 518026, Guangdong, China)

Abstract: SiC ceramics are difficult to be directly processed into large and complex components due to their high brittleness, high hardness and high wear resistance. Therefore, joining technology is one of the developed methods to facilitate the engineering application of SiC ceramics. Among various joining methods, the joints obtained by the joining method using SiC as a major phase of the joining layer have some advantages like high joint strength, low joint stress, radiation resistance, chemical corrosion resistance and high temperature resistance, thus becoming the key technologies for SiC ceramic joining, *i.e.*, nano-infiltrated transient eutectoid phase joining (*i.e.*, NITE phase joining), silicon-carbon reaction joining (*i.e.*, Si—C reaction joining) and precursor joining. This review represented three kinds of SiC ceramic joining technologies above using SiC as a major phase of the joining layer from the aspects of joining mechanism, joining process, joint composition, microstructure and joining strength. The advantages and deficiencies of the three kinds of joining technologies were analyzed and compared. In addition, the future development was also prospected.

Keywords: joining of silicon carbide ceramics; nano-infiltrated transient eutectoid phase joining; silicon-carbon reaction joining; precursor joining

碳化硅(SiC)是一种强共价键化合物, 具有密度低、硬度高、耐磨损性好、耐高温、抗热冲击性好以及抗氧化性强和耐腐蚀等优异性能, 被广泛应用于能源、化工、航空航天、电子器件、国防军工等

领域^[1-5]。由于 SiC 具有高硬度、高耐磨性和低冲击韧性等特性, 直接加工大型结构复杂的 SiC 陶瓷零部件技术难度大, 成本高。发展 SiC 基陶瓷连接技术有利于克服上述难题, 进一步推动 SiC 陶瓷的工

收稿日期: 2022-03-02。 修订日期: 2022-04-11。

基金项目: 国家自然科学基金面上项目(52072077)。

第一作者: 郭伟明(1982—), 男, 博士, 教授。

Received date: 2022-03-02. Revised date: 2022-04-11.

First author: GUO Weiming (1982—), male, Ph.D., Professor.

E-mail: guo1238@126.com

程化应用。

目前, 研究人员已开发出多种 SiC 陶瓷连接技术。按照连接层主相成分, 主要分为: 无连接层的 SiC 陶瓷直接连接; 以非 SiC 基材料为连接层主相的 SiC 陶瓷连接; 以 SiC 基材料为连接层主相的 SiC 陶瓷连接。无连接层的 SiC 陶瓷连接是指将连接的 SiC 陶瓷直接贴合, 利用其自身的扩散性实现 SiC 的连接, 这种连接方法所制备的接头几乎没有残余应力, 是一种理想的 SiC 陶瓷连接方法。然而, SiC 陶瓷直接连接条件苛刻, 需要较低的母材表面粗糙度($<1\ \mu\text{m}$)、较高的连接温度($>1\ 750\ ^\circ\text{C}$)以及较高的连接压力($>20\ \text{MPa}$)等^[6–8]。以非 SiC 材料为连接层主相的 SiC 陶瓷连接是指以 SiC 之外的其他材料作为连接层进行 SiC 陶瓷的连接, 具体包括金属基材料(Mo、Al、Ag、Cu、Ti、Ni 和 Zr 等)^[9–12]、玻璃陶瓷($\text{CaO-Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Y}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 、 $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 和 $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2\text{-Li}_2\text{O}$ 等)^[13–16]和 MAX 相材料(M 是过渡金属元素, 其中: A 为 A 族元素; X 为 C 或 N, 主要包括 Ti_3SiC_2 、 Ti_3AlC_2 、 $\text{Dy}_3\text{Si}_2\text{C}_2$ 和 $\text{Y}_3\text{Si}_2\text{C}_2$ 等)^[17–21]等, 这类连接方法所需的温度和压力均比较低, 同时制备的 SiC 接头强度较高, 然而, 由于连接层的主相为非 SiC, 与 SiC 基体存在热膨胀系数(CTE)差异, 导致连接后易产生残余应力, 同时接头的高温力学性能、抗辐照性以及抗化学腐蚀性都可能低于母材。以 SiC 为连接层主相的 SiC 陶瓷连接是指用于连接 SiC 陶瓷的连接层主相为 SiC 基材料, 由于连接层热膨胀系数及其它热物理性能与母材 SiC 相同或相近, 能有效克服连接层与母材的热失配问题, 接头性能优异, 具有良好的应用前景。

以 SiC 为连接层主相的 SiC 陶瓷连接技术, 具体包括 NITE 相连接、Si—C 反应连接和前驱体连接。NITE 相连接是基于液相烧结 SiC 陶瓷的原理, 将纳米 SiC 与少量氧化物烧结助剂混合后作为中间层材料, 在一定温度和压力下中间层与 SiC 母材实现共烧, 实现 SiC 陶瓷的连接^[22–24]。Si—C 反应连接是指利用 Si 和 C 原位反应形成 SiC 的原理, 在连接部位形成 SiC 连接层, 实现 SiC 陶瓷的连接^[25]。前驱体连接是指利用陶瓷前驱体聚合物热解转变为 SiC 材料, 并与母材形成化学键合, 实现 SiC 陶瓷的连接^[26]。3 种连接方法的示意图如图 1 所示。这 3 种连接技术具有连接强度高、接头应力小、抗辐照和抗化学腐蚀、耐高温等优势, 成为 SiC 陶瓷连接重点关注的技术^[27–28]。

在以往研究中, Zhang 等^[29]总结了 C_f/SiC 复合材料及其与金属材料的连接技术, 从连接机理、连接强度、成分及微观结构综述了 C_f/SiC 复合材料的连接技术; Liu 等^[30]对连接层材料进行了分类, 包括无连接层材料、金属材料、玻璃陶瓷材料和有机材料, 从连接机理、连接强度、界面结构和反应产物等方面总结了 SiC 基陶瓷的连接技术; Yoon 等^[31]从基本机理、连接强度、界面结构和高温性能等方面总结和展望了 SiC 陶瓷和 SiC_f/SiC 复合材料在高温($\geq 1\ 000\ ^\circ\text{C}$)应用环境下的连接技术。然而, 以上综述并没有针对以 SiC 为连接层主相的 SiC 陶瓷连接技术进行系统的总结和评述, 对提升 SiC 接头性能的措施相对较少。

本工作介绍了 NITE 相连接、Si—C 反应连接和前驱体连接 3 种以 SiC 为连接层主相的 SiC 陶瓷及其复合材料的连接技术的研究进展, 从连接机理与连接工艺、成分与微观结构、连接强度等方面, 深入对比 3 种连接技术的优缺点。最后, 对以 SiC 为连接层主相的 SiC 陶瓷及其复合材料连接技术的发展趋势进行展望。

1 连接机理与连接工艺

1.1 NITE 相连接

NITE 相连接是从液相烧结(LPS)工艺改进的基础上发展而来的^[32–33]。NITE 相连接是指连接层中纳米 SiC 在烧结助剂的作用下发生液相烧结, 并与 SiC 基体紧密共烧, 从而实现 SiC 陶瓷的连接, 其示意图如图 1a 所示。烧结助剂有利于 NITE 相的低温致密化, 然而, 烧结助剂含量过高会导致晶界相结晶不良, 导致晶界相挥发和 SiC 分解, 因此烧结助剂的含量应控制在较低的水平($<10\%$)^[34–35]。NITE 相连接常用的烧结助剂体系为 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Y}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Y}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Y}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-CeO}_2$ 和 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-HfO}_2$ 等^[22–24, 36–43]。

NITE 相连接所需的温度和压力均比较高, 通常 $t > 1\ 500\ ^\circ\text{C}$ 和 $p > 10\ \text{MPa}$ 。表 1 总结了 NITE 相连接 SiC 基陶瓷的实例。Jung 等^[22]以纳米 SiC 为主相、以 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Y}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 作为烧结助剂, 研究了连接温度($1\ 500\sim 1\ 900\ ^\circ\text{C}$)和连接压力($5\sim 20\ \text{MPa}$)对 NITE 相连接 SiC 陶瓷的影响, 结果显示: 在 $1\ 800\ ^\circ\text{C}$ 和 $20\ \text{MPa}$ 连接条件下获得最优性能的接头; Kotah 等^[43]以纳米 SiC 为主相、以 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Y}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 为烧结助剂通过 NITE 相连接 SiC, 最佳连接温度和压力为 $1\ 850\ ^\circ\text{C}$ 和 $10\ \text{MPa}$; Kim 等^[23]以纳米 SiC 为主相、

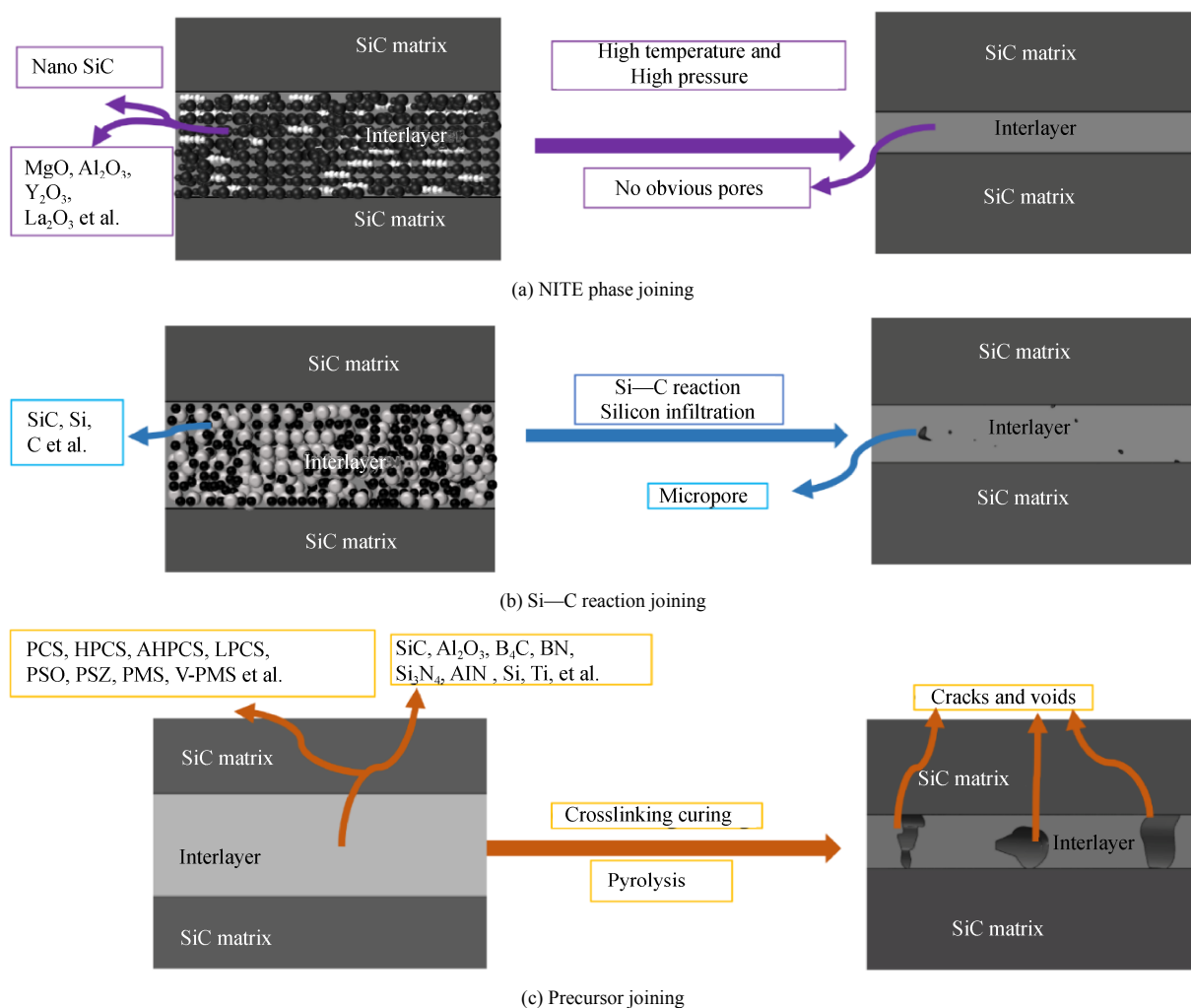


图 1 NITE 相连接、Si—C 反应连接和前驱体连接过程示意图

Fig. 1 Process schematic diagram of NITE phase joining, Si—C reaction joining and precursor joining

表 1 NITE 相连接法连接 SiC 基陶瓷的实例

Table 1 Examples of NITE phase joining for SiC-based ceramics

Additives	Joining condition			Joint strength/MPa	Fracture failure	Reference
	Temperature/°C	Pressure/MPa	Holding time/min			
Al ₂ O ₃ —Y ₂ O ₃ —SiO ₂	1 600	20	60	97 ^b	Interlayer	[22]
Al ₂ O ₃ —Y ₂ O ₃ —SiO ₂	1 800	20	60	249 ^b	Matrix	[22]
Al ₂ O ₃ —Y ₂ O ₃ —MgO	1 850	20	60	343 ± 53 ^a	Matrix	[23]
Al ₂ O ₃ —H ₂ O ₃	1 700	20	10	157.8 ^b	Interlayer	[24]
Al ₂ O ₃ —H ₂ O ₃	1 800	20	10	155.2 ^b	Interlayer	[24]
Al ₂ O ₃ —Y ₂ O ₃ —SiO ₂	1 800	20	60	>90 ^b	Matrix	[37]
Al ₂ O ₃ —Y ₂ O ₃ —SiO ₂	1 800	20		120 ^b	Matrix	[40]
Al ₂ O ₃ —Y ₂ O ₃ —SiO ₂	1 700	20	10	115.0 ^b	Matrix	[42]
Al ₂ O ₃ —Y ₂ O ₃ —SiO ₂	1 700	20	10	104.2 ^b	Matrix	[42]
Al ₂ O ₃ —CeO ₂ (About 70)*	1 700	20	10	163.9 ^b	Matrix	[42]
Al ₂ O ₃ —CeO ₂ (About 70)*	1 500	20	10	57.4 ^b	Interlayer	[42]
Al ₂ O ₃ —CeO ₂ (About 35)*	1 500	20	10	113.2 ^b	Matrix	[42]
Al ₂ O ₃ —Y ₂ O ₃	1 800	10	60	320 ^b	Matrix	[43]
Al ₂ O ₃ —Y ₂ O ₃	1 875	20	10	67.3 ^b	Interlayer	[44]

* refers the thickness of joint layer (μm); ^a refers to flexural strength; ^b refers to shear strength.

以 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{--Y}_2\text{O}_3\text{--MgO}$ 为烧结助剂连接 SiC 陶瓷, 研究发现最佳的连接温度和压力为 $1850\text{ }^\circ\text{C}$ 和 20 MPa 。

为降低 NITE 相连接温度和压力, 研究者通过引入低温烧结助剂(如 $\text{CeO}_2\text{--Al}_2\text{O}_3$ 和 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{--HfO}_2\text{O}_3$ 等)和降低连接层厚度来实现 SiC 陶瓷的连接^[24, 42]。如 Niu 等^[24]以纳米 SiC 为主相、 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{--HfO}_2\text{O}_3$ 为助剂, 研究了连接温度 $1500\sim1800\text{ }^\circ\text{C}$ 对 NITE 相连接的影响, 发现最优连接温度为 $1700\text{ }^\circ\text{C}$; Wu 等^[43]以纳米 SiC 为主相、 $\text{CeO}_2\text{--Al}_2\text{O}_3$ 为烧结助剂, 研究了连接层厚度对 NITE 相连接的影响。结果表明: 当连接层厚度从约 $70\text{ }\mu\text{m}$ 降低至约 $35\text{ }\mu\text{m}$ 时, 连接温度从 $1700\text{ }^\circ\text{C}$ 降至 $1500\text{ }^\circ\text{C}$ 。

为减少烧结助剂在高温环境中的挥发, 通常情况下, NITE 相连接的气氛为惰性气体, 如氩气和氮气^[22–23]。NITE 相连接的设备通常是热压炉和放电等离子烧结设备(SPS)^[22–24, 36, 42], 特别地, SPS 设备能减少 NITE 相连接所需的时间, 有效减少连接层中烧结助剂的挥发, 并且能通过放电等离子活化作用降低连接温度。

1.2 Si—C 反应连接

Si—C 反应连接法是指利用反应烧结法制备 SiC 陶瓷的原理, 首先把预制碳化物置于待连接面, 在较低的温度固化形成骨架, 然后在高温时通过毛细管力作用使熔融 Si 渗透至整个连接区域, 同时

Si 与 C 反应生成 SiC, 形成稳固的接头, 接头的典型晶界为 Si/SiC、Si/Si 和 SiC/SiC^[45], 其示意图如图 1b 所示。C 在 Si 中的溶解是放热反应, 导致溶解的局部区域温度升高, 提高了 C 在 Si 中的溶解度, 同时 C 快速迁移扩散至熔融 Si 附近, 因此 Si—C 反应能在稍高于 Si 熔点的环境温度下快速进行^[46–47]。由于 RB—SiC 陶瓷(反应烧结)存在较多的 Si, 可以通过直接添加含碳化合物的方式实现 RB—SiC 陶瓷的连接^[48–49]。

Si—C 反应连接的原料来源广泛, 成本较低。表 2 总结了通过 Si—C 反应连接法连接 SiC 基陶瓷的实例。碳源可以是碳粉、碳纤维、石油焦和树脂类有机物, 还可以是纸张等, 硅源主要是硅粉和 RB—SiC 基体的残余 Si 等^[25, 48–49]。此外, 为了减少连接层的孔洞, 可以加入 SiC 作为惰性填料^[25, 50–51]。

不同于 NITE 相连接, Si—C 反应连接的所需的连接温度较低(通常小于 $1500\text{ }^\circ\text{C}$), 无需连接压力, 详细连接工艺如表 2 所示。如 Rabin 等^[25]使用 SiC—C—Si 混合粉体在 $1480\text{ }^\circ\text{C}$ 保温 15 min 无压烧结条件下实现 RB—SiC 陶瓷的连接。Luo 等^[52]使用 $\alpha\text{-SiC}$ 粉末和炭黑在 $1480\text{ }^\circ\text{C}$ 保温 30 min 无压烧结条件下实现了 RB—SiC 陶瓷的连接。Sung 等^[49]以纸张作为碳源在 $1480\text{ }^\circ\text{C}$ 保温 $10\sim60\text{ min}$ 无压烧结条件下实现了 RB—SiC 陶瓷的连接。

表 2 Si—C 反应连接法连接 SiC 基陶瓷的实例

Table 2 Examples of joining of SiC-based ceramics by Si—C reaction joining

Joining material	Matrix	Joining condition			Joint strength/MPa ^a	Reference
		Temperature/ $^\circ\text{C}$	Holding time/min	Atmosphere		
SiC, C, Si	RB—SiC	1480	15	Vacuum		[25]
C, Si	RB—SiC	1425	5–10		750	[45]
C, Si	RB—SiC	1250–1450	5–10		202	[48]
C	RB—SiC	1500	10	Vacuum	246	[49]
$\alpha\text{-SiC}$, coke	RB—SiC	1500–1550	30	N_2	107.53	[50]
SiC, C	PLS—SiC	1450	30	Vacuum	346	[52]
$\alpha\text{-SiC}$, PF, Si	C_f/SiC	1600		Vacuum	210	[54]
C, Si	$\text{SiC}_f/\text{SiC}_m$	1425	5–10		78	[55]
C, Si	RB—SiC	1425	5–10		210	[55]
C, Si, EP	SiC green	1450		Vacuum	300	[56]

为促进渗硅反应的进行, 同时避免硅被氧化和保护基体, Si—C 反应连接通常在真空环境中进行^[25, 49, 52–54], 也有研究者使用 N_2 作为反应气氛^[50]。Si—C 反应连接通常在真空电阻炉或钎焊炉中进行^[50–51, 53]。

1.3 前驱体连接

前驱体连接 SiC 过程中, 前驱体聚合物转变为

SiC 一般分为低温交联固化和高温热解 2 个过程, 其示意图如图 1c 所示。以聚碳硅烷(PCS)连接 SiC 陶瓷为例^[57–58], PCS 在 $200\sim250\text{ }^\circ\text{C}$ 的温度范围内进行交联固化, 此时 PCS 高分子化合物的支链通过化学反应结合成一个巨大分子的固态化合物, 总质量无明显变化, 连接层与母材的结合方式为粘接; 随着温度的升高, 前驱体聚合物裂解形成非晶态 SiC,

此时连接层产生气态物质, 总质量降低, 当温度升高至 762 °C, 非晶态 SiC 开始向晶态 β -SiC 转变, 当温度升至 1 500 °C 保温 2 h 时完全转变为 β -SiC, 在裂解过程中, 连接层与 SiC 进行键合反应, 形成稳固的接头^[26, 59]。

目前, 已有多种前驱体聚合物用于 SiC 及其复合材料的连接, 除 PCS 外, 还包括聚硅烷(PS)、聚硅氧烷(PSO)、液态聚甲基硅烷(V-PMS)、聚硅氮烷(PSZ)、聚硼硅氮烷(B-PMS)、液态聚碳硅烷(LPCS)、烯丙基氢化聚碳硅烷(AHPCS)、超支化氢化聚碳硅烷(HPCS)、硅树脂(SR)及各种 PCS 衍生聚合物等^[26, 59-74]。Wang 等^[65]使用 B-PMS 并添加 Al 粉作为填料连接 SiC 陶瓷, 研究发现, 在 400 °C 固化过程中生成 Si—CH₂—Si 大分子结构, 在 800 °C 热处理时有机物完全转变为无机物, 当热处理温度升至 1 000 °C 以上, 热解反应完全, 相组成为 Si—O、Si—C 和 Si—N。Tang 等^[68]以 PCS 为主相、二茂铁为催化剂, SiC、C 和 Si 作为填料连接 SiC 陶瓷, 在 1 300 °C 时生成气态物质 CH₄、SiH₄ 和 CH₃SiH₃, 这些物质反应生成 SiC 纳米线, 同时 SiC 纳米线以及 PCS 裂解生成的 β -SiC 分离接头中的残余 Si, 减少 Si 聚集, 提高了接头的力学性能。

类似于 Si—C 反应连接, 前驱体连接的工艺较温和。Colombo 等^[59]使用商用硅树脂 SR350 在 1 200 °C 和无压条件下实现了 RB-SiC 陶瓷的连接; Liu 等^[69]使用 PSZ 在 1 250 °C 和无压条件下实现了 C_f/SiC 复合材料的连接。前驱体连接对于低温交联固化的气氛要求不高, 一般是空气或者是保护性气氛(如氩气和氮气)^[59, 61-64, 71]。基于前驱体聚合物的特性和保护母材不被高温氧化, 通常在高温裂解阶段在真空环境中进行^[66-67], 或使用 Ar 和 N₂ 等惰性气氛。热处理设备一般为成本较低的碳管炉、常规管式炉、微波炉、氩气炉和马弗炉等^[62-63, 66, 72]。

1.4 比较

NITE 相连接是基于液相烧结机理, 以纳米级 SiC 粉末以及氧化物烧结助剂作为连接层材料, 在一定温度和压力下连接层与 SiC 基体间发生紧密共烧而实现 SiC 陶瓷的连接, 然而, 所需的高温高压条件($t > 1\,500\text{ }^{\circ}\text{C}$, $p > 10\text{ MPa}$)限制了 NITE 相连接工程化应用。

Si—C 反应连接是通过 Si 和 C 反应实现 SiC 陶瓷的连接, 其连接层原料来源较为广泛, 所需的连接温度比较低(一般 $< 1\,500\text{ }^{\circ}\text{C}$); 前驱体连接是通过 SiC 前驱体聚合物在高温下裂解形成 SiC, 与 SiC 基

体键合而实现 SiC 陶瓷的连接, 通常需要低温交联固化以及高温裂解 2 个过程, 连接过程相对复杂。相比于 NITE 相连接, Si—C 反应连接和前驱体连接均能在低温低压、甚至无压的条件下实现 SiC 陶瓷的连接, 这 2 种连接方法均有良好的工艺性。

2 接头成分与微观结构

2.1 NITE 相连接

通过 NITE 相连接制备的接头除主相 SiC 以外, 其它成分主要取决于烧结助剂种类。如 Katoh 等^[43]以纳米 SiC 为主相、以 Al₂O₃—Y₂O₃—SiO₂ 为烧结助剂在 1 900 °C 和 20 MPa 保温 1 h 的条件下连接 SiC 陶瓷, 研究发现, 接头的主相为 SiC, 其余相为 Y₃Al₅O₁₂ 和未反应的 Al₂O₃。Niu 等^[24]以纳米 SiC 为主相、以 Al₂O₃—Ho₂O₃ 为烧结助剂在 1 600~1 800 °C 和 20 MPa 保温 10 min 条件下连接 SiC 陶瓷, 研究发现, 接头主相为 β -SiC, 仅含有第二相 HoAlO₃。Wu 等^[42]以纳米 SiC 为主相、以 Al₂O₃—CeO₂ 为烧结助剂, 在 1 600~1 700 °C 和 20 MPa 保温 10 min 的连接条件下研究了 SiC 接头的相组成, 结果显示, 接头主相为 β -SiC, 仅含有第二相 CeAlO₃。

通过 NITE 相连接得到的接头致密度高, 与基体间的结合紧密, 由于采用纳米粉体作为连接层材料, 接头处的晶粒尺寸小, 典型的接头微观结构示意图如图 1a 所示。如 Niu 等^[24]使用 SiC—Al₂O₃—Ho₂O₃ 作为连接层材料在 1 700 °C 和 20 MPa 的连接条件下制备的 NITE 相接头晶粒尺寸小、致密度高, 如图 2a 所示。Wu 等^[42]使用 Al₂O₃—CeO₂ 作为烧结助剂在 1 500~1 700 °C 和 20 MPa 条件下连接 SiC 陶瓷时生成的 CeAlO₃ 扩散至基体中, 同时在 1 500 °C 时制备的接头的裂纹扩展路径从连接层延伸至基体中, 表明形成了强结合界面, 如图 2b 所示。

NITE 相接头可能存在烧结助剂的富集区域。Hinoki 等^[37]使用 Al₂O₃—Y₂O₃ 作为烧结助剂通过 NITE 相连接于 1 800 °C 和 20 MPa 的条件下制备的接头中存在富 Al 和富 Y 区域; Jung 等^[22]使用 Al₂O₃—Y₂O₃—SiO₂ 在 1 800 °C 和 20 MPa 的条件下连接 SiC 陶瓷, 研究发现, 连接层存在较多的氧化物富集区域; Katoh 等^[43]使用 Al₂O₃—Y₂O₃—SiO₂ 作为烧结助剂在 1 900 °C 和 20 MPa 条件下连接 SiC/SiC 复合材料发现连接界面处存在富氧化物带, 如图 2c 所示, 连接层与基体间的结合依然非常紧密, 在母材预置裂纹, 裂纹扩展贯穿基体和连接层, 说明富氧化物区域对接头强度的影响较小。

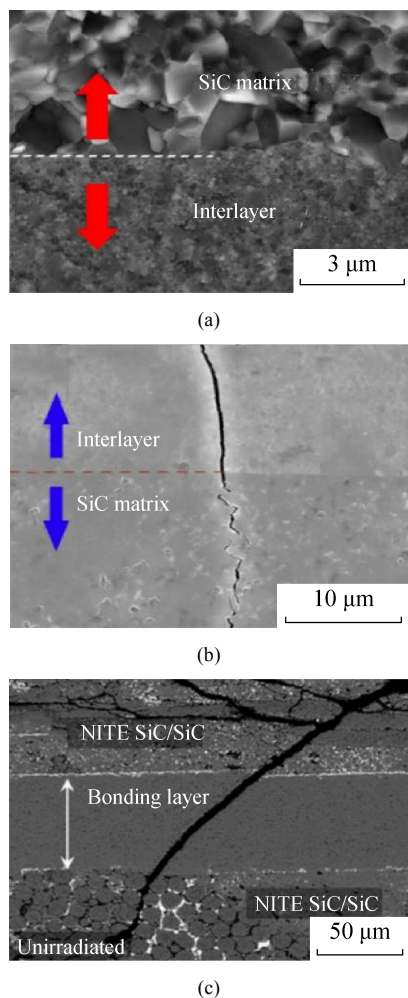


图2 (a) 使用 $\text{SiC-Al}_2\text{O}_3\text{-Ho}_2\text{O}_3$ 在 $1700\text{ }^\circ\text{C}$ 制备的 SiC 陶瓷接头微观结构^[24]; (b) 使用 $\text{SiC-Al}_2\text{O}_3\text{-CeO}_2$ 在 $1500\text{ }^\circ\text{C}$ 制备的接头裂纹扩展路径^[42]; (c) 使用 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Y}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 在 $1900\text{ }^\circ\text{C}$ 连接 SiC/SiC 复合材料得到的接头 SEM 照片^[43]

Fig. 2 (a) Microstructure of SiC joints prepared at $1700\text{ }^\circ\text{C}$ using $\text{SiC-Al}_2\text{O}_3\text{-Ho}_2\text{O}_3$ ^[24]; (b) Crack propagation path of joint prepared at $1500\text{ }^\circ\text{C}$ using $\text{SiC-Al}_2\text{O}_3\text{-CeO}_2$ ^[42]; (c) SEM images of SiC/SiC composites joints using $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Y}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ at $1900\text{ }^\circ\text{C}$ ^[43]

2.2 Si—C 反应连接

Si—C 反应连接法制备的接头的成分相对稳定,除了主相为 SiC 外,通常含有 Si 或 C。Wang 等^[53]使用多孔 C 预制体和 Si 在 $1550\text{ }^\circ\text{C}$ 连接 SiC 陶瓷。研究表明,接头成分除主相 SiC 外,还有较多的残余 Si。Wu 等^[54]研究使用 SiC、C 预制体以及 Si 作为连接层材料对连接 C_f/SiC 陶瓷的接头成分的影响。结果表明,接头的主相为 SiC,并且存在少量的残余 Si 和未反应的 C。Sung 等^[49]研究了纸张作为 C 源连接 RB—SiC 陶瓷。结果表明,接头的主相为 SiC,还存在 C 和从基体渗入连接层中的 Si。

Si—C 反应接头的致密度较高,仅含少量的孔洞,其接头结构示意图如图 1b 所示,其中 Si 相和 SiC 相的含量与分布是 Si—C 反应接头最重要的微观结构之一,是接头性能的主要影响因素。如 Singh^[48]在 $1250\sim 1450\text{ }^\circ\text{C}$ 通过 Si—C 反应连接 RB—SiC 陶瓷。研究表明,在制备的 3 种厚度 Si—C 反应接头中,如图 3a~图 3c 所示,厚接头(约 $350\text{ }\mu\text{m}$)中富含游离 Si,存在孔洞和间隙,薄接头 $50\sim 55\text{ }\mu\text{m}$ 中富含 SiC 相,连接层的致密度高,接头的使用温度可达 $1350\text{ }^\circ\text{C}$; Fernández 等^[45]通过液态渗硅法在 $1425\text{ }^\circ\text{C}$ 时制备的 Si—C 反应接头中游离 Si 的含量为 7.3%,小于 RB—SiC 基体(10.5%),接头处 Si 相分布均匀,没有明显孔洞,接头的失效位置在基体中;Wu 等^[54]通过渗硅法在 $1600\text{ }^\circ\text{C}$ 连接 C_f/SiC 复合材料。研究表明,连接层的 Si 含量高于基体,存在

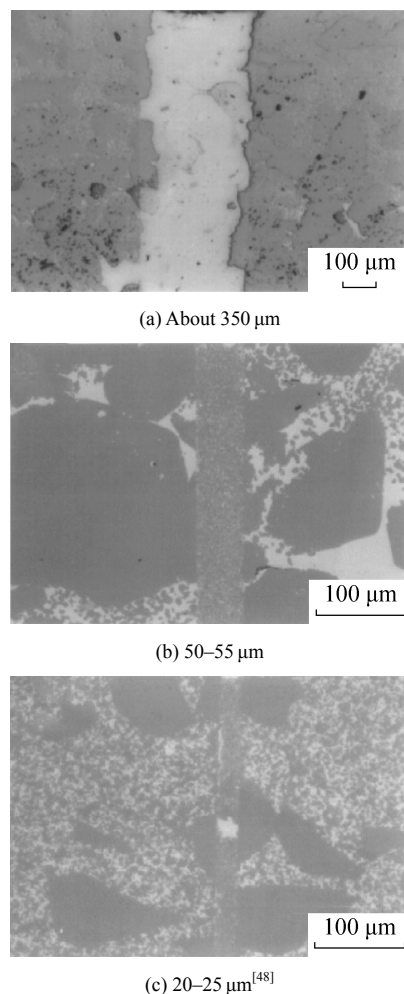


图3 使用 SiC 和 Si 在 $1250\sim 1450\text{ }^\circ\text{C}$ 连接 RB—SiC 陶瓷得到的 3 种厚度的接头 SEM 照片

Fig. 3 SEM photographs of 3 kinds of thickness joints obtained by joining RB—SiC ceramics with SiC and Si at $1250\sim 1450\text{ }^\circ\text{C}$

Si 聚集区域, 接头的断裂失效位置位于连接层。渗硅不充分或熔融硅的蒸发是 Si—C 反应接头中存在孔隙的主要原因。通过控制连接条件(温度和真空度等)能减少孔洞的产生, 从而改善接头的成分和微观结构。

2.3 前驱体连接

尽管前驱体连接的连接层主相为 SiC, 前驱体聚合物的种类和配比、填料种类以及连接工艺仍显著影响 SiC 陶瓷接头的相组成、SiC 结晶程度及含量。Liu 等^[69]以 PSZ 为前驱体, 研究不同温度对连接 C_f/SiC 复合材料的影响, 研究发现, 在 3 种温度(1 100、1 250 °C 和 1 400 °C)时接头的主相均为 SiC, 第二相为 Si₃N₄, 随着温度升高, SiC 结晶相增多。Li 等^[66]使用 PSO 作为主相、Al—Si 作为填料在 1 000 °C 连接 SiC 陶瓷, 发现接头成分除主相 SiC, 还含有 Al₂O₃ 和 Si 单质。Jeong 等^[72]研究了不同质量配比 PCS/PSZ(100/0、75/25、50/50、25/75 和 0/100)对 SiC 陶瓷接头成分的影响。结果表明, 随着 PCS 含量增加, 接头成分主相均为 SiC; 而第二相 Si₃N₄ 的含量降低, 在质量配比 PCS/PSZ=75/25 时完全消失。

前驱体聚合物在高温裂解时会产生气体并发生较大的体积收缩, 易导致连接层产生孔洞和微裂纹等, 连接层的典型微观结构示意图如图 1c 所示。Lewinsohn 等^[55]使用 HPCS 连接 SiC 陶瓷发现接头断裂面存在较多裂纹, 连接层的致密度较低, 如图 4a 所示。为了减少连接层的裂纹和孔洞缺陷, 提升致密性和接头性能, 可以在聚合物中添加惰性填料抑制聚合物的收缩, 或者添加活性填料与裂解生成的气体反应造成的体积膨胀, 抵消聚合物裂解产生的体积收缩, 常用的惰性填料包括 Si₃N₄、BN、AlN 和 SiC 等^[61-62, 68, 76-78], 常用的活性填料有 Ti、Cr、B、MoSi、Ta、Al 和 Si 等^[69, 76-78]。Zheng 等^[61]通过使用 PCS 聚合物并添加 SiC 填料连接 SiC 生坯, 进一步改善显微结构, 但是连接层仍然存在较多孔洞, 如图 4b 所示; Wang 等^[62]使用 V—PMS 在 1 000 °C 时连接 SiC 陶瓷, 得到的接头存在较多的孔洞, 通过添加 B₄C 填料在 1 200 °C 进行连接, 接头的孔洞和裂纹减少, 接头性能得到提升。

2.4 比较

1) NITE 相连接是以纳米 SiC 作为主相以及少量氧化物作为烧结助剂, 接头成分相对稳定, 较少出现脆性相, 接头几乎不存在孔洞, 连接层与基体间的结合紧密, 接头具有很高的气密性。

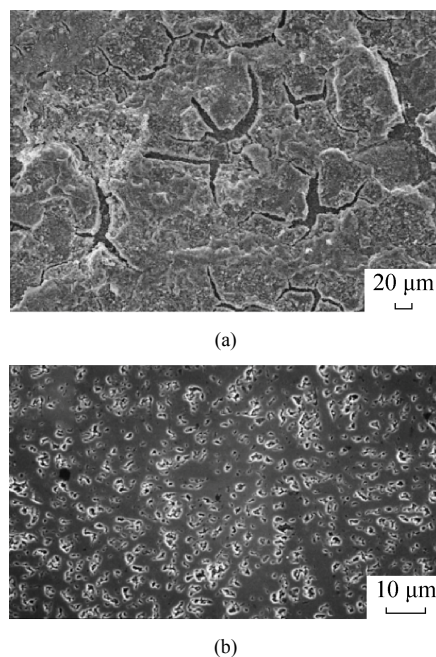


图 4 (a)使用 HPCS 连接 SiC 陶瓷接头断裂面 SEM 照片^[73]; (b)使用 PCS 和 SiC 连接 SiC 陶瓷接头断裂面 SEM 照片^[61]

Fig. 4 (a) SEM images of fracture surface of SiC ceramic joint using HPCS^[73]; (b) SEM images of fracture surface of SiC ceramic joints using PCS and SiC^[61]

2) Si—C 反应连接制备的接头成分类型比较稳定, 然而可能存在残余 Si 和 C 以及少量孔洞, 不利于接头的高温性能, 降低接头的可靠性。应设法降低接头中残余 Si 和 C 含量, 同时对接头进行多次渗硅处理以降低接头的孔隙度。

3) 因裂解产物为主相 SiC 的前驱体聚合物种类较多, 通过前驱体连接制备的接头成分较为复杂; 前驱体接头存在较多孔洞和孔隙, 连接层与基体间的结合性较差。通过在前驱体聚合物中添加惰性或活性填料以提高连接层的致密度, 同时提升连接层与基体间的结合度。

3 连接强度

3.1 NITE 相连接

在以 SiC 为连接层主相的 SiC 陶瓷连接方法中, NITE 相连接具有优异的连接强度, 如表 1 所示。Jung 等^[22]以纳米 SiC 为主相、SiO₂—Al₂O₃—Y₂O₃ 为烧结助剂在 1 800 °C 和 10 MPa 的条件下连接 SiC 陶瓷, 接头剪切强度达 249 MPa。Kotah 等^[41]使用 Al₂O₃—Y₂O₃—ZrO₂ 在 1 850 °C 和 10 MPa 连接 SiC/SiC, 接头的剪切强度高达 320 MPa。Kotah 等^[43]使用 SiO₂—Al₂O₃—Y₂O₃ 作为烧结助剂在 1 900 °C 和 20 MPa 的条件下连接 SiC 陶瓷, 接头剪切强度高达

335 MPa。Kim 等^[23]使用 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{--Y}_2\text{O}_3\text{--MgO}$ 为烧结助剂在 1 850 °C 和 20 MPa 条件下进行连接, 接头抗弯强度达 343 MPa。

烧结助剂和连接层厚度是影响 NITE 相接头强度的重要因素。如在 1 700 °C 和 20 MPa 的连接条件下, Wu 等^[42]以纳米 SiC 为主相、以 $\text{SiO}_2\text{--Al}_2\text{O}_3\text{--Y}_2\text{O}_3$ 为烧结助剂, 连接 SiC 陶瓷制备的接头剪切强度为 104.2 MPa, 以 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{--Y}_2\text{O}_3$ 为烧结助剂制备的接头的强度为 115.0 MPa。而以 $\text{CeO}_2\text{--Al}_2\text{O}_3$ 为烧结助剂制备的 SiC 接头强度则达到 163.9 MPa, 相比 $\text{SiO}_2\text{--Al}_2\text{O}_3\text{--Y}_2\text{O}_3$ 和 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{--Y}_2\text{O}_3$, $\text{CeO}_2\text{--Al}_2\text{O}_3$ 体系的熔点更低, 在 1 700 °C 时形成的液相更充分, 促进纳米 SiC 烧结。Wu 等^[42]以 $\text{CeO}_2\text{--Al}_2\text{O}_3$ 为烧结助剂, 在 1 500 °C 和 20 MPa 的条件下连接 SiC 陶瓷, 当连接层厚度为约 70 μm 时, 接头的孔洞和间隙较多, 与基体间的结合不紧密, 接头的剪切强度为 57.4 MPa, 失效发生在连接界面, 将厚度降至约 35 μm 时, 连接层致密度提高, 孔洞减少, 接头强度达 113.2 MPa, 失效发生在基体中。

3.2 Si—C 反应连接

通过 Si—C 反应连接得到的接头存在少量孔洞, 连接层与基体间的结合较为紧密, 接头的强度较高。如 Singh^[48]使用 Si 和 C 在 1 250~1 425 °C 和 5~10 min 的条件下连接 RB—SiC 陶瓷, 得到的接头致密度高, 其抗弯强度达 202 MPa。Zhang 等^[56]使用 Si、C 和环氧树脂作为连接层材料在 1 450 °C 时连接 SiC 生坯, 接头处无微裂纹或缺陷, 其抗弯强度达 300 MPa, 失效位于基体处。Wu 等^[54]使用 SiC、C 预制体和 Si 在 1 600 °C 连接 C_f/SiC 复合材料, 所制备的接头抗弯强度为 210 MPa。

连接层的厚度以及后续的热处理方式影响 Si—C 反应接头中相分布和微观结构, 进而影响接头的强度。如 Singh^[48]使用 C 和 Si 或 Si 胶带连接 RB—SiC 陶瓷, 并通过胶带厚度来控制连接层厚度, 研究发现, 厚接头(约 350 μm)的连接层中富含 Si, 仅含有少量的 SiC, 抗弯强度仅为 44 MPa, 而厚度为 50~55 μm 和 20~25 μm 的薄接头则显示含有较多的 SiC, 接头强度分别达到 157 MPa 和 202 MPa。Sung 等^[49]并通过纸张(C 源)数量控制连接层厚度, 在 1 500 °C 和 10 min 条件下连接 RB—SiC 陶瓷, 研究发现, 薄接头(27 μm)中连接层的残余 C 较少, 几乎没有孔洞, 与基体结合紧密, 其抗弯强度达 246 MPa, 而厚接头(253 μm 和 380 μm)中存在较多残余 C, 孔洞和间隙多, 两者强度均低于 30 MPa。

Luo 等^[52]使用 SiC 和 C 在 1 450 °C 连接 PLS—SiC 陶瓷(无压烧结), 通过控制浆料厚度控制连接层厚度, 研究发现, 薄接头(13 μm)的致密度高, SiC 相分布均匀, 其抗弯强度达到 346 MPa, 厚接头(198 μm)存在明显微裂纹, 强度仅为 65 MPa, 两者的失效均位于连接层, 经 1 200 °C 保温 2 h 于空气热处理后, 接头的微裂纹愈合, 薄接头(13 μm)的强度增加到 439 MPa, 失效位置在基体中。上述研究显示, 降低连接层厚度和后续高温热处理有助于提升 Si—C 反应接头的连接强度。

3.3 前驱体连接

由于前驱体聚合物在连接过程中会生成气态物质, 造成体积收缩, 连接层存在较多的孔洞和裂纹, 如图 4a 和图 4b 所示, 因此前驱体接头的强度较低。如 Colombo 等^[59]使用硅树脂在 1 200 °C 保温 2 h 条件下连接 SiC/SiC_f 复合材料, 得到的接头剪切强度仅为约 6.5 MPa。Liu 等^[69]使用 PSZ 在 1 250 °C 连接 C_f/SiC 复合材料, 得到的接头的剪切强度仅为 15.1 MPa。

为了提升前驱体接头的强度, 可以通过选择高 SiC 产率的前驱体聚合物、添加填料以及多次浸渍热解增强处理的方式来提升接头强度。如 Wang 等^[63]使用高 SiC 产率的 V—PMS(产率 91.6%) 在 1 000 °C 连接 SiC 陶瓷, 接头的剪切强度为 31.7 MPa。Colombo 等^[59]使用硅树脂连接 SiC/SiC_f 陶瓷, 所得接头的剪切强度小于 4 MPa, 当加入 Al—Si 活性填料(约 37%, 质量分数)时, 接头剪切强度增加到 17.4 MPa。Liu 等^[69]使用 PSZ 连接 C_f/SiC 后, 再对其进行 3 次 PIP 处理后, 接头剪切强度从 15.1 MPa 提升至 27.78 MPa。Colombo 等^[73]使用 AHPCS 对采用前驱体法连接 SiC 陶瓷得到的接头进行 0~4 次浸渍热解, 所得接头剪切强度从约 12 MPa 上升到约 29 MPa。

3.4 比较

1) 在 NITE 相连接过程中, 烧结助剂促进纳米 SiC 自身烧结致密化, 并实现连接层与母材的高强度连接。

2) Si—C 反应接头通常采用渗硅法进行连接, 硅填充连接层的孔洞, 并与 C 反应形成 SiC, 缺陷较少, 接头强度较高。通过调节接头的相组成和分布、重复渗硅处理以及后续热处理等方式可以提升接头的致密度, 进一步提高接头的强度。

3) 由于前驱体连接层易形成孔洞, 接头的强度较低。通过选择高产率的前驱体聚合物、在聚合物

中添加填料以及进行多次浸渍热解增强处理等方式,能够在一定程度提升接头的强度,但是相比于 NITE 相连接和 Si—C 反应连接的接头,前驱体连接的接头强度仍然较低。

4 总结与展望

以 SiC 为连接层主相的 SiC 陶瓷连接具有与基体的热膨胀系数相近、连接强度高、接头应力小、抗辐照和耐化学腐蚀的优点,所得接头在高温、热冲击和化学腐蚀环境的工作场合具有较好的应用潜力。

本工作从连接机理与连接工艺、接头成分与微观结构、连接强度等方面,对 3 种以 SiC 为连接层主相的 SiC 陶瓷连接方法(NITE 相连接、Si—C 反应连接和前驱体连接)进行了详细梳理和总结。

NITE 相连接制备的接头致密度高、气密性良好,连接强度高。此外,Kotah 等和 Bragg-Sitton 的研究均表明,NITE 相接头具有出色的抗中子辐照性能,能满足高温、高压和水热腐蚀等严苛环境的需求^[41, 44]。然而,NITE 相连接所需的高温高压的连接条件不利于形状复杂的结构件连接,在一定程度上限制了 NITE 相连接的工程应用。因此,通过引入低温烧结助剂和优化连接层厚度等有效手段,在保证连接性能的前提下,尽可能地降低 NITE 相连接的温度和压力,推动 NITE 相连接的工程化应用。

Si—C 反应连接的原料来源广泛,连接能在低温、无压中进行可以避免损伤基体,同时连接层的致密度高,接头强度高,具有良好的工艺性。然而,目前的连接基体主要为 RB—SiC 陶瓷,对于其他 SiC 基陶瓷(如 CVD—SiC、PLS—SiC 和 SiC 基陶瓷复合材料等)的连接研究还需要进一步研究。此外,由于 Si—C 反应接头的强度主要受制于 Si 相的含量与分布,同时游离 Si 不利于接头的高温性能和辐照稳定性。因此,通过优化连接工艺减少连接层中残余 Si 的含量与聚集,从而提升连接性能。

与 Si—C 反应连接类似,前驱体连接同样具有低温低压的优势,对气氛和设备的要求不高,可供选取的前驱体聚合物种类多,应用较为广泛。然而,前驱体的热解过程与母材 SiC 陶瓷的化学键合过程机理复杂,接头存在较多的孔洞和微裂纹,连接层自身强度较低,导致接头强度较低。一般认为,引入填料是解决或缓解上述问题的有效手段,但是前驱体和填料种类繁多,应用于 SiC 陶瓷连接时往

往表现出不同的性态,导致连接性能上的差异。因此,为获得具有良好的前驱体连接件,需要深入开展连接机理、成分及性能的关系研究和连接工艺的优化。

总之,NITE 相连接、Si—C 反应连接和前驱体连接 3 种连接方法及其连接件在连接工艺和接头性能方面各有优缺点。为了实现 SiC 陶瓷的低温、低压以及高强度连接,将 2 种及以上以 SiC 为连接层主相的 SiC 陶瓷连接方法耦合用于 SiC 陶瓷的连接,是一种具有应用前景的手段,如 NITE 相连接耦合 Si—C 反应连接等。

参考文献:

- [1] 吴芸紫,简科,谢征芳. 烧结温度对 SiC 纤维结构及性能的影响[J]. 硅酸盐学报, 2016, 44(3): 397–402.
WU Yunzi, JIAN Ke, XIE Zhengfang. J Chin Ceram Soc, 2016, 44(3): 397–402.
- [2] KOYANAGI T, KATOH Y, NOZAWA T, et al. Recent progress in the development of SiC composites for nuclear fusion applications[J]. J Nuc Mater, 2018, 511: 544–555.
- [3] 黄竑翔,王峰,贺智勇,等. 热压烧结工艺制备 C/SiC 复合材料的抗烧蚀性能[J]. 硅酸盐学报, 2021, 49(12): 2629–2635.
HUANG Hongxiang, WANG Feng, HE Zhiyong, et al. J Chin Ceram Soc, 2021, 49(12): 2629–2635.
- [4] WANG J, CAO L Y, ZHANG Y H, et al. Effect of mass transfer channels on flexural strength of C/SiC composites fabricated by femtosecond laser assisted CVI method with optimized laser power[J]. J Adv Ceram, 2021, 10(2): 227–236.
- [5] 杨会永,徐彬,陈典,等. SiC/SiC 复合材料抗氧化界面相的研究现状及展望[J]. 硅酸盐学报, 2021, 49(7): 1446–1456.
YANG Huiyong, XU Bin, CHEN Dian, et al. J Chin Ceram Soc, 2021, 49(7): 1446–1456.
- [6] ROSSI G A, PELLETIER P J. Joining of SiC parts by polishing and hipping[P]. US Patent, 4925608, 1990–5–15.
- [7] GRASSO S, TATARKO P, RIZZO S, et al. Joining of β -SiC by spark plasma sintering[J]. J Eur Ceram Soc, 2014, 34(7): 1681–1686.
- [8] LI H X, KOYANAGI T, ANG C, et al. Electric current-assisted direct joining of silicon carbide[J]. J Eur Ceram Soc, 2021, 41(5): 3072–3081.
- [9] LI S J, MAO Y W, HE Y H. Joining of SiC ceramic by high temperature brazing using Ni—Cr—SiC powders as filler[J]. Key Eng Mater, 2007, 336: 2394–2397.
- [10] LIU Y, QI Q, ZHU Y Z, et al. Microstructure and joining strength evaluation of SiC/SiC joints brazed with SiC_p/Ag—Cu—Ti hybrid tapes[J]. J Adhes Sci Technol, 2015, 29(15): 1563–1571.
- [11] ZHOU B F, FENG K Q. Zr—Cu alloy filler metal for brazing SiC ceramic[J]. RSC Adv, 2018, 8(46): 26251–26254.
- [12] CHEN Z B, HU S P, SONG X G, et al. Brazing of SiC ceramics pretreated by chromium coating using inactive AgCu filler metal[J]. Int J Appl Ceram Technol, 2020, 17(6): 2591–2597.
- [13] FAN S W, LIU J L, MA X, et al. Microstructure and properties of SiC_p/SiC joint brazed by Y—Al—Si—O glass[J]. Ceram Int, 2018, 44(7): 8656–8663.

- [14] 林盼盼, 于凯凯, 林铁松, 等. 锂霞石复合玻璃钎料连接碳化硅陶瓷接头的应力缓释机理[J]. 硅酸盐学报, 2020, 48(3): 408–415.
LIN Panpan, YU Kaikai, LIN Tiesong, et al. J Chin Ceram Soc, 2020, 48(3): 408–415.
- [15] SUN Z, CHEN X, MAO Y, et al. Joining of SiC ceramics using CaO–Al₂O₃–SiO₂ (CAS) glass ceramics[J]. J Eur Ceram Soc, 2020, 40(2): 267–275.
- [16] FANG J, ZHANG J, LIU C F, et al. A novel glass–ceramic with high crystallinity for joining of SiC ceramic[J]. Mater Lett, 2020, 277: 128318.
- [17] ZHOU X B, HAN Y H, SHEN X F, et al. Fast joining SiC ceramics with Ti₃SiC₂ tape film by electric field-assisted sintering technology[J]. J Nuc Mater, 2015, 466: 322–327.
- [18] VALENZA F, GAMBARO S, MUOLO M L, et al. Wetting of SiC by Al–Ti alloys and joining by *in-situ* formation of interfacial Ti₃Si(Al)C₂[J]. J Eur Ceram Soc, 2018, 38(11): 3727–3734.
- [19] FITRIANI P, SEPTIADI A, HYUK J D, et al. Joining of SiC monoliths using a thin MAX phase tape and the elimination of joining layer by solid-state diffusion[J]. J Eur Ceram Soc, 2018, 38(10): 3433–3440.
- [20] WAN P, LI M, XU K, et al. Seamless joining of silicon carbide ceramics through an sacrificial interlayer of Dy₃Si₂C₂[J]. J Eur Ceram Soc, 2019, 39(16): 5457–5462.
- [21] ZHOU X B, LIU J W, ZOU S R, et al. Almost seamless joining of SiC using an *in-situ* reaction transition phase of Y₃Si₂C₂[J]. J Eur Ceram Soc, 2020, 40(2): 259–266.
- [22] JUNG H C, PARK Y H, PARK J S, et al. R&D of joining technology for SiC components with channel[J]. J Nuc Mater, 2009, 386: 847–851.
- [23] KIM Y H, JANG S H, KIM Y W. Joining of silicon carbide ceramics using a silicon carbide tape[J]. Int J Appl Ceram Technol, 2019, 16(4): 1295–1303.
- [24] NIU W B, XUE J X, WU L X, et al. Low-temperature joining of SiC ceramics using NITE phase with Al₂O₃–Ho₂O₃ additive[J]. J Am Ceram Soc, 2020, 103(2): 731–736.
- [25] RABIN B H. Joining of fiber-reinforced SiC composites by *in situ* reaction methods[J]. Mater Sci Eng A, 1990, 130(1): L1–L5.
- [26] GREIL P. Active-filler-controlled pyrolysis of preceramic polymers[J]. J Am Ceram Soc, 1995, 78(4): 835–848.
- [27] NAKANO H, WATARI K, KINEMUCHI Y, et al. Microstructural characterization of high-thermal-conductivity SiC ceramics[J]. J Eur Ceram Soc, 2004, 24(14): 3685–3690.
- [28] KOVALČÍKOVÁ A, DUSZA J, ŠAJGALÍK P. Thermal shock resistance and fracture toughness of liquid-phase-sintered SiC-based ceramics[J]. J Eur Ceram Soc, 2009, 29(11): 2387–2394.
- [29] ZHANG K Q, ZHANG L, HE R J, et al. Joining of C_p/SiC ceramic matrix composites: A review[J]. Adv Mater Sci Eng, 2018, 2018: 6176054.
- [30] LIU G W, ZHANG X Z, YANG J, et al. Recent advances in joining of SiC-based materials (monolithic SiC and SiC_p/SiC composites): Joining processes, joint strength, and interfacial behavior[J]. J Adv Ceram, 2019, 8(1): 19–38.
- [31] YOON D H, REIMANIS I E. A review on the joining of SiC for high-temperature applications[J]. J Korean Ceram Soc, 2020, 57(3): 246–270.
- [32] SCITI D, BELLOSI A. Effects of additives on densification, microstructure and properties of liquid-phase sintered silicon carbide[J]. Mater Sci, 2000, 35(15): 3849–3855.
- [33] SHIMODA K, KOHYAMA A, HINOKI T. High mechanical performance SiC/SiC composites by NITE process with tailoring of appropriate fabrication temperature to fiber volume fraction[J]. Compos Sci Technol, 2009, 69(10): 1623–1628.
- [34] MULLA M A, KRSTIC V D. Pressureless sintering of β-SiC with Al₂O₃ additions[J]. Mater Sci, 1994, 29(4): 934–938.
- [35] DONG S, KATOH Y, KOHYAMA A. Preparation of SiC/SiC composites by hot pressing, using Tyranno-SA fiber as reinforcement[J]. J Am Ceram Soc, 2003, 86(1): 26–32.
- [36] KATOH Y, DONG S M, KOHYAMA A. Thermo-mechanical properties and microstructure of silicon carbide composites fabricated by nano-infiltrated transient eutectoid process[J]. Fusion Eng Des, 2002, 61: 723–731.
- [37] HINOKI T, EIZA N, SON S, et al. Development of joining and coating technique for SiC and SiC/SiC Composites utilizing NITE processing[J]. Ceram Eng Sci Proc, 2005, 26: 399–405.
- [38] KIRIANOV A, YAMAGUCHI A. Sintering and oxidation resistance of compositions in the SiC–La₂O₃–Al₂O₃–Cr₂O₃ system I. Pressureless sintering of compositions in the SiC–La₂O₃–Al₂O₃–Cr₂O₃ system at low temperatures[J]. Ceram Int, 2000, 26(4): 441–446.
- [39] SHIMODA K, KOHYAMA A, HINOKI T. High mechanical performance SiC/SiC composites by NITE process with tailoring of appropriate fabrication temperature to fiber volume fraction[J]. Compos Sci Technol, 2009, 69(10): 1623–1628.
- [40] YOON H K, JUNG H C, HINOKI T, et al. Characteristics of shear strength for joined SiC–SiC ceramics[J]. Trans Korean Soc Mech Eng A, 2014, 38(5): 483–487.
- [41] KATOH Y, KOYANAGI T, KIGGANS JR J O, et al. M3FT–16OR020202112–Report on viability of hydrothermal corrosion resistant SiC/SiC Joint development[R]. ORNL/TM–/274, Idaho Falls: INL, 2016.
- [42] WU L X, LIN R L, NIU W B, et al. Nano-infiltration and transient eutectic (NITE) phase joining SiC ceramics at 1500 °C[J]. Ceram Int, 2019, 45(18): 24927–24931.
- [43] KATOH Y, SNEAD L L, CHENG T, et al. Radiation-tolerant joining technologies for silicon carbide ceramics and composites[J]. J Nuc Mater, 2014, 448(1–3): 497–511.
- [44] BRAGG–SITTON S M. Light water reactor sustainability program status of silicon carbide joining technology development[R]. INL/EXT–13–30268, Idaho Falls: INL, 2013: 5.
- [45] FERNÁNDEZ J M, MUNOZ A, VARELA–FERIA F M, et al. Interfacial and thermomechanical characterization of reaction formed joints in silicon carbide-based materials[J]. J Eur Ceram Soc, 2000, 20(14–15): 2641–2648.
- [46] SCACE R I, SLACK G A. Solubility of carbon in silicon and germanium[J]. Chem Phys, 1959, 30(6): 1551–1555.
- [47] NESS J N, PAGE T F. Microstructural evolution in reaction-bonded silicon carbide[J]. J Mater Sci, 1986, 21(4): 1377–1397.
- [48] SINGH M. Microstructure and mechanical properties of reaction-formed joints in reaction-bonded silicon carbide ceramics[J]. J Mater Sci, 1998, 33(24): 5781–5787.
- [49] SUNG H W, KIM Y H, KIM D J. Joining of reaction bonded silicon carbide using self-infiltration of residual Si present in the RBSC. Ceram Int, 2020, 46(18): 28800–28805.
- [50] 李世斌, 吕振林, 高积强, 等. 反应连接碳化硅材料接头的力学和电性能[J]. 稀有金属材料与工程, 2003(8): 674–676.

- LI Shibin, LÜ Zhenlin, GAO Jiqiang, et al. Rare Met Mater Eng(in Chinese). 2003(8): 674–676.
- [51] 李世斌, 吕振林, 高积强, 等. 反应粘接碳化硅材料接头的研究[J]. 兵器材料科学与工程, 2003(1): 51–54.
- LI Shibin, LÜ Zhenlin, GAO Jiqiang, et al. Mater Sci Eng(in Chinese). 2003(1): 51–54.
- [52] 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]. J Eur Ceram Soc, 2012, 32(14): 3819–3824.
- [53] WANG Y X, TAN S H, JIANG D L. The fabrication of reaction-formed silicon carbide with controlled microstructure by infiltrating a pure carbon preform with molten Si[J]. Ceram Int, 2004, 30(3): 435–439.
- [54] WU X S, PEI BB, ZHU Y Z, et al. Joining of the C_f/SiC composites by a one-step Si infiltration reaction bonding[J]. Mater Charact, 2019, 155: 109799.
- [55] LEWINSOHN C A, SINGH M, SHIBAYAMA T, et al. Joining of silicon carbide composites for fusion energy applications[J]. J Nuc Mater, 2000, 283: 1258–1261.
- [56] Zhang A F, Chen Y C, Chen Z Q, et al. Joining of silicon carbide ceramic for optical application by reaction bonded technology[C]//JIANG W H ed. 5th International Symposium on Advanced Optical Manufacturing and Testing Technologies: Large Mirrors and Telescopes. International Society for Optics and Photonics, Dalian, China, 2010: 765410.
- [57] GUPTA R K, MISHRA R, KUMAR S, et al. Development of Polycarbosilane (PCS) Polymer and PCS-Derived SiC Fibers and Their Composites[M]//Mahajan, Y R ed. Handbook of Advanced Ceramics and Composites: Defense, Security, Aerospace and Energy Applications, Cham, Switzerland: Springer International Publishing, 2020: 913–928.
- [58] Zhao C C, Lin R L, Dai M M, et al. Facile joining of SiC ceramics with screen-printed polycarbosilane without pressure[J]. J Eur Ceram Soc, 2021, 41(3): 2157–2161.
- [59] COLOMBO P, RICCARDI B, DONATO A, et al. Joining of SiC/SiC_f ceramic matrix composites for fusion reactor blanket applications[J]. J Nuc Mater, 2000, 278(2-3): 127–135.
- [60] SHERWOOD W J, WHITMARSH C K, JACOBS J M, et al. Joining ceramic composites using active metal/HPCS preceramic polymer slurries[C]//SINGH J P ed. Proceedings of the 21st Annual Conference on Composites, Advanced Ceramics, Materials, and Structures: A: Ceramic Engineering and Science Proceedings. Hoboken, New Jersey, American Ceramic Society, 1997: 177–182.
- [61] ZHENG J, ÜNAL Ö, AKINC M. Green state joining of silicon carbide using polycarbosilane[J]. J Am Ceram Soc, 2000, 83(7): 1687–1692.
- [62] WANG X Z, WANG J, WANG H. Synthesis of a novel preceramic polymer (V–PMS) and its performance in heat-resistant organic adhesives for joining SiC ceramic[J]. J Eur Ceram Soc, 2012, 32(12): 3415–3422.
- [63] WANG X Z, WANG J, WANG H. Joining of SiC ceramics via a novel liquid preceramic polymer (V–PMS) [J]. Ceram Int, 2015, 41(6): 7283–7288.
- [64] KHALIFA H E, KOYANAGI T, JACOBSEN G M, et al. Radiation stable, hybrid, chemical vapor infiltration/preceramic polymer joining of silicon carbide components[J]. J Nucl Mater, 2017, 487: 91–95.
- [65] WANG X Z, SHI J, WANG H. Preparation, properties, and structural evolution of a novel polyborosilazane adhesive, temperature-resistant to 1600 °C for joining SiC ceramics[J]. J Alloys Compd, 2019, 772: 912–919.
- [66] LI S J, YUAN X K, ZHANG T, et al. Joining of SiC ceramic to high strength graphite using polysiloxane with active additive[J]. Key Eng Mater, 2007, 353–358: 2092–2095.
- [67] LI H, ZHANG L, CHENG L, et al. Effect of the polycarbosilane structure on its final ceramic yield[J]. J Eur Ceram Soc, 2008, 28(4): 887–891.
- [68] TANG M, LIU Y, ZHANG H, et al. Preparation and microstructure characterization of SiC/SiC joints reinforced by *in-situ* SiC nanowires[J]. Ceram Int, 2020, 46(8): 12559–12565.
- [69] LIU H L, LI S J, CHEN Z J. Joining of C_f/SiC ceramic matrix composite using SiC–Si₃N₄ preceramic polymer[J]. Mater Sci Forum., 2005, 475: 1267–1270.
- [70] HENAGER JR C H, SHIN Y, BLUM Y, et al. Coatings and joining for SiC and SiC-composites for nuclear energy systems[J]. J Nuc Mater, 2007, 367: 1139–1143.
- [71] SUO J, CHEN C H, ZHENG W W, et al. Effects of pyrolysis temperature and fillers on joining of ceramics *via* silicone resin[J]. Trans. Nonferrous Met. Soc. China, 2005, 15(6): 1322–1327.
- [72] JEONG D H, SEPTIADI A, FITRIANI P, et al. Joining of SiC_f/SiC using polycarbosilane and polysilazane preceramic mixtures[J]. Ceram Int, 2018, 44(9): 10443–10450.
- [73] COLOMBO P, DONATO A, RICCARDI B, et al. Joining SiC-based ceramics and composites with preceramic polymers[J]. Ceram Trans (USA), 2002, 144: 323–334.
- [74] Zhou B F, Feng K Q, Zhou H L. Joining of SiC ceramic by using the liquid polyvinylphenylsiloxane[J]. Adv Appl Ceram, 2018, 117(4): 212–216.
- [75] 刘洪丽, 李树杰, 张听, 等. 采用SiC/Si₃N₄陶瓷先驱体连接反应烧结SiC[J]. 稀有金属材料与工程, 2005(9): 1469–1472.
- LIU Hongli, LI Shujie, ZHANG Ting, et al. Rare Met Mater Eng(in Chinese), 2005(9): 1469–1472.
- [76] LEE D H, JANG H W, KIM D J, et al. Joining of RBSiC using a preceramic polymer with Al[J]. Adv Appl Ceram Res, 2009, 10(3): 263–265.
- [77] LU Y W, ZHANG Y D, HU H F, et al. Online-joining of C/SiC–C/SiC *via* precursor infiltration and pyrolysis process[J]. Key Eng Mater, 2008, 368–372(p.2): 1044–1046.
- [78] SUO J, CHEN Z H, HAN W M, et al. Joining of 3D-C_f/SiC composites *via* silicone resin as precursor-influence of pyrolysis temperature and inert fillers[J]. Rare Metal Mater Eng, 2005, 34: 298–301.