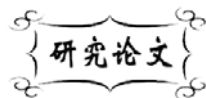


中图分类号: TB33
文献标识码: A

文献编号: 1005-1198 (2017) 01-0048-09
DOI: 10.16253/j.cnki.37-1226/tq.2016.12.001



电流辅助加热条件下 $\text{Ti}_3\text{AlC}_2/\text{Zr}$ 连接界面研究

杨 辉^{1,2}, 卢 博^{1,3}, 杨贤金³, 史 文², 周小兵¹,
李 鹏¹, 黄 峰¹, 黄 庆¹

¹ 中国科学院宁波材料技术与工程研究所, 浙江 宁波 315201

² 上海大学 材料科学与工程学院, 上海 200072

³ 天津大学 材料科学与工程学院, 天津 300072

摘 要: 采用电场辅助加热技术实现了 $\text{Ti}_3\text{AlC}_2/\text{Zr}$ 的低温连接, 并对其界面结构进行了研究。在 TAC/Zr 连接对中, Al 的扩散激活能只有 6.9 kJ/mol, 远低于传统的热压方法连接 $\text{Ti}_2\text{AlC}-\text{Zr}$ 时 Al 的扩散激活能。TiC 做过渡层时可以有效地抑制 Al 从 Ti_3AlC_2 一侧向 Zr 合金中扩散, 并且可以进一步降低连接温度。研究发现, 通过调控 TiC 涂层的计量比以调控连接界面的性能是完全有可能的。

关键词: Ti_3AlC_2 ; 扩散连接; 电场辅助; TiC 中间层

陶瓷及陶瓷基复合材料是一类非常有发展前景的高温结构材料, 它们具有良好的耐高温、耐腐蚀、耐磨损性能。但是与金属材料相比, 其塑性、韧性、机械加工性、抗热震性能和使用可靠性都很差^[1,2]。因此, 很多工作致力于实现金属和陶瓷的综合利用, 以充分发挥它们各自的优良性能并实现优势互补。

目前实现陶瓷和金属连接的方法很多, 如钎焊、扩散连接、瞬时液相连接等。钎焊是一种传统的连接方法, 该方法具有连接接头性能稳定、可靠性高、使用面广等优点, 但是由于金属和陶瓷之间的润湿性很差, 需要选择合适的钎料来实现可靠连接。目前常用的钎料有 Ag 基钎料、Cu 基钎料等^[3,4]。扩散连接是在高温高压下通过原子的扩散实现的, 通常需要在接头界面之间加入一些填充金属作为中间连接材料。与其他技术相比, 扩散连接接头强度更高, 稳定性更好, 特别是在高温和腐

收稿日期: 2016-12-10

收到修改稿日期: 2016-12-14

基金项目: 国家自然科学基金 (91426304; 91426304); 中科院跨学科创新团队; 中国科学院战略重点研究项目 (XDA03010305); 浙江省自然科学基金 (LY15E020007)。

第一作者: 杨 辉 (1990 -), 女, 山东滨州人, 硕士研究生。E-mail: yanghui@nimte.ac.cn。

第一作者: 卢 博 (1990 -), 男, 安徽亳州人, 工程师。E-mail: 627837396@qq.com。

通讯作者: 黄 庆 (1977 -), 男, 湖南怀化人, 研究员。E-mail: huangqing@nimte.ac.cn。

蚀环境中^[5-7]。瞬时液相连接是在连接温度下,中间层融化并润湿母材,在焊接面间形成均匀的液态薄膜,随后在保温过程中通过中间层与母材之间的元素扩散以及化学反应而逐渐等温凝固,形成牢固的连接。中间层的选择是连接成功与否的关键^[8,9]。然而,由于这些方法自身的限制,它们的应用范围是有限的。

近年来,人们开始逐渐关注电流在固态扩散连接中的影响,为异种材料的扩散连接提供了一个新的思路^[10]。放电等离子烧结技术 (Spark Plasma Sintering, SPS) 是一种新兴的工艺技术,利用通过模具及导电材料的脉冲电流可以在短时间内实现金属和陶瓷的有效连接^[11-13]。Rizzo 等人^[14]用 SPS 连接 C/SiC 复合材料,结果发现 SPS 可以通过局部加热实现样品的快速有效连接,是一种非常具有发展前景的样品连接方法。Munir 等人^[15]在 Ni-Ti 系统里研究了直流电对界面反应的影响,结果显示随着电流密度的增加,形成 Ni-Ti 相的活化能降低。虽然电流在固态扩散连接中的作用机制仍然不清楚,但是电流密度、电流模式 (直接或脉冲)、温度、材料本身等因素都会影响扩散的结果^[16]。由于陶瓷通常是绝缘体或半导体,在很大程度上削弱了电流的效果,所以过去的研究大多数集中于金属扩散行为,对陶瓷的关注比较少。目前有关金属/陶瓷连接的研究几乎都是围绕着金属/陶瓷界面结合机制、界面应力、连接过程等进行的^[17-19]。在金属/陶瓷的连接中,界面反应也是一个十分重要的问题。由于金属和陶瓷的化学键不同以及陶瓷本身特殊的物理化学性质,连接过程中会有很多界面问题,如: (1) 金属和陶瓷不同的晶体结构导致它们的熔点差异非常大; (2) 陶瓷晶体强大的化学键使得元素扩散非常困难; (3) 热膨胀系数的巨大差异会在界面上产生巨大的热应力,从而导致裂纹的产生; (4) 界面上生成的脆性相、玻璃相会使界面性能变差。因此在连接过程中,不仅需要考虑原子之间的相互作用形式,同时还要考虑界面产物。当连接方法不同时,界面也有不同的特点。

2011 年福岛事故后,核反应堆的未来发展提出了发展事故容错核燃料包壳材料的概念,要求包壳材料在极端恶劣的条件 (如 1000°C 以上的高温、超高剂量中子辐照和极端冷却水腐蚀环境^[20]) 下可以保持稳定。而传统的商业 Zr 合金不能满足这些性能要求。MAX 相是一种兼具金属和陶瓷性质的层状碳化物或氮化物^[21]。最近的一些工作表明 MAX 相具有优异的抗中子辐照能力^[22-24],在事故容错燃料 (Accident Tolerant Fuel, ATF) 中它可以作为一种难熔涂层用于保护 Zr 合金在高温下的化学和结构稳定性。虽然 Zr-4 合金和 Ti_3SiC_2 和 Ti_2AlC 的连接已经有所研究^[25],但是 MAX 相和 Zr 合金的界面行为却鲜有报道。本文中我们选用 Zr 合金和 Ti_3AlC_2 (下文中简称为 TAC) 在电场辅助作用下的扩散连接对金属/陶瓷连接过程中界面上的化学反应进行了初步研究。

1 实验材料及方法

1.1 连接模式

本研究采用的 TAC 块体由 TAC 粉经原位烧结得到,详见参考文献 [26]。块体的密度超过 99%。选用的 Zr 合金含有 2.5% Nb。两种材料均切割成 $15\text{ mm} \times 15\text{ mm} \times 2\text{ mm}$ 的块体,待连接面用 3000[#] 砂纸仔细抛光。其中部分 TAC 样品用 PVD 方法在其待连接面上沉积一层 TiC,所以本研究共考察了两种连接对: TAC/Zr 和 TiC@TAC/Zr。连接模式如图 1 所示,TAC 在上,Zr 合金在下。在连接过程中,压为 22.2 MPa,

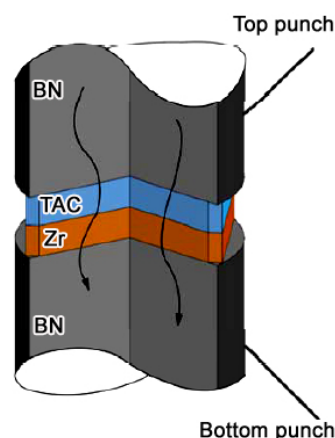


图 1 连接模型示意图 (箭头所示为电流方向)
Figure 1 Schematic of experimental apparatus of heating modes. Arrows denote the current direction

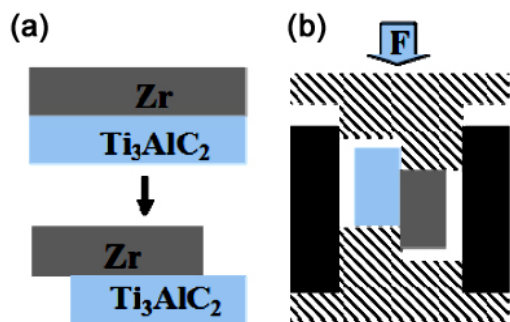


图 2 剪切实验: (a) 试样; (b) 实验装置
Figure 2 Shear test: (a) sample; (b) test assembly

以 $50^\circ\text{C}/\text{min}$ 的速度升温至目标温度。样品的连接温度为 $850^\circ\text{C} \sim 1050^\circ\text{C}$, 保温时间为 $5 \text{ min} \sim 60 \text{ min}$ 。详细的实验条件见表 1。需要指出的是, 实验温度测量的是连接对上表面的温度。因为界面上的电阻比较大, TAC/Zr 的界面温度应该高于测量温度。连接结束后, 将连接界面用 $3000^\#$ 砂纸仔细抛光, 然后进行显微观察并且进行线扫描。

1.2 机械性能

连接对的机械性能用剪切强度表征。为便于进行剪切试验, 在连接时将 TAC 和 Zr 边缘错开一定距离, 如图 2 所示。对于每种连接条件, 对至少五个样品进行了剪切实验以获得剪切强度的平均值。

剪切强度 τ 由下式计算得到:

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

式中, F 是最大载荷, S 是连接区域的面积。

用 X-射线衍射仪 (XRD) 对剪切之后的样品断裂面进行了检测。

1.3 连接结构的稳定性

用 $\text{HF}:\text{HNO}_3:\text{H}_2\text{O} = 1:1:5$ 的酸液分别滴在连接对 TAC/Zr 和 $\text{TiC}@\text{TAC}/\text{Zr}$ 的界面上, 然后用乙醇清洗以检测连接结构的稳定性。刻蚀之后的表面形貌采用扫描电镜 (SEM) 观察。

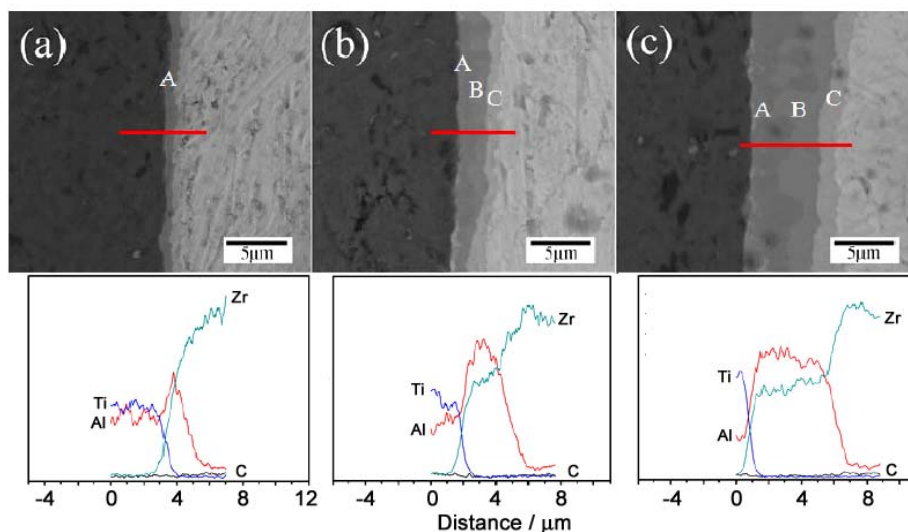


图 3 不同条件下 TAC/Zr 连接对的界面 BSE 照片以及对应的元素线扫描结果:

(a) $850^\circ\text{C} / 5 \text{ min}$; (b) $950^\circ\text{C} / 5 \text{ min}$; (c) $1050^\circ\text{C} / 5 \text{ min}$

Figure 3 BSE images and corresponding EDS line scans of cross section of $\text{Ti}_3\text{AlC}_2/\text{Zr}$ couples obtained under different conditions: (a) $850^\circ\text{C} / 5 \text{ min}$; (b) $950^\circ\text{C} / 5 \text{ min}$; (c) $1050^\circ\text{C} / 5 \text{ min}$. Note that the Zr-contrast in the BSE images show the different diffusion layers noted by A, B and C

2 结果和讨论

2.1 TAC/Zr 连接界面的性能

图 3 是 TAC/Zr 在不同条件下连接之后的界面形貌。从图中可以看出,所有的界面都非常致密,即使在低至 850°C / 5 min 的条件下,界面依然完好,没有气孔裂纹等缺陷。在 Zr 和 TAC 之间有几个不同的扩散层,从 Zr 合金一侧到 TAC 分别标记为 A、B、C。结合线扫描结果可以得出 A、B、C 层的组分分别为 Zr_2Al_3 (A 层)、 Zr_5Al_4 (B 层)、 Zr_3Al_2 (C 层),这个结果与之前 Tallman 等人用热压方法在 1100°C ~ 1300°C 之间连接 $Ti_2AlC/Zr-4$ 的结果^[25]相一致。需要指出的一点是,每一层上的组分并不是严格遵循原子比的(例如 A 层上不全是纯相 Zr_2Al_3),这是因为连接是在低温下进行的,并且时间很短(5 min),不足以提供充足的能量使原子相互扩散形成具有稳定化学计量比的合金相。

图 4 是典型的 TAC/Zr 连接界面的腐蚀形貌,A 层完全被腐蚀掉,B 层和 C 层虽然有残留,但是都有一些孔洞。B 层上的孔洞比较多,C 层较少。由此可知,连接界面并不是十分稳定。

TAC 是一种典型的 MAX 相,它的原子结构在 C 轴方向上是 Al 原子层和 Ti_3C_2 层交替排列的,Al 原子和 Ti_3C_2 之间的强度非常低,类似于石墨的范德瓦耳斯键^[27]。此外,Al 原子与 Zr 原子具有非常强的亲和力。所以在连接过程中,在热扩散和电流的共同作用下,Al 原子很容易从 TAC 中跑出来进入到 Zr 中,形成各种 Zr-Al 合金。表 1 列出了不同连接条件下每个扩散层的厚度,用于计算 Al 在 TAC/Zr 系统中的活化能,可以更好地理解在电流辅助下 Al 在 Zr 合金中的扩散行为。

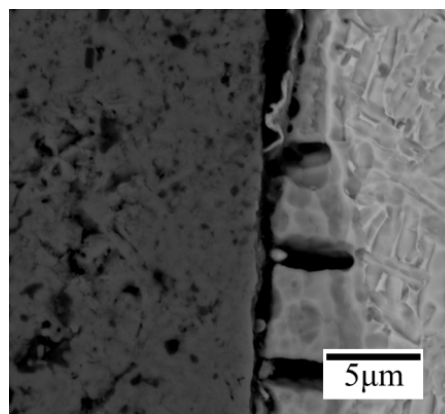


图 4 TAC/Zr 连接对经酸腐蚀之后的界面结构
Figure 4 The typical cross section of Ti_3AlC_2/Zr couples obtained on the conditions of Mode I with etchant

表 1 不同连接温度和连接时间下 A、B、C 各层的厚度
Table 1 Summary of thickness of the diffusion layers formed under different conditions

Bonding temperature / °C	Bonding time / min	Diffusion layer thickness / μm		
		Layer A	Layer B	Layer C
850	5	0.879		
	30	1.868		
	60	3.334	0.952	
950	5	1.697	0.970	0.849
	30	3.117	1.558	1.039
	60	2.434	3.520	1.958
1050	5	2.678	1.148	1.339
	30	2.958	2.762	1.972
	60	6.714	5.990	2.241

扩散控制过程遵循抛物线定律:

$$x = \sqrt{2D_A t} \quad (2)$$

式中, x 为反应层的厚度 (m), D_A 为扩散系数, t 为扩散时间 (s)。曲线 $x - t^{1/2}$ 的斜率与扩散系数 D_A

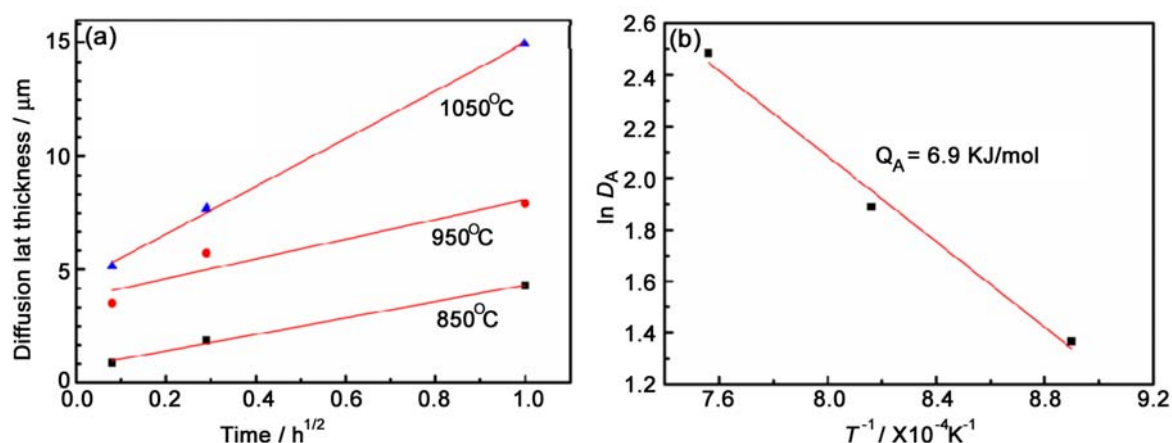


图 5 (a) 不同连接温度及保温时间下 TAC/Zr 扩散层的总厚度; (b) 扩散系数与连接温度倒数的关系
 Figure 5 (a) Variation of the total thickness of the diffusion layer with the square root of soaking time at different temperatures for the TAC/Zr interface, and (b) Arrhenius plot of the parabolic rate constant versus the reciprocal of the bonding temperature in the temperature range of 850°C ~ 1050°C

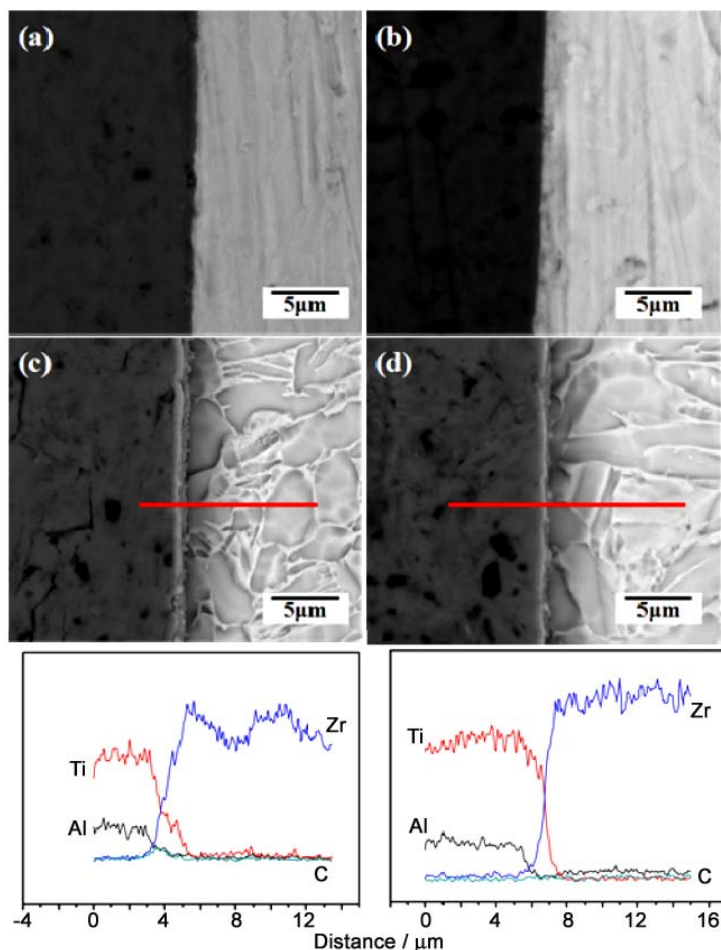


图 6 不同条件下 TiC@TAC/Zr 连接对的界面 BSE 照片以及对应的元素线扫描结果: (a) 850°C / 5 min; (b) 950°C / 5 min; (c) 850°C / 5 min 连接酸腐蚀之后; (d) 950°C / 5 min 连接酸腐蚀之后

Figure 6 BSE images and corresponding EDS line scans of cross section of $\text{TiC}@\text{Ti}_3\text{AlC}_2/\text{Zr}$ couples obtained under different conditions: (a) 850°C / 5 min; (b) 950°C / 5 min; (c) 850°C / 5 min with etchant; (d) 950°C / 5 min with etchant

成正比。 D_A 的大小取决于温度且遵循 Arrhenius 方程:

$$D_A = D_0 \exp\left(-\frac{Q_A}{RT}\right) \quad (3)$$

式中, D_0 、 Q_A 、 R 和 T 分别为前指数项、活化能、通用气体常数和温度 (K)。根据上述讨论和分析, 由图 5 可以得到 Al 在 TAC/Zr 系统中的有效扩散系数 D_A 为 6.9 kJ/mol, 远小于传统热压方法连接 $\text{Ti}_2\text{AlC}/\text{Zr}$ 时 Al 的扩散激活能 38 kJ/mol^[25]。

2.2 TiC 涂层作为中间层时的界面性质

在 Zr 合金和其他材料的传统连接方法中, 在熔合区会产生很多脆性相^[28, 29]。在 TAC/Zr 连接中, 也会产生一些脆性相, 例如 Zr_2Al_3 相 (A 层)、 Zr_5Al_4 相 (B 层)、 Zr_3Al_2 相 (C 层)。所以我们在 TAC 的表面镀了一层 TiC 作为扩散壁垒去阻止或者减少脆性相的生成, 改善连接界面的性能。

图 6 是 TiC@TAC/Zr 分别在 850°C / 5 min 和 950°C / 5 min 条件下形成的连接界面的形貌。从图中可以看出, 在这两种条件下, 连接效果都非常好, 连接界面均匀平滑, 不存在气孔裂纹等缺陷。对比图 6 (a)、(b) 和 (c)、(d), 腐蚀之后的界面与未腐蚀之前相比没有明显的变化, 连接界面仍然非常致密, 这说明 TiC 可以有效地抑制脆性相的生成, 显著提高连接界面的性能。

分别对 TAC/Zr 和 TiC@TAC/Zr 在 850°C / 5 min 条件下的连接对进行了剪切试验, 结果表明, 有 TiC 涂层的连接样强度 (9.39 MPa) 明显高于没有 TiC 涂层的连接样 (6.38 MPa)。图 7 (a) 和 (b)

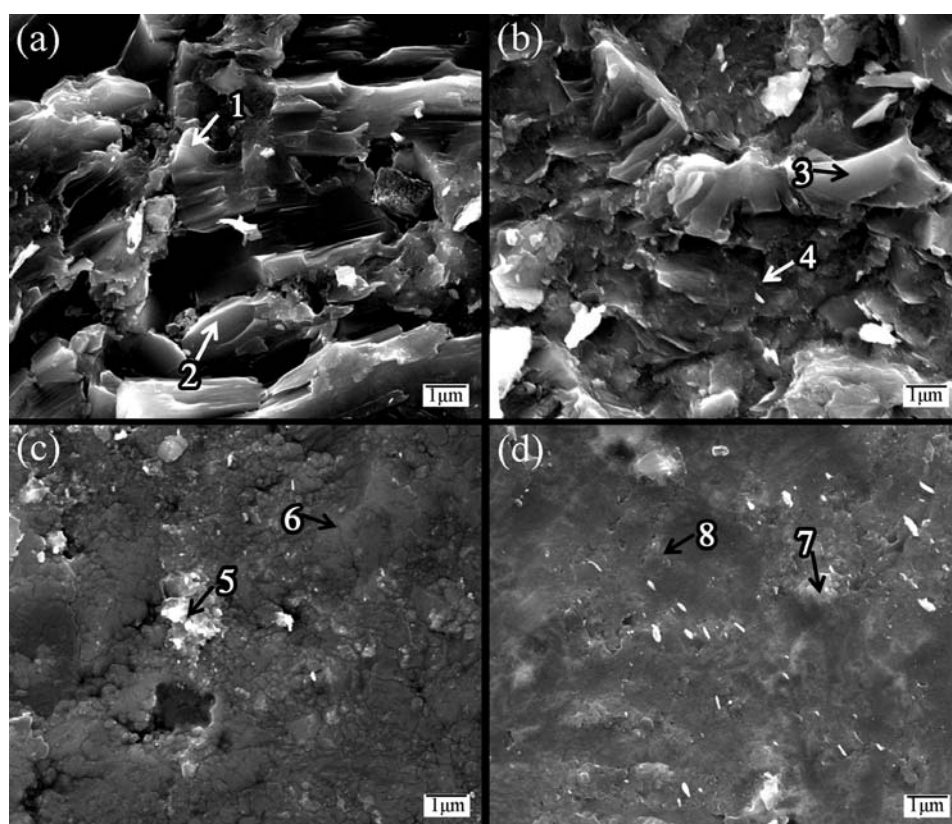


图 7 850°C / 5 min 连接条件下的连接对的断裂表面 (a) TAC/Zr 连接对 TAC 一侧; (b) TAC/Zr 连接对 Zr 一侧; (c) TiC@TAC/Zr 连接对 TAC 一侧; (d) TiC@TAC/Zr 连接对 Zr 一侧

Figure 7 SEM images of fracture surface of the couples prepared at 850°C / 5 min: (a) TAC side of TAC/Zr; (b) Zr side of TAC/Zr; (c) TAC side TiC@TAC/Zr; (d) Zr side of TiC@TAC/Zr

表 2 TAC/Zr 和 TiC@TAC/Zr 断裂面上的点扫描结果
Table 2 Results of typical EDS points scan in the fracture surface of TAC/Zr and TiC@TAC/Zr couples

Spectrum	Weigh (%)					Atomic (%)				
	C	Al	Ti	Zr	O	C	Al	Ti	Zr	O
1	3.36	19.57	76.59	0.48	—	10.72	27.79	61.28	0.20	—
2	3.48	17.64	77.94	0.94	—	11.24	25.33	63.04	0.40	—
3	2.90	16.79	32.85	47.45	—	11.68	30.06	33.13	25.13	—
4	3.33	14.91	2.61	79.14	—	15.83	31.54	3.12	49.52	—
5	3.52	7.96	88.53	—	—	12.02	12.10	75.88	—	—
6	4.07	6.13	68.26	21.54	—	15.21	10.20	63.98	10.60	—
7	2.36	—	—	95.16	2.48	14.06	—	—	74.80	11.13
8	3.36	—	—	94.30	2.34	19.18	—	—	70.80	10.02

所示为 TAC/Zr 连接对的断裂表面, 图 7 (c) 和 (d) 所示为 TiC@TAC/Zr 连接对的断裂表面, 表 2 是图 7 中断裂表面的点 1~8 的扫描数据。

从线扫描结果可以看出, TAC/Zr 的断裂发生在 TAC 与扩散层之间的界面上, 断裂面比较粗糙, 有很多大的颗粒。结合 EDS 结果可以发现, 在 TAC 一侧的断裂面上, 主要的相仍然是 TAC (点 1 和点 2), 而在 Zr 合金一侧的断裂面上是一些 Zr/Al 合金相 (点 3 和点 4)。它的断裂机制应该是 Al 原子扩散进入到 Zr 合金一侧, 在界面上生成了 TiC_x 相, 降低了界面的强度。 TiC@TAC/Zr 的断裂发生在 TiC 涂层和 Zr 合金之间的界面上, 断裂面比较平整, 没有大的颗粒。在 TAC 一侧几乎没有 Zr 元素 (点 5 和点 6), 在 Zr 合金一侧的断裂面上只有 C 和 Zr 元素 (点 7 和点 8)。在有 TiC 涂层的条件下, Al 元素的扩散被有效地控制, 所以 TiC 的存在可以有效地抑制脆性相的生成, 提高连接结构的稳定性。不管有无 TiC 涂层, 断裂均发生在最初的界面上, 这说明在 $850^\circ\text{C}/5\text{ min}$ 的连接条件下样品的强度都比较低, 要想得到强度高的连接样, 需要进一步升高连接温度或者延长连接时间。

本实验中 TiC 涂层的化学计量比是 $\text{Ti}_{52}\text{C}_{48}$, 这意味着在不破坏涂层稳定性的前提下, 涂层中有高达 50% 的 C 空位, 所以 Zr 原子可以进入到 TiC 中取代 Ti 的位置; 也就是说形成具有 NaCl 结构的 $(\text{Ti,Zr})\text{C}$ 固溶体是可行的。当 Zr 融进 TiC 之后, Al 的扩散就会受到限制。从热力学来说, Al 不能取代 TiC 中的 Ti, 因为没有 NaCl 结构的 Al-C 固溶体。因此, 改变 TiC 涂层的计量比不失为一种调控连接界面性能的可能方式。

3 结 论

(1) 采用电场辅助加热技术实现了 $\text{Ti}_3\text{AlC}_2/\text{Zr}$ 在 850°C 下的连接, 连接温度远低于传统的热压连接方法。

(2) 反应层的厚度随着连接时间的延长和连接温度的提高成比例增加。通过反应动力学曲线计算出的活化能是相似材料系统用热压连接时的 1/5。

(3) TAC/Zr 的连接界面的连接机制是 Al 原子从 TAC 一侧扩散到 Zr 合金一侧, 在界面上生成了反应相 Zr/Al 合金。剪切断裂发生在 TAC 和扩散层之间的界面上。

(4) 对 TiC@TAC/Zr 连接界面的研究发现, TiC 涂层可以有效地抑制 Al 原子的扩散, 但是会有一定量的 Zr 原子扩散到 TiC 里。剪切断裂发生在 TiC 和 Zr 之间的界面上, 强度要高于 TAC/Zr 连接对, 这说明有可能通过改变 TiC 涂层的计量比以调控连接界面的性能。

参考文献

- [1] 钱耀川, 丁华东, 傅苏黎, 陶瓷-金属焊接的方法与技术[J]. 材料导报, 2005, 19 (11): 98–104.
- [2] 邢世凯, 吕世君, 闻德生, 等, 应用于汽车工业的特种陶瓷材料及其研究进展[J]. 中国陶瓷, 2003, 39 (3): 35–38.
- [3] RICCARDI B, NANNETTI CA, PETRISOR T, et al. Issues of low activation brazing of SiC_f/SiC composites by using alloys without free silicon [J]. Journal of Nuclear Materials, 2004, 329–333: 562–566.
- [4] RICCARDI B, NANNETTI CA, WOLTERS DORF J, et al. Brazing of SiC and SiC_f/SiC composites performed with 84Si-16Ti eutectic alloy: microstructure and strength [J]. Journal of Materials Science, 2002, 37 (23): 5029–5039.
- [5] HALBIG MC, ASTHANA R, SINGH M. Diffusion bonding of SiC fiber-bonded ceramics using Ti/Mo and Ti/Cu interlayers [J]. Ceramics International, 2015, 41 (2): 2140–2149.
- [6] KISHIMOTO H, SHIBAYAMA T, ABE T, et al. Diffusion bonding technology of tungsten and SiC/SiC composites for nuclear applications [J]. IOP Conference Series: Materials Science and Engineering, 2011, 18 (16): 162015.
- [7] TENYAMA K, MAEDA M, SHIBAYANAGI T, et al. Interfacial microstructure of silicon carbide and titanium aluminide joints produced by solid-state diffusion bonding [J]. Materials Transactions, 2004, 45 (8): 2734–2739.
- [8] KATOH Y, KOHYAMA A, NOZAWA T, et al. SiC/SiC composites through transient eutectic-phase route for fusion applications [J]. Journal of Nuclear Materials, 2004, 329–333: 587–591.
- [9] KATOH Y, DONG SM, KOHYAMA A. Thermo-mechanical properties carbide composites fabricated and microstructure of silicon by nano-infiltrated transient eutectoid process [J]. Fusion Engineering and Design, 2002, 61–62: 723–731.
- [10] MUNIR ZA, QUACH DV, OHYANAGI M. Electric current activation of sintering: a review of the pulsed electric current sintering process [J]. Journal of the American Ceramic Society, 2011, 94 (1): 1–19.
- [11] GRASSO S, TATARKO P, RIZZO S, et al. Joining of β -SiC by spark plasma sintering [J]. Journal of the European Ceramic Society, 2014, 34 (7): 1681–1686.
- [12] OKUNI T, MIYAMOTO Y, ABE H, et al. Spark plasma sintering of tungsten/graphite joints with a SiC ceramic interlayer [J]. Ceramics International, 2015, 41 (3): 4651–4655.
- [13] 熊焰, 刘冲. 放电等离子烧结技术在陶瓷材料制备中的应用[J]. 现代技术陶瓷, 2016, 37: 241–252.
- [14] 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.
- [15] GARAY JE, ANSELMITAMBURINI U, MUNIR ZA. Enhanced growth of intermetallic phases in the Ni-Ti system by current effects [J]. Acta Materialia, 2003, 51 (15): 4487–4495.
- [16] CONRAD H. Effects of electric current on solid state phase transformations in metals [J]. Materials Science and Engineering A, 2000, 287 (2): 227–237.
- [17] SINNOTT SB, DICKEY EC. Ceramic/metal interface structures and their relationship to atomic- and meso-scale properties [J]. Materials Science and Engineering R, 2003, 43 (1–2): 1–59.
- [18] 熊华平, 吴世彪, 陈波, 等, 缓解陶瓷/金属连接接头残余热应力的方法研究进展[J]. 焊接学报, 2013, 34 (9): 107–112.
- [19] CHANDRA N, LI H, SHET C, et al. Some issues in the application of cohesive zone models for metal-ceramic interfaces [J]. International Journal of Solids And Structures, 2002, 39 (10): 2827–2855.
- [20] ZINKLE SJ, TERRANI KA, GEHIN JC, et al. Accident tolerant fuels for LWRs: a perspective [J]. Journal of Nuclear Materials, 2014, 448 (1–3): 374–379.
- [21] TZENOV NV, BARSOUM MW. Synthesis and characterization of Ti₃AlC₂ [J]. Journal of the American Ceramic Society, 2000, 83: 825–832.
- [22] WHITTLE KR, BLACKFORD MG, AUGHTERSON RD, et al. Radiation tolerance of M_{n+1}AX_n phases, Ti₃AlC₂ and Ti₃SiC₂ [J]. Acta Materialia, 2010, 58 (13): 4362–4368.
- [23] TALLMAN DJ, HOFFMAN EN, CASPI EN, et al. Effect of neutron irradiation on select MAX phases [J].

- Acta Materialia, 2015, 85: 132–143.
- [24] LE FLEM M, LIU X, DORIOT S, et al. Irradiation damage in $\text{Ti}_3(\text{Si,Al})\text{C}_2$: a TEM investigation [J]. International Journal of Applied Ceramic Technology, 2010, 7 (6): 766–775.
- [25] TALLMAN DJ, YANG J, PAN L, et al. Reactivity of zircaloy-4 with Ti_3SiC_2 and Ti_2AlC in the 1100–1300°C temperature range [J]. Journal of Nuclear Materials, 2015, 460: 122–129.
- [26] WANG Q, HU C, CAI S, et al. Synthesis of high-purity Ti_3SiC_2 by microwave sintering [J]. International Journal of Applied Ceramic Technology, 2014, 11 (5): 911–918.
- [27] ZHOU YC, WANG XH, SUN ZM, et al. Electronic and structural properties of the layered ternary carbide Ti_3AlC_2 [J]. Journal of Materials Chemistry, 2001, 11 (9): 2335–2339.
- [28] AHMAD M, AKHTER JI, SHAIKH MA, et al. Hardness and microstructural studies of electron beam welded joints of zircaloy-4 and stainless steel [J]. Journal of Nuclear Materials, 2002, 301 (2–3): 118–121.
- [29] SHANKAR AR, BABU SS, ASHFAQ M, et al. Dissimilar joining of zircaloy-4 to type 304L stainless steel by friction welding process [J]. Journal of Materials Engineering and Performance, 1992, 18 (9): 1272–1279.

※ ※

Interlayer-Mediated Interface Bonding of Zr and Ti_3AlC_2 Through Electric-Current-Aided Heating

YANG Hui^{1,2}, LU Bo^{1,3}, YANG Xian-Jin³, SHI Wen², ZHOU Xiao-Bing¹
LI Peng¹, HUANG Feng¹, HUANG Qing¹

¹ Ningbo Institute of Materials Technology & Engineering, Chinese Academy of Science,
Ningbo 315201, China

² School of Materials Science and Engineering, Shanghai University, Shanghai 200072, China

³ School of Materials Science and Engineering, Tianjin University, Tianjin 300072, China

Abstract: Electric-current-aided heating was employed to realize the $\text{Ti}_3\text{AlC}_2/\text{Zr}$ joining at low temperature and the interface structure was studied. The diffusion activation energy of Al element in the prepared TAC/Zr joining couple is only 6.9 kJ/mol, being much lower than that in $\text{Ti}_2\text{AlC}/\text{Zr}$ joining couple by traditional pressure sintering, 38 kJ/mol. When TiC coating is used as an interlayer, it was found that the TiC interlayer can efficiently block the diffusion of Al from Ti_3AlC_2 side into Zr alloy without the deterioration of joining behavior. The results also show that the joining temperature for TiC@TAC/Zr couple was further reduced. While, the TiC interlayer have revealed the promising role to control the interface reaction through the regulation of ratio of Ti and C in the coating.

Key words: Ti_3AlC_2 ; Diffusion bonding; Electric-current-aided; TiC interlayer