

陶瓷材料电场辅助连接技术研究现状及发展趋势

刘岩¹, 张珂颖^{1,2}, 李天宇^{1,2}, 周菠^{1,2}, 刘学建¹, 黄政仁¹

(1. 中国科学院 上海硅酸盐研究所, 上海 200050; 2. 中国科学院大学 材料科学与光电工程中心, 北京 100049)

摘要: 陶瓷材料因具有良好的机械性能、抗腐蚀性、耐高温性及抗氧化性等, 被广泛应用于航空航天、医疗、能源交通等领域, 陶瓷材料自身及其与金属材料的连接技术对于实际工程应用具有重要意义。由于部分陶瓷材料与电场的特殊作用机理, 将外加电场应用于陶瓷材料的连接技术中, 可以获得多种普通连接技术所不具备的优势, 如连接温度较低和连接时间较短等, 这就催生了新型陶瓷材料电场辅助连接技术。本文着重梳理了陶瓷及陶瓷基复合材料电场辅助连接技术的研究现状, 对近年来电场辅助连接技术的研究进展进行了综述, 重点介绍了电场辅助扩散连接(Electric field-assisted diffusion bonding, FDB) 技术、放电等离子体烧结 (Spark plasma sintering, SPS) 连接技术以及新型低温快速闪连接(Flash joining, FJ) 技术的连接机理、典型界面微观结构、接头强度及影响因素等, 阐述了不同电场辅助连接技术的适用范围和局限性, 并对陶瓷材料电场辅助连接技术的发展进行了展望。

关键词: 陶瓷; 电场; 电场辅助扩散连接; SPS 连接; 闪连接; 综述

中图分类号: TQ174 文献标志码: A

Electric-field Assisted Joining Technology for the Ceramics Materials: Current Status and Development Trend

LIU Yan¹, ZHANG Keying^{1,2}, LI Tianyu^{1,2}, ZHOU Bo^{1,2}, LIU Xuejian¹, HUANG Zhengren¹

(1. Shanghai Institute of Ceramics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200050, China; 2. Center of Materials Science and Optoelectronics Engineering, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: Ceramic materials are widely used in aerospace, medicine and energy transportation concerned for their excellent over-all mechanical and chemical properties, such as corrosion resistance, high temperature resistance and oxidation resistance. Especially, joining ceramic materials themselves and connecting them with metals are of great significance for the practical engineering applications. Compared with traditional joining technology, electric-assisted joining technology possesses a variety of advantages, such as low temperature and short time, owing to the special influence of the electric field on some ceramic materials. This paper focuses on the development of the electric-field assisted joining technologies of ceramics and ceramic matrix composites, and summarizes their research status in recent years. From the views of joining mechanism, typical interface microstructure and joint strength and influencing factors, the electric-field assisted diffusion bonding (FDB), spark plasma sintering (SPS) joining, and the new low-temperature rapid flash joining (FJ) are reviewed. Moreover, the applicable scope and limitations of different electric-field assisted joining technologies are expounded. In addition, the development trend of the electric-field

收稿日期: 2022-07-09; 收到修改稿日期: 2022-09-20; 网络出版日期: 2022-09-22

基金项目: 国家自然科学基金(51972320) National Natural Science Foundation of China (51972320)

作者简介: 刘岩(1975-), 男, 博士, 研究员. E-mail: stony2000@mail.sic.ac.cn

LIU Yan (1975-), male, PhD, professor. E-mail: stony2000@mail.sic.ac.cn

assisted joining technology of ceramic materials is prospected.

Key words: ceramics; electric field; electric field-assisted diffusion bonding; SPS joining; flash joining; review

陶瓷材料具有良好的机械性能和优异的化学稳定性,被广泛应用于航空航天、医疗、电力电子、能源交通等领域^[1-2]。然而,陶瓷连接是工程部件制备实践中面临的关键技术难题之一。目前,已发展了多种陶瓷/陶瓷及陶瓷/金属的连接技术,包括机械连接^[3]、胶接^[4]、钎焊连接(间接钎焊法^[5]和活性钎焊法^[6])、扩散连接^[7]、瞬时液相连接(TLP)^[8]、自蔓延高温合成连接^[9]、摩擦焊^[10]、玻璃密封^[11]和反应连接^[12]等。陶瓷连接技术的发展如图 1 所示^[13],其中应用最为广泛的是钎焊连接和扩散连接,钎焊技术方便高效,但因其接头使用温度较低而受到限制;扩散连接具有连接强度高和耐高温等优点,但其连接时间较长会影响母材的性能,且设备昂贵^[14]。因此,降低陶瓷部件的焊接温度,提高陶瓷连接部件的服役温度已成为陶瓷连接技术发展的一个终极方向。电场作为重要的物理场之一,可以显著降低

部分陶瓷材料的空位形成能和原子扩散激活能,提高陶瓷材料的原子扩散速率^[15],使降低陶瓷材料的连接温度成为可能。许多学者对此进行了深入研究并提出了外加电场辅助连接的概念。

自 1960 年 Wallis 和 Pomerantz^[16]首次提出电场辅助扩散概念用于玻璃和金属连接以来,电场辅助扩散连接(Electric-field-assisted diffusion bonding, FDB)技术引起了广泛关注,并逐渐成为连接陶瓷材料的重要技术之一。在陶瓷连接过程中施加外部低压电场,可以加速离子扩散和物质传输,从而明显降低连接温度^[17]。但是,相比于玻璃材料而言,采用该技术连接陶瓷材料仍然需要较高的温度(1000 °C)和较长的连接时间(接近 24 h),这在很大程度上限制了 FDB 技术的应用范围。近年来,以放电等离子体烧结(SPS)为代表的场辅助烧结技术(Field-assisted sintering technology, FAST)被应用于连接陶瓷及其复合材料,并且发展非常迅速。SPS 连接是一种低电压、大电流的连接技术,主要利用大电流产生的焦耳热促进原子扩散,同时电场本身也可以加速离子自扩散,通过上述二者的协同作用实现陶瓷材料的连接^[18]。SPS 连接技术现已应用于碳化硅(SiC)陶瓷及其复合材料、氮化硅(Si₃N₄)陶瓷的连接^[19-23]。最近,受闪烧(Flash sintering)技术的启发, Xia 等^[24]首次提出了一种新型电场诱导闪连接(Flash joining, FJ)技术,通过对离子导电型陶瓷材料施加超过阈值的直流电场,促使“flash”现象产生,可在极短的时间内(秒级)连接陶瓷材料。目前, FDB、SPS 和 FJ 是陶瓷材料外加电场辅助连接技术的三种主流方法,各有优缺点,表 1 定性对比了三种电场辅助扩散连接技术进行系统总结,并且对电场辅助连接技术的未来发展进行展望。

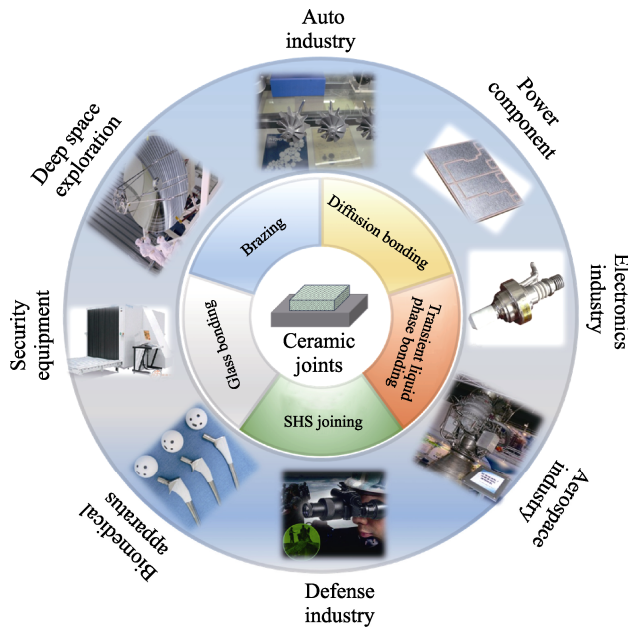


图 1 陶瓷材料连接方法及其应用领域^[13]

Fig. 1 Joining technology of ceramics and their applications^[13]

表 1 三种电场辅助连接技术的比较

Table 1 Comparison of three electric-field assisted joining technologies

Joining method	Electric field type	Electric field	Joining current	Joining temperature	Joining time
FDB	DC	Small	Small	Low	Long
SPS	DC pulse	Small	Large	High	Short
FJ	DC/DC pulse	Large	Small	Low	Fast

1 电场辅助扩散(FDB)技术

1.1 FDB 的连接机理

FDB 技术最早用于玻璃和硅片的密封连接, 该方法也称为阳极键合技术。以 Pyrex 玻璃 (4.0%Na₂O-2.3%Al₂O₃-12.7%B₂O₃-80.9%SiO₂) 和硅片连接为例, 将玻璃和硅片分别连接在外加电源的阴极和阳极, 加热至 300~500 °C 后, 施加恒定直流电压, 如图 2(a)所示。在连接过程中, 硅片和玻璃由于静电引力作用产生局部紧密接触, Pyrex 玻璃中的 Na⁺作为主要载流子, 在电场作用下向阴极迁移。此过程将不断消耗界面处 Na⁺, 使玻璃中的阴离子与硅片在界面处发生化学反应生成相关氧化物, 进而实现连接。因此, FDB 实际上是电解质材料发生电离和离子迁移的过程, 电场能够促进离子迁移, 加速界面物质扩散和界面反应。该方法主要用于离子导电材料与硅等半导体或金属(包括合金)之间的连接^[25], 陶瓷与金属连接界面结合机理如图 2(b)所示。有研究者发现 FDB 也可用于高电阻率电介质材料(如氧化铝陶瓷)与金属的连接。

1.2 FDB 技术适用的陶瓷类型

1.2.1 离子导电陶瓷

如表 2 所示, FDB 技术并不局限于金属、半导体或合金与离子导电玻璃的连接, 它也可以应用于离子导电型陶瓷的连接。针对不同的连接对象, 连接温度介于 500~1200 °C, 连接时间介于 20 min~

24 h, 施加电压介于 50~500 V。而已调研文献中, 除了 Ni/ZrO₂ 接头给出了 160 MPa 的室温剪切强度外, 其它关于离子导电陶瓷 FDB 的文献报道均未给出连接强度。研究发现, 以 β -Al₂O₃ 为阴极、Al 为阳极时, 可以形成无缝结构的接头, β -Al₂O₃ 与离子导电玻璃相似, 结构中存在可移动的钠离子, 但是其连接所需电压高达 500 V, 连接温度 (500~600 °C) 和连接时间 (1~2 h) 都远大于玻璃连接的温度和时间^[27]。此外, 采用 FDB 技术连接离子导电型的多晶锰锌铁氧体与单晶锰锌铁氧体, 能够获得无任何缺陷的理想连接界面^[28-29], 如图 3 所示。其连接强度受到连接温度、连接时间、电流方向和氧分压等因素影响, 施加电流的方向从多晶锰锌铁氧体到单晶锰锌铁氧体, 可以有效增强连接作用; 增大氧分压也能改善锰锌铁氧体之间的结合, 这是由于在较高的氧分压下, 产生的缺陷以阳离子空位为主, 有助于界面成键^[30-31]; 而随着连接时间逐渐延长和温度逐渐升高, 界面结合程度显著提高, 在 1200 °C/24 h 条件下可以获得最佳质量的接头。

元素扩散和界面反应是陶瓷与金属 FDB 的重要机制, 界面反应产物有助于实现可靠连接。掺杂氧化钨或氧化镁的立方氧化锆是一种重要的离子导电型陶瓷, 其作为阴极可与阳极侧的 Cu 连接, 在连接过程中氧化锆内部的 O²⁻ 在电场作用下移动至阳极侧生成 Cu₂O, 阴极侧由于 ZrO₂ 析出, 也生成了 Cu-Zr 连接层^[32]。此外, 氧化锆陶瓷还可在电场作用下与 Ni 结合并形成反应层, 其厚度随着电流

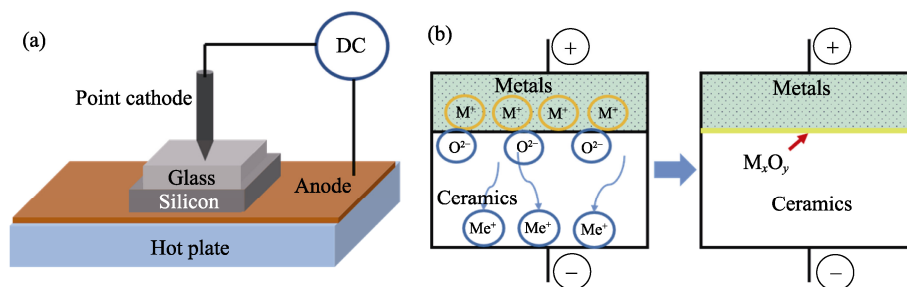


图 2 FDB 设备及机理示意图^[25-26]

Fig. 2 Equipment and mechanism of FDB^[25-26]

(a) FDB experimental equipment; (b) Joining mechanism of ceramic and metal

表 2 离子导电陶瓷的 FDB

Table 2 FDB of ionic conductive ceramics

Joining system	Joining condition	Shear strength/MPa	Main phases at interface	Ref.
Al/ β -Al ₂ O ₃	500–600 °C, 500 V, 1–2 h	—	No interlayer	[27]
Cu/ZrO ₂	800 °C, 50 V, 1 A, 20 min	—	Cu ₂ O, Cu-Zr	[32]
Ni/ZrO ₂	1100 °C, 10 mA, 30 min	160±15	Ni-Zr	[33]
Polycrystal ferrites/single crystalline ferrites	1200 °C, 1 A, 24 h	—	No interlayer	[25]

的增加而增大(图 4(a, b))。值得注意的是, 界面处发生的反应与施加的电场方向有关。将 ZrO_2 连接到阳极时, 连接层主要由 Ni_5Zr 和 Ni_7Zr_2 相组成, 脆性相的过度生长会在一定程度上降低接头强度; 而将 Ni 连接到阳极时, Ni 在电场驱动下向 ZrO_2 晶界处扩

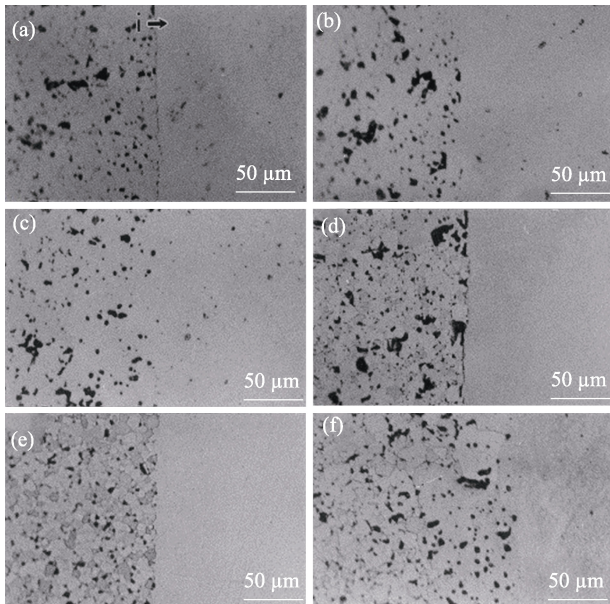


图 3 在不同连接条件下锰锌铁氧体多晶和单晶界面的 SEM 照片^[25]

Fig. 3 Interfacial SEM micrographs of manganese-zinc ferrite poly- and single-crystals under different bonding conditions^[25] (a) 1000 °C, 1 h, not etched; (b) 1200 °C, 1 h, not etched; (c) 1200 °C, 12 h, not etched; (d) 1000 °C, 1 h, etched; (e) 1200 °C, 1 h, etched; (f) 1200 °C, 12 h, etched. Current for all cases is 1 A

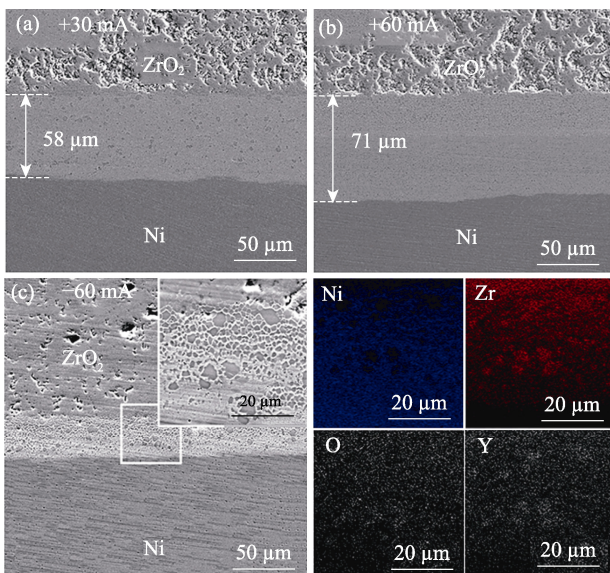


图 4 在不同电流强度和极性下连接后 Ni/ ZrO_2 界面的横截面微观结构^[33]

Fig. 4 Cross-sectional microstructures at the Ni/ ZrO_2 interfaces after joining under different current intensities and polarities^[33] (a) +30 mA; (b) +60 mA; (c) -60 mA. The elemental mapping graphs correspond to the magnified frame area in image (c)

散会形成 Zr-Ni 金属间化合物, 如图 4(c)所示^[33]。

1.2.2 介电陶瓷

不同于高温下电阻率较低的离子导电型电解质陶瓷, Al_2O_3 陶瓷作为一种高电阻率的电介质, 在高温和电场环境下不会产生大量导电离子。Pan 等^[34]使用 FDB 技术连接 Al_2O_3 陶瓷和 Ti, 得到的反应层产物有: TiO_2 , $TiAl$, Ti_3Al , 如图 5 所示。研究发现, 先前取向无序的 Al_2O_3 分子在电场作用下无法电离, 而是改变了极化方向, O-Al 键在电场下发生了偏转和拉长, 使得 O-Al 键的断裂能降低, 提高了 O 原子和 Al 原子扩散进入 Ti 的速度, 从而在连接层形成 $TiAl$ 和 Ti_3Al 。同时, 电场诱导界面附近的 Ti 原子电离出 Ti^{4+} 离子, 反应生成 TiO_2 相。此外, 连接强度随着电压的升高逐渐增大, 在 900 °C/1100 V/2 h 条件下, 接头剪切强度达到了 110 MPa。

通过以上分析可知, FDB 技术主要适用于可以在高温电场下电离的玻璃和离子导电型陶瓷, 在较高电压(1100 V)下也可实现高电阻率氧化铝陶瓷与金属的连接。外加电场可以促进带电离子迁移, 加快物质扩散速度。与传统扩散连接相比, FDB 可以增强焊接的驱动力, 进而降低焊接温度。

2 SPS 连接技术

2.1 SPS 连接机理

SPS 是一种基于低电压、直流脉冲电场和压力

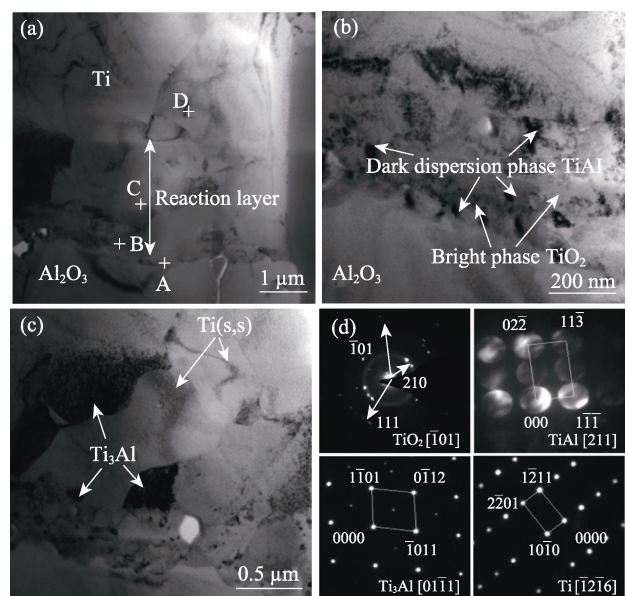
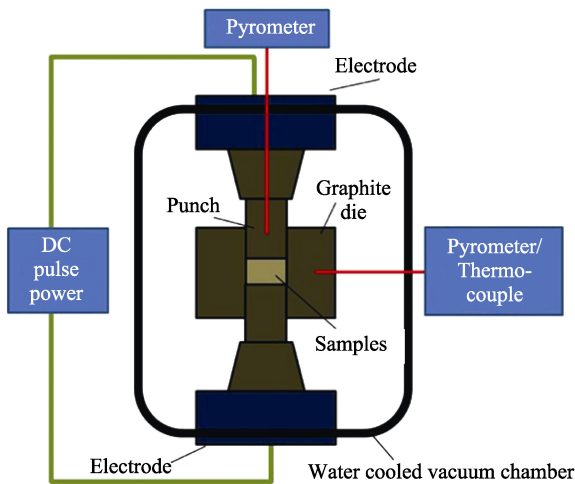


图 5 Al_2O_3/Ti 接头的 TEM 照片^[34]

Fig. 5 TEM micrographs of the Al_2O_3/Ti joint bonded at 900 °C for 1 h under 700 V DC field^[34]

(a-c) Morphologies of the reaction layer (a), magnified zone B (b) and magnified zone C (c); (d) Electron diffraction (SAED) patterns of the phases

辅助的烧结技术。与传统烧结技术不同, SPS 烧结技术能够在较低烧结温度下快速实现材料的致密化, 目前广泛接受的 SPS 烧结机制是高能脉冲电流诱导粒子间放电引起的材料表面活化和焦耳加热引起的扩散效应^[35-37]。近年来, SPS 技术被广泛应用于陶瓷和陶瓷基复合材料连接, 如图 6 所示, 将待连接陶瓷材料放入 SPS 设备中, 并在一定压力下通入直流脉冲电流, 电流引发焦耳热效应使得被连接母材的温度快速升高, 与此同时, 界面处由于接触电阻和 Peltier 效应会出现局部过热, 可促进连接界面处物质迁移。此外, 电场还会影响物质传输过程, 但因 SPS 施加电压过小(约为 10 V), 难以表征其具体作用机制, 其作用机理仍有待进一步探究^[38]。目前, 采用 SPS 技术连接的陶瓷材料接头分为无中间层的直接连接和有中间层的间接连接两种。

图 6 SPS 连接装置图^[38]Fig. 6 Working schematic of an SPS apparatus^[38]

2.2 无中间层 SPS 连接技术

可在高温条件下应用的陶瓷接头, 一直是连接领域的难点。由共价键组成的非氧化物陶瓷及其复合材料存在自身扩散系数低, 难以进行自扩散连接的缺点, 而电场辅助连接技术的出现, 为高温应用的非氧化物陶瓷连接技术注入了新的驱动力。近年来, 各国科研工作者采用无中间层的 SPS 连接技术对 SiC 陶瓷及其复合材料、超高温陶瓷等进行了广泛的研究^[20,22,39-45], 部分研究成果汇总于表 3 中。SPS 连接工艺参数随基体材料而变化, 连接温度介于 1090~1900 °C 之间, 连接压力介于 3.5~60 MPa, 而连接时间则集中在 5~15 min 之间。连接温度和保温时间等工艺参数对连接强度有重要影响。研究发现, 通过调节脉冲电流大小, 将连接温度由 996 °C 提高到 1090 °C, SiC_w/Ti₃SiC₂ 接头的剪切强度从 7.9 MPa 显著提高到 51.8 MPa^[42]; 而在 1650 °C 连接温度下, 改变保温时间, α -SiAlON/ α -SiAlON 接头的弯曲强度会由 560 MPa (保温 5 min) 增大到 610 MPa (保温 20 min)^[45]。此外, 施加的压力、母材表面的处理情况也会影响最终连接强度, 通过比较未抛光 CVD-SiC 和抛光 CVD-SiC 连接样品的 SEM 照片, Grasso 等^[22]发现压力和表面处理都是实现 SiC 陶瓷无孔隙直接连接的必要条件, 其中压力发挥了主要作用。SPS 技术施加的脉冲电流除引发焦耳热而影响连接温度外, 还会通过界面接触电阻和 Peltier 效应导致连接界面局部过热, 从而加速界面处的物质扩散。通过对比 1700 °C/10 min 条件下高电阻率 SiC 陶瓷(HR-SiC)和低电阻率 SiC 陶瓷(LR-SiC)的连接情况可以发现, 通过 LR-SiC 的电流要远大于 HR-SiC,

表 3 无中间层陶瓷材料的 SPS 连接

Table 3 SPS joining of ceramic material without interlayer

Joining system	Joining conditions	Joint strength characterization	Maximum average joint strength/MPa	Ref.
SiC/SiC	1900 °C, 5 min, 3.5 MPa	Bending strength	260.24±12.00	[20]
LR-SiC/LR-SiC	1750 °C, ~500 °C/min, 800 A, 10 min, 50 MPa	—	—	[39]
HR-SiC/HR-SiC	2100 °C, 100 °C/min, 2400 A, 10 min, 50 MPa	—	—	[39]
CVD-SiC/CVD-SiC	1900 °C, 50 °C/min, 5 min, 60 MPa	Bending strength	436±1	[22]
Coated C/SiC/C/SiC	1700 °C, 150–200 °C/min, 3 min, 60 MPa	Shear strength	24.6	[40]
Ti ₃ SiC ₂ /Ti ₃ AlC ₂	1200 °C, 150 °C/min, ~1.18 kA, <6 min, 15 MPa	Shear strength	~50	[41]
Ti ₃ SiC ₂ /Ti ₃ SiC ₂	1300 °C, 150 °C/min, ~1.30 kA, <6 min, 15 MPa	Shear strength	~50	[41]
Ti ₃ AlC ₂ /Ti ₃ AlC ₂	1300 °C, 150 °C/min, ~1.32 kA, <6 min, 15 MPa	Shear strength	~60	[41]
SiC _w /Ti ₃ SiC ₂ /SiC _w /Ti ₃ SiC ₂	1090 °C, 100 °C/min, 586 A·cm ⁻² , 30 s, 30 MPa	Shear strength	51.8±2.9	[42]
STO bicrystal/STO bicrystal	1200 °C, 70–80 °C/min, ~550 A, 15 min, 140 MPa	—	—	[43]
TaC/HfC	1850 °C, 10 min, 60 MPa	—	—	[44]
α -SiAlON/ α -SiAlON	1650 °C, 10 min, 20 MPa	Bending strength	~610	[45]

其结合程度也远高于 HR-SiC/HR-SiC^[39]。

部分 MAX 相陶瓷自身之间采用 SPS 直接连接时, 由焦耳热引发的快速升温会促进连接界面处物质快速扩散, 从而形成界面结合良好、无明显焊缝的接头, 例如 TSC(Ti₃SiC₂) 和 TAC(Ti₃AlC₂) 两种 MAX 相的 SPS 连接^[41]。而将异质陶瓷作为母材进行 SPS 连接时, 界面处的物质扩散通常伴随反应物(或固溶体)的生成。使用 SPS 技术连接 TaC 和 HfC 两种超高温陶瓷时, 其界面处由于高温高压条件会发生局部塑性变形, 且扩散的 Hf 在 Ta 侧反应形成 (Ta, Hf)C 固溶体连接层^[44], 如图 7 所示。

2.3 有中间层 SPS 连接技术

为了提高连接界面的扩散性能, SPS 连接技术中也常采用中间层结构, 所采用的中间层可以归纳为两种体系: 无机材料中间层和金属中间层。无机材料类中间层主要包括: CA 微晶玻璃(CaO-Al₂O₃)、MAX 相、YSZ 陶瓷等, 如表 4 所示。其中, 采用微晶玻璃中间层的连接过程是在无压条件下进行的, SPS 快速加热降低了 CA 微晶玻璃的黏度, 使其作为黏合剂成功地连接了 C/SiC 复合材料^[40]。MAX

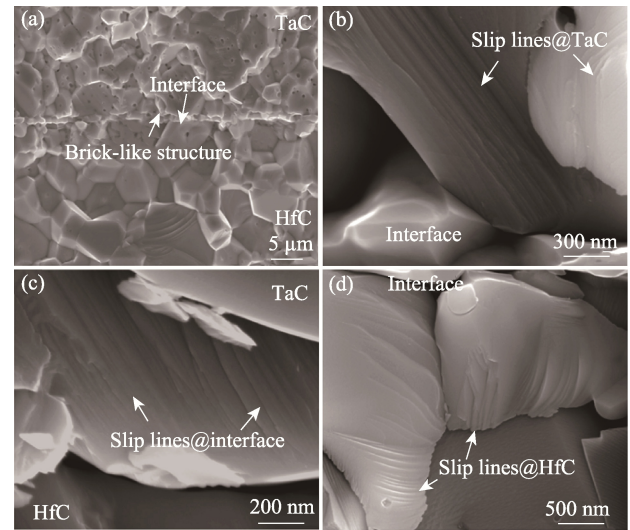


图 7 TaC/HfC 接头的显微结构图^[44]

Fig. 7 Fractured micrographs of the TaC-HfC joint^[44]

(a) Low magnification fractured image; (b-d) High-resolution fractured images of the interface eliciting the presence of slip lines on (b) TaC side, (c) TaC-HfC interface, and (d) HfC side

相是一种三元层状材料, TSC 和 TAC 等典型的 MAX 相都被应用于 SiC 陶瓷的连接。当使用 TSC 陶瓷作为连接层时, 高温下它常通过毛细管作用渗入 SiC

表 4 使用无机材料中间层 SPS 连接陶瓷材料

Table 4 SPS joining of ceramic material with inorganic material interlayer

Joining system	Interlayer	Joining conditions	Joint strength characterization	Maximum joint strength/MPa	Main phases at interface	Ref.
SiC/SiC	4.5YSZ	1700 °C, 150 °C/min, 40 MPa	Bending strength	26.7	ZrO ₂	[47]
SiC/SiC	4.5YSZ+ 20% Al ₂ O ₃ (in mass)	1800 °C, 100–200 °C/min, 40 MPa	Bending strength	107.3	ZrO ₂ , mZrO ₂	[47]
SiC/SiC	TSC	1900 °C, 5 min, 3.5 MPa	Bending strength	230.6±19	TiC, Ti, Al	[20]
SiC/SiC	TAC	1900 °C, 5 min, 3.5 MPa	Bending strength	230.5±13	TiC, Al, Ti	[20]
SiC/SiC	TSC	1300 °C, 100–200 °C/min, 15 min, 50 MPa	Bending strength	80.4	TiC _x , Ti _x Si _y	[23]
SiC/SiC	TSC	1400 °C, 100–200 °C/min, 30 MPa	Bending strength	66	TiSi ₂ , TiC	[48]
SiC/SiC	TSC	1600 °C, 30 min, 20–40 MPa	Bending strength	110.4	TSC, TiC	[19]
CVD-SiC/ CVD-SiC	TSC	1300 °C, 100 °C/min, 5 min, 50 MPa	Bending strength	220.3±3.2	TSC	[46]
Coated SiC _f /SiC/ coated SiC _f /SiC	TSC	1300 °C, 100 °C/min, 5 min, 50 MPa	Shear strength	18.3±5.8	TSC	[21]
Coated C _f /SiC/ coated C _f /SiC	TSC	1300 °C, 100 °C/min, 5 min, 50 MPa	Shear strength	31.1±4.0	TSC	[21]
Uncoated T300 1K C _f /SiC/uncoated T300 1K C _f /SiC	TSC	1300 °C, 100 °C/min, 5 min, 50 MPa	Shear strength	19.1±2.0	TSC, SiC	[21]
Uncoated M40J 3K C _f /SiC/uncoated M40J 3K C _f /SiC	TSC	1300 °C, 100 °C/min, 5 min, 50 MPa	Shear strength	5.5±1.8	TSC, SiC	[21]
Coated C/SiC/ coated C/SiC	CA	1480 °C, 50 °C/min, 10 min, 0 MPa	Shear strength	~14.1	CA	[40]
Coated C/SiC/ coated C/SiC	SiC+B ₄ C	1900 °C, 150–200 °C/min, 3 min, 60 MPa	Shear strength	18.2	—	[40]
C _f /SiC/C _f /SiC	TSC	1600 °C, 30 min, 20–40 MPa	Bending strength	62.6	TSC, TiC	[19]

陶瓷母材的表面孔隙和微裂纹中(如图 8 所示), 这种钉扎效应有利于提高连接强度^[46]。但当连接温度高于 1300 °C 时, SiC 基体中的 Si 会向界面迁移, 导致 SiC/TSC 界面处生成 Ti_xSi_y 脆性相, 而 SiC 分解后富集的石墨相会与 TSC 进一步反应生成 TiC 相^[23]。最新研究表明, TSC 和 TAC 等 MAX 相作为中间层连接 SiC 陶瓷时, 可在高温下分解扩散并进入 SiC 基体, 从而形成无焊缝的结构^[20]。

金属作为中间层时(如表 5), 在界面处与陶瓷发生相互扩散, 并生成化合物。图 9 显示了采用 Ti/Nb/Ti 作为中间层 SPS 连接 CVD-SiC 时接头微观结构随温度的演变过程, 可以发现当温度达到 1400 °C 时, 金属中间层与 SiC 母材之间发生了相互扩散和界面反应, 在连接界面处形成了 TiC 反应层(图 9(c))^[49]。此外, 作为高温结构材料的 SiC 陶瓷及其复合材料接头的高温性能一直是备受关注的重要指标。Tatarko 等^[46]系统研究了 CVD-SiC/Ti₃SiC₂/CVD-SiC 接头在真空中的高温性能: 当温度高于 1000 °C 时, 接头的抗弯强度随温度升高呈线性下降, 升温至 1200 °C 时, 连接强度保留了初始弯曲强度的 68%;

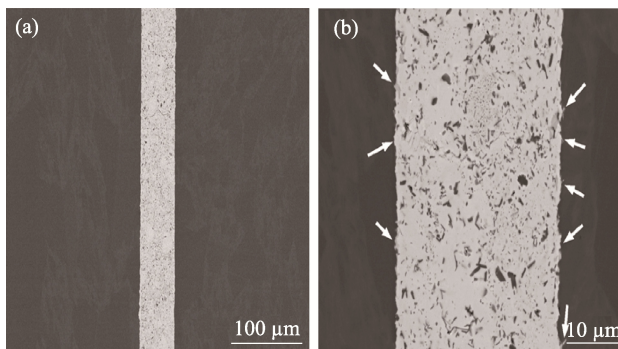


图 8 CVD-SiC/TSC/CVD-SiC 接头背散射 SEM 照片^[46]
Fig. 8 Backscattered SEM images of the polished cross section of the CVD β -SiC joined with the pre-sintered Ti_3SiC_2 foil using SPS^[46]

升温至 1300 °C 时, 仅保留了初始强度的 38%。综上所述, SPS 主要用于连接 SiC 陶瓷及其复合材料等自身扩散系数较低的材料体系, 在连接过程中脉冲电流引发的焦耳加热效应, 会促进界面处物质迁移, 从而在相对低的温度下实现材料的连接, 但其接头耐高温性不是很理想, 需要进一步提升。

3 闪连接(FJ)技术

3.1 陶瓷材料闪连接的机理

闪烧(Flash sintering)是一种基于阈值电场的超快烧结技术, 诸多学者已提出电场诱导缺陷和焦耳热理论来解释闪烧过程^[52-64], 但仍存在争论。最近, 受闪烧技术的启发, 研究者开发了一种基于阈值电场的电场辅助连接技术, 即闪连接(Flash joining, FJ)。FJ 是在力、热、电三场耦合作用下进行的连接过程, 其中外加电场主要为场强较大的直流电场, 可以促使“Flash”现象发生, 但也有研究采用脉冲直流电实现了 SiC 陶瓷闪连接^[65]。闪连接开始时, 施加在样品两端的电压迅速下降, 流经样品的电流发生突增, 外加电源转为恒流控制, 此时的恒流控制值即为阈值电流, 样品在恒流控制的极短时间内完成连接过程(一般为秒级)。以摩尔分数 3% Y_2O_3 稳定的 $ZrO_2(3YSZ)$ 连接为例^[66], 900 °C/1 s 条件下就可以实现材料连接, 连接后的强度达到 590 MPa, 实验设备示意图和闪连过程中电流电压变化如图 10 所示。研究发现, 只有当外加电场强度达到阈值时才能实现被连接母材内部电流突增, 在极短时间内实现陶瓷/陶瓷、陶瓷/金属间的连接。

通常认为陶瓷间的闪连接是通过超塑性变形与扩散连接的协同效应而完成的, 施加的阈值电场促进晶粒群沿着晶界的协同滑动以加速超塑性变形, 为扩散提供足够大的接触面, 同时, 促进界面处的

表 5 使用金属中间层 SPS 连接陶瓷材料

Table 5 SPS joining of ceramic material with metal interlayer

Joining system	Interlayer	Joining conditions	Joint strength characterization	Maximum joint strength/MPa	Main phases at interface	Ref.
SiC/SiC	Y	1900 °C, 100 °C/min, 10 min, 50 MPa	Bending strength	134.8±2.1	ZrO ₂	[50]
SiC/SiC	Ti	1000 °C, 100 °C/min, 5 min, 30 MPa	Bending strength	205.7±24	ZrO ₂ , mZrO ₂	[51]
SiC/SiC	3Ti/1.2Si/ 2C/0.2Al	1600 °C, 100–200 °C/min, 30 MPa	Bending strength	133	TiC, Ti, Al	[48]
SiC coated C/SiC/ SiC coated C/SiC	Ti/Nb/Ti	1200 °C, 100 °C/min, 5 min, 50 MPa	Shear strength	61±6	TiC, Al, Ti	[49]
CVD-SiC/CVD-SiC	Ti	1700 °C, 50 °C/min, 5 min, 60 MPa	Bending strength	126±16	TiC _x , Ti _x Si _y	[22]
Coated C/SiC/ coated C/SiC	Ti	1700 °C, 150–200 °C/min, 3 min, 60 MPa	Shear strength	17.3±7.8	TiSi ₂ , TiC	[40]

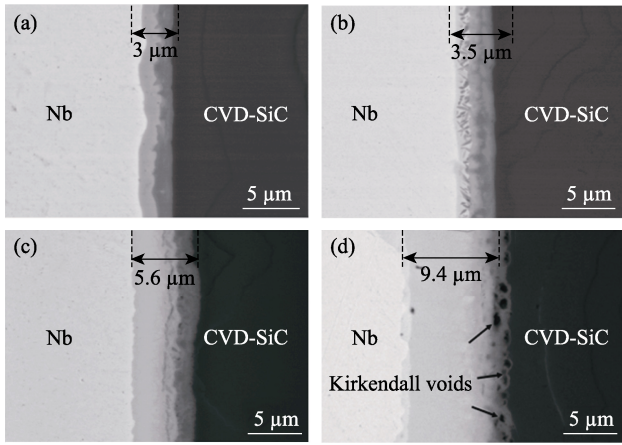
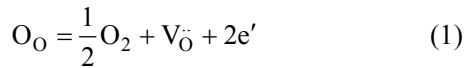


图 9 CVD-SiC/Ti/Nb/Ti/CVD-SiC 接头处微观结构照片^[49]
Fig. 9 Microstructures of CVD-SiC/Ti/Nb/Ti/CVD-SiC joint^[49]
(a) 1000 °C; (b) 1200 °C; (c) 1400 °C; (d) 1600 °C

气孔排出。与此同时，电场将引发缺陷雪崩效应^[67-68]，在被连接材料内部产生大量的带电点缺陷，会为物质扩散提供通道，显著加速结合界面处物质传输，从而快速形成连接界面。然而，陶瓷与金属间的闪连接并未发现陶瓷有明显超塑性变形行为，大量缺陷被阈值电场激发后，促进了界面反应以及物质传输过程。以 3YSZ 和 430SS 的连接为例^[69]，在 3YSZ 阳极侧施加电场，当外加电场超过阈值时，将发生如式(1)反应，生成大量氧空位：



如图 11 所示，氧缺陷在电场作用下向阴极移动，在界面处聚集并促进原子扩散与结合，加速物质传输过程。此外，在陶瓷与陶瓷、陶瓷与金属的闪连接过程中，电流产生的焦耳热也会加快扩散速度，最终实现陶瓷材料的连接。

3.2 陶瓷与陶瓷闪连接的研究进展

闪连接法主要用于氧化锆、氧化铝等陶瓷的连接(如表 6)。Xia 等^[24,70]开展了 3YSZ 陶瓷的闪连接研究，通过施加阈值电场在 60 s 内实现了氧化锆陶

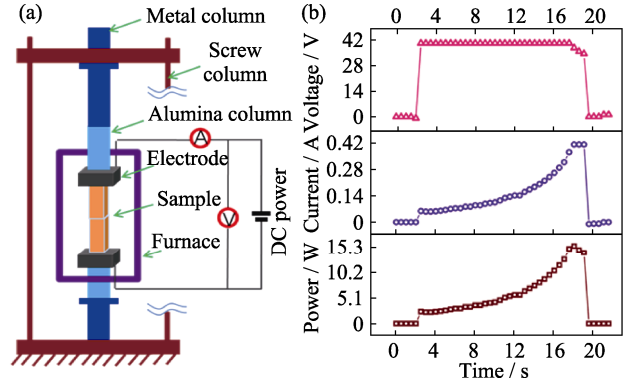


图 10 闪连接示意图与性能^[24]
Fig. 10 Schematic diagram and performance of flash joining^[24]
(a) Schematic of the joining apparatus; (b) Changes of the current, voltage and power dissipation with time

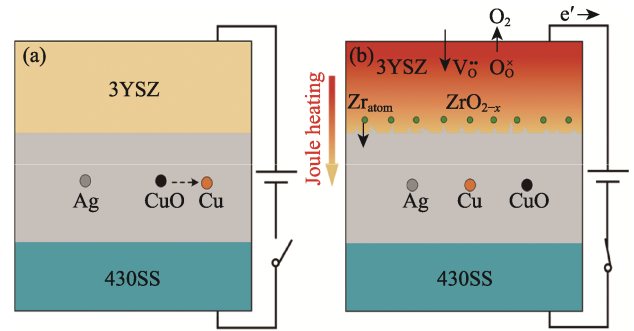


图 11 3YSZ/Ag-CuO/430SS 的界面微观结构演变示意图^[69]
Fig. 11 Schematic diagrams of interfacial microstructure evolution of 3YSZ/Ag-CuO/430SS assembly^[69]
(a) Furnace heating stage; (b) Joule heating, electrochemical reduction of 3YSZ and formation of AgCu₄Zr and Zr-rich IMCs

瓷的快速连接，闪连接后的氧化锆陶瓷接头微观结构如图 12 所示，界面未见反应层，连接区域与母材具有相同的晶体结构。此外，氧化铝陶瓷、BSCF (BaSrCoFeO 钙钛矿)陶瓷等均可在数十秒内实现闪连接。研究发现，连接强度受到电流强度、连接温度和连接时间等因素影响，当连接温度(800 °C)和连接时间(30 s)固定时，3YSZ/3YSZ 接头弯曲强度随着电流密度增加而增大，当电流密度达到阈值(90~110 mA/mm²)时，接头强度急剧升高到 500 MPa

表 6 陶瓷-陶瓷间的闪连接
Table 6 Flash joining between ceramics

Joining system	Joining conditions	Joint strength characterization	Maximum average joint strength/MPa	Ref.
3YSZ/3YSZ	900 °C, 30 V/cm, 100 mA/mm ² , 6 MPa, 1 s	Bending strength	595	[24]
CVD-SiC/Ti/C _f /SiC	1250 °C, 2.2 kW, 370 A, 16 MPa, 7 s	Shear strength	31.4	[65]
3YSZ/3YSZ	800 °C, 50 V/cm, 100 mA/mm ² , 6 MPa, 18 s	Bending strength	606±18	[70]
MgO-doped Al ₂ O ₃ /MgO-doped Al ₂ O ₃	1300 °C, 1500 V/cm, 0.1 A, 4 MPa, 30 s	Shear strength	146	[71]
BSCF/BSCF	1000 °C, 10 V/cm, 0.45 A/mm ² , 10 s	—	—	[72]
ZrO ₂ /ZA/Al ₂ O ₃	1200 °C, 1800 V/cm, 0.3 A, 4 MPa, 30 s	Shear strength	3YSZ/ZA: ~65 ZA/Al ₂ O ₃ : ~30	[73]

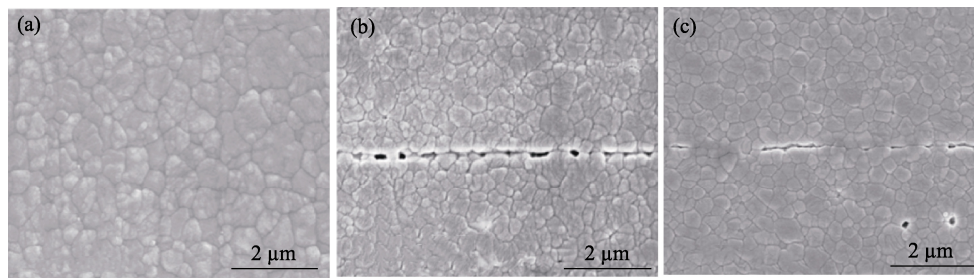


图 12 3YSZ 陶瓷形成的接头的 SEM 照片^[24]

Fig. 12 SEM images of 3YSZ joint^[24]

(a) As-received 3YSZ ceramic; (b) Joint formed at 600 °C; (c) Joint formed at 800 °C

以上; 而当连接温度(800 °C)和电流密度(100 mA/mm²)固定时, 接头弯曲强度随连接时间延长而增大, 在 18 s 时达到最大值 606 MPa^[70]。

除用于同种陶瓷间连接外, 闪连接还可用于异种陶瓷间的连接。Xia 等^[73]使用 3YSZ 和 Al₂O₃ 的复合材料作为中间层(ZrO₂-Al₂O₃, ZA), 在阈值电场作用下快速连接了 3YSZ 和 Al₂O₃ 两种陶瓷, 其连接强度随连接温度升高而明显增大。

3.3 陶瓷与金属闪连接的研究进展

学者们针对陶瓷与金属的闪连接也进行了一系列研究, 研究主要集中在工艺参数(电场方向、电流强度、连接温度、连接时间)对接头结构和连接性能的影响, 部分结果如表 7 所示。ZrO₂ 陶瓷可以在不添加中间层的条件下和钛合金^[74]、镍合金^[75]实现闪

连接。在连接过程中, 施加的阈值电场诱导形成氧缺陷微孔(V_O^x), 并与金属原子发生反应形成连接层, 金属离子也可通过直接扩散进入 3YSZ 形成反应层。但由于陶瓷与金属的热膨胀系数(CTE)存在差异, 接头处将产生较大的残余热应力。通常采用 Ag-CuO、Cu 等容易发生塑性变形的材料作为中间层来连接 3YSZ 陶瓷和金属, 以缓解热失配带来的接头应力问题。当选择 Cu 作为中间层连接 3YSZ 和镍基高温合金(GH3128)时, 外加电场诱导的电化学反应能够改善材料表面润湿性, 大幅加速原子间相互扩散速度, 使得界面间隙迅速被填充, 并生成 Cu-Zr 金属间化合物。

电流强度、连接温度、连接时间等工艺参数对闪连接体的连接强度具有重要影响。图 13 为

表 7 陶瓷-金属间的闪连接

Table 7 Flash joining between ceramics and metals

Joining system	Joining conditions	Joint strength characterization	Maximum joint strength/MPa	Main phases at interface	Ref.
ZrO ₂ /Ti-alloy	700 °C, 100 V/cm, 70 mA/mm ² , 30 s, 10 MPa	Shear strength	67±9	Ti, Zr	[74]
ZrO ₂ /Ni-alloy	800 °C, 100 V/cm, 100 mA/mm ² , 1 s, 5 MPa	Shear strength	133	Ni, Zr	[75]
3YSZ/Ag-CuO/430SS	950 °C, 80 V/cm, 40 mA/mm ² , 30 s, 0.7 MPa	Shear strength	158±9	AgCu ₄ Zr	[69]
3YSZ/Cu/304SS	1200 °C, 50 V/cm, 100 mA/mm ² , 30 s, 6 MPa	Shear strength	21±4	Cu-Zr	[76]
3YSZ/Cu/GH3128	1000 °C, 30 mA/mm ² , 30 s, 0.1 MPa	Shear strength	250±15	Cu-Zr	[77]

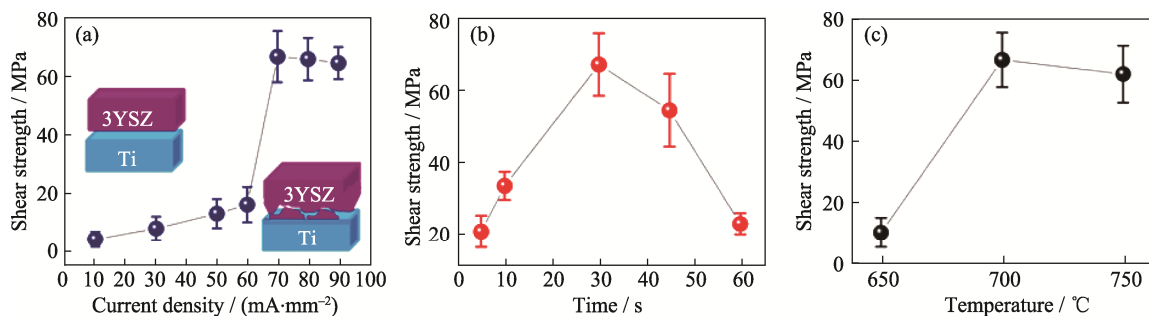


图 13 不同工艺参数下 3YSZ/Ti-alloy 的接头强度变化^[74]

Fig. 13 Shear strength of the 3YSZ/Ti-alloy joint under different conditions^[74]

(a) 700 °C and 30 s at different current densities; (b) 700 °C at current density of 70 mA/mm² for different time; (c) Current density of 70 mA/mm² for 30 s at different temperatures

3YSZ/Ti 闪连接体系中电流密度、连接温度和保温时间对连接强度的影响规律^[74], 当电流密度过低、连接时间过短或者温度过低时, 缺陷形成和填充速率小, 会导致界面结合不完全; 反之, 大量缺陷生成并聚集在陶瓷材料内部, 扩散充分, 接头强度较高。

4 总结与展望

陶瓷材料连接技术对于实际工程应用具有重要意义, 但其自身共价键和离子键为主的特性导致其可焊接性能较差, 而电场作为重要的物理场, 可以在传统的温度场、力场的基础上提供额外的焊接驱动力, 因此电场辅助连接技术对陶瓷材料的焊接技术发展是一种有益的补充。目前发展起来的三种电场辅助连接技术(FDB、SPS 和 FJ)已经在多种陶瓷上开展了相关研究, 电场的引入有利于降低连接温度和缩短连接时间, 但三种连接技术都有一定的局限性。

1) FDB 技术主要适用于高温离子导电玻璃、离子导电型陶瓷与半导体或者金属的连接, 使用较高的电压(1100 V)也可实现氧化铝陶瓷与金属的连接, 电场作用下导电离子扩散及在界面处形成新的反应层是连接的主要机理。由于在连接过程中不产生变形, 该技术在高精度要求的 MEMS(Micro-electro-mechanical system)和光学制造领域具有广泛的应用, 但该技术对陶瓷导电性能要求较高, 适用的陶瓷种类不是很多, 而且连接界面需要进行抛光预处理, 连接时间较长, 其未来的应用领域仍然会集中在小尺寸、高精度的电子和光学行业。

2) SPS 连接是一种低电压大电流的连接技术, 主要用于连接 SiC 等扩散能力较低、结构性能稳定的非氧化物陶瓷及其复合材料, 施加脉冲电流引发焦耳热效应(样品体加热和界面加热), 会提高离子扩散速度, 促进界面的物质迁移。该种连接技术因其广泛的适应性, 受到广大科研工作者的重视, 但现有研究结果发现, 采用 SPS 连接的高熔点陶瓷及复合材料的强度, 特别是高温强度还没有达到预期的水平, 受各种技术手段限制, 还无法完全对连接界面的微观结构进行设计和调控。未来随着先进表征手段的出现, 对连接过程中电场的作用机理认识将进一步加深, 这种技术将在高熔点非氧化陶瓷的连接中发挥更大的作用。

3) FJ 主要用于离子导电型氧化物陶瓷的快速连接, 它主要是利用温度场和电场共同作用引发大量带电点缺陷, 然后在电场作用下产生快速定向扩散效应, 在极短时间(秒级)内实现界面连接。相比于传统的热扩散连接, 其加热温度和连接时间具有颠覆

性的优势。同时, 其连接后的微观界面具有与母材的一致性, 可以真正实现“无缝”连接, 对于某些特殊功能的透明氧化物陶瓷而言, 采用这种连接制度在保证强度的同时, 还可以实现高光学质量。但是采用这种技术连接的陶瓷必须具备在高温和电场作用下快速产生大量点缺陷的能力(雪崩效应), 因此未来探索适合于闪连接的陶瓷类型, 揭示各种陶瓷材料闪连接阈值电场-连接温度-接头微观结构之间的构效关系, 是实现闪连接从实验室走向实际应用的必经之路。

参考文献:

- [1] LI Z R, GU W, FENG J C. Research status of ceramic and metal joining. *Welding*, 2008(3): 55.
- [2] SHI K Q, LI M, ZHU D D, *et al.* Research progress of brazing between ceramic and metal. *Thermal processing*, 2021, 50(13): 7.
- [3] JIAO R B, RONG S F, LI H B, *et al.* Current situation and prospect of advanced ceramics and metal connections. *Foshan Ceramics*, 2018, 28(3): 6.
- [4] CONG S S. State-of-the-art bonding methods for ceramics and metals. *Bonding*, 1983(3): 21.
- [5] FU W, SONG X G, ZHAO Y X, *et al.* Indirect brazing of Al₂O₃ ceramics and copper. *Journal of Welding*, 2015, 36(6): 27.
- [6] LIU H J, LI Z R, FENG J C, *et al.* Vacuum brazing of SiC ceramics and TiAl alloys. *Welding*, 1999(3): 7.
- [7] WANG Q, CHEN G Q, WANG K, *et al.* Microstructural evolution and growth kinetics of interfacial compounds in TiAl/Ti₃SiC₂ diffusion bonding joints. *Materials Science and Engineering A-Structural Materials Properties Microstructure and Processing*, 2019, 756: 149.
- [8] ZHANG C G, QIAO G J, JIN Z H. Active brazing of pure alumina to Kovar alloy based on the partial transient liquid phase (PTLP) technique with Ni-Ti interlayer. *Journal of the European Ceramic Society*, 2002, 22(13): 2181.
- [9] LI S J, ZHOU Y, DUAN H P, *et al.* Joining of SiC ceramic to Ni-based superalloy with functionally gradient material fillers and a tungsten intermediate layer. *Journal of Materials Science*, 2003, 38(19): 4065.
- [10] ESSA A A, BAHRANI A S. The friction joining of ceramics to metals. *Journal of Materials Processing Technology*, 1991, 26(2): 133.
- [11] DOEHLER F, ZSCHECKEL T, KASCH S, *et al.* A glass in the CaO/MgO/Al₂O₃/SiO₂ system for the rapid laser sealing of alumina. *Ceramics International*, 2017, 43(5): 4302.
- [12] RABIN B H. Joining of silicon carbide/silicon carbide composites and dense silicon carbide using combustion reactions in the titanium-carbon-nickel system. *Journal of the American Ceramic Society*, 1992, 75(1): 131.
- [13] FERNIE J A, DREW R A L, KNOWLES K M. Joining of engineering ceramics. *International Materials Reviews*, 2009, 54(5): 283.
- [14] JING W, ZHANG H. Influence of packaging technology on performance of power semiconductor modules. *Power Electronics Technology*, 2018, 52(8): 1.
- [15] LIU F J, DU Z L, CHEN S P, *et al.* Effect of electric field on the structure and mechanical properties of AZ₃₁B/Al diffusion bonding interface. *Weapon Materials Science and Engineering*, 2009, 32(5): 18.

- [16] WALLIS G, POMERANTZ D I. Field assisted glass-metal sealing. *Journal of Applied Physics*, 1969, **40(10)**: 3946.
- [17] BYEON S C, HONG K S. Electric field assisted bonding of ceramics. *Materials Science and Engineering A-Structural Materials Properties Microstructure and Processing*, 2000, **287(2)**: 159.
- [18] MUNIR Z A, ANSEMI-TAMBURINI U, OHYANAGI M. The effect of electric field and pressure on the synthesis and consolidation of materials: a review of the spark plasma sintering method. *Journal of Materials Science*, 2006, **41(3)**: 763.
- [19] DONG H, LI S, TENG Y, *et al.* Joining of SiC ceramic-based materials with ternary carbide Ti_3SiC_2 . *Materials Science and Engineering: B*, 2011, **176(1)**: 60.
- [20] 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. *Journal of the European Ceramic Society*, 2018, **38(10)**: 3433.
- [21] TATARKO P, CASALEGNO V, HU C, *et al.* Joining of CVD-SiC coated and uncoated fibre reinforced ceramic matrix composites with pre-sintered Ti_3SiC_2 MAX phase using Spark Plasma Sintering. *Journal of the European Ceramic Society*, 2016, **36(16)**: 3957.
- [22] GRASSO S, TATARKO P, RIZZO S, *et al.* Joining of β -SiC by spark plasma sintering. *Journal of the European Ceramic Society*, 2014, **34(7)**: 1681.
- [23] ZHOU X, HAN Y H, SHEN X, *et al.* Fast joining SiC ceramics with Ti_3SiC_2 tape film by electric field-assisted sintering technology. *Journal of Nuclear Materials*, 2015, **466**: 322.
- [24] XIA J, REN K, WANG Y. One-second flash joining of zirconia ceramic by an electric field at low temperatures. *Scripta Materialia*, 2019, **165**: 34.
- [25] KNOWLES K M, VAN HELVOORT A T J. Anodic bonding. *International Materials Reviews*, 2006, **51(5)**: 273.
- [26] PAN R. Study on technology and mechanism of electric-assisted diffusion bonding of alumina ceramic to Ti. Harbin: Master Thesis of Harbin Institute of Technology, 2013.
- [27] DUNN B. Field-assisted bonding of beta-alumina to metals. *Journal of the American Ceramic Society*, 1979, **62(11/12)**: 545.
- [28] BYEON S C, BYUN T Y, HONG K S. Bonding between single-crystal manganese-zinc ferrites using electric field. *Journal of Materials Research*, 1998, **13(11)**: 3191.
- [29] BYEON S C, JE H J, HONG K S. Direct current-induced bonding between single- and polycrystalline manganese-zinc ferrites. *IEEE Transactions on Magnetics*, 2000, **36(1)**: 371.
- [30] LU F H, DIECKMANN R. Point defects and cation tracer diffusion in $(Co, Fe, Mn)_{3-\delta}O_4$ spinels: I. Mixed spinels $(Co_xFe_{2-x}Mn_{1-x})_{3-\delta}O_4$. *Solid State Ionics*, 1992, **53-56**: 290.
- [31] LU F H, DIECKMANN R. Point defects and cation tracer diffusion in $(Co, Fe, Mn)_{3-\delta}O_4$ spinels: II. Mixed spinels $(Co_xFe_2Mn_{2-x})_{3-\delta}O_4$. *Solid State Ionics*, 1993, **59(1)**: 71.
- [32] ARATA Y, OHMORI A, SANO A. Interfacial phenomena during field assisted bonding of zirconia to metals. *Transactions of JWRI*, 1986, **15(2)**: 387.
- [33] YANG B, SHEN P, YU L T, *et al.* Electrochemically-driven direct joining of Ni and ZrO_2 . *Scripta Materialia*, 2017, **141**: 41.
- [34] PAN R, WANG Q, SUN D, *et al.* Effects of electric field on interfacial microstructure and shear strength of diffusion bonded α - Al_2O_3 /Ti joints. *Journal of the European Ceramic Society*, 2015, **35(1)**: 219.
- [35] DONG P, WANG Z, WANG W, *et al.* Understanding the spark plasma sintering from the view of materials joining. *Scripta Materialia*, 2016, **123**: 118.
- [36] MAMEDOV V. Spark plasma sintering as advanced PM sintering method. *Powder Metallurgy*, 2002, **45(4)**: 322.
- [37] SHEN Z, JOHNSON M, ZHAO Z, *et al.* Spark plasma sintering of alumina. *Journal of the American Ceramic Society*, 2002, **85(8)**: 1921.
- [38] GUILLON O, GONZALEZ-JULIAN J, DARGATZ B, *et al.* Field-assisted sintering technology/Spark plasma sintering: mechanisms, materials, and technology developments. *Advanced Engineering Materials*, 2014, **16(7)**: 830.
- [39] LI H, KOYANAGI T, ANG C, *et al.* Electric current-assisted direct joining of silicon carbide. *Journal of the European Ceramic Society*, 2021, **41(5)**: 3072.
- [40] RIZZO S, GRASSO S, SALVO M, *et al.* Joining of C/SiC composites by spark plasma sintering technique. *Journal of the European Ceramic Society*, 2014, **34(4)**: 903.
- [41] SHEN L, XUE J M, BARSOUM M W, *et al.* Rapid bonding of Ti_3SiC_2 and Ti_3AlC_2 by pulsed electrical current heating. *Journal of the American Ceramic Society*, 2014, **97(12)**: 3721.
- [42] ZHOU X, SHI L-K, ZOU S, *et al.* Fast seamless joining of SiC_w/Ti_3SiC_2 composite using electric field-assisted sintering technique. *International Journal of Applied Ceramic Technology*, 2021, **18(5)**: 1670.
- [43] HUGHES L A, VAN BENTHEM K. Spark plasma sintering apparatus used for the formation of strontium titanate bicrystals. *Journal of Visualized Experiments*, 2017, **120**: 1.
- [44] NISAR A, DOLMETSCH T, PAUL T, *et al.* Electric field assisted solid-state interfacial joining of TaC-HfC ceramics without filler. *Journal of the American Ceramic Society*, 2021, **104(6)**: 2483.
- [45] LIU L, YE F, ZHOU Y, *et al.* Fast bonding α -SiAlON ceramics by spark plasma sintering. *Journal of the European Ceramic Society*, 2010, **30(12)**: 2683.
- [46] TATARKO P, CHLUP Z, MAHAJAN A, *et al.* High temperature properties of the monolithic CVD beta-SiC materials joined with a pre-sintered MAX phase Ti_3SiC_2 interlayer via solid-state diffusion bonding. *Journal of the European Ceramic Society*, 2017, **37(4)**: 1205.
- [47] YU Y, DONG H, MA B, *et al.* Effect of different filler materials on the microstructure and mechanical properties of SiC-SiC joints joined by spark plasma sintering. *Journal of Alloys and Compounds*, 2017, **708**: 373.
- [48] DONG H, YU Y, JIN X, *et al.* Microstructure and mechanical properties of SiC-SiC joints joined by spark plasma sintering. *Ceramics International*, 2016, **42(13)**: 14463.
- [49] ZHAO X, DUAN L, WANG Y. Fast interdiffusion and Kirkendall effects of SiC-coated C/SiC composites joined by a Ti-Nb-Ti interlayer via spark plasma sintering. *Journal of the European Ceramic Society*, 2019, **39(5)**: 1757.
- [50] ZHOU X, LIU J, ZOU S, *et al.* Almost seamless joining of SiC using an *in-situ* reaction transition phase of $Y_3Si_2C_2$. *Journal of the European Ceramic Society*, 2020, **40(2)**: 259.
- [51] YANG H, ZHOU X, SHI W, *et al.* Thickness-dependent phase evolution and bonding strength of SiC ceramics joints with active Ti interlayer. *Journal of the European Ceramic Society*, 2017, **37(4)**: 1233.
- [52] AKDOGAN E K, SAVKLIYILDIZ I, BICER H, *et al.* Anomalous lattice expansion in yttria stabilized zirconia under simultaneous applied electric and thermal fields: a time-resolved *in situ* energy dispersive X-ray diffractometry study with an ultrahigh energy synchrotron probe. *Journal of Applied Physics*, 2013, **113(23)**: 3503.
- [53] GRIMLEY C A, PRETTE A L G, DICKEY E C. Effect of boundary conditions on reduction during early stage flash sintering of YSZ. *Acta Materialia*, 2019, **174**: 271.
- [54] TODD R I, ZAPATA-SOLVAS E, BONILLA R S, *et al.* Electrical characteristics of flash sintering: thermal runaway of Joule heating. *Journal of the European Ceramic Society*, 2015, **35(6)**: 1865.

- [55] ZHANG Y Y, NIE J Y, LUO J. Flash sintering activated by bulk phase and grain boundary complexion transformations. *Acta Materialia*, 2019, **181**: 544.
- [56] NAIK K S, SGLAVO V M, RAJ R. Flash sintering as a nucleation phenomenon and a model thereof. *Journal of the European Ceramic Society*, 2014, **34(15)**: 4063.
- [57] RAJ R, COLOGNA M, FRANCIS J S C. Influence of externally imposed and internally generated electrical fields on grain growth, diffusional creep, sintering and related phenomena in ceramics. *Journal of the American Ceramic Society*, 2011, **94(7)**: 1941.
- [58] CHAIM R. Liquid film capillary mechanism for densification of ceramic powders during flash sintering. *Materials*, 2016, **9(4)**: 280.
- [59] CHAIM R, AMOYAL Y. Liquid-film assisted mechanism of reactive flash sintering in oxide systems. *Materials*, 2019, **12(9)**: 1494.
- [60] DONG Y H, CHEN I W. Predicting the onset of flash sintering. *Journal of the American Ceramic Society*, 2015, **98(8)**: 2333.
- [61] YU M, GRASSO S, MCKINNON R, *et al.* Review of flash sintering: materials, mechanisms and modelling. *Advances in Applied Ceramics*, 2017, **116(1)**: 24.
- [62] JI W, PARKER B, FALCO S, *et al.* Ultra-fast firing: effect of heating rate on sintering of 3YSZ, with and without an electric field. *Journal of the European Ceramic Society*, 2017, **37(6)**: 2547.
- [63] ZHANG Y Y, JUNG J I, LUO J. Thermal runaway, flash sintering and asymmetrical microstructural development of ZnO and ZnO-Bi₂O₃ under direct currents. *Acta Materialia*, 2015, **94**: 87.
- [64] MISHRA T P, AVILA V, NETO R R I, *et al.* On the role of debye temperature in the onset of flash in three oxides. *Scripta Materialia*, 2019, **170**: 81.
- [65] TATARKO P, GRASSO S, SAUNDERS T G, *et al.* Flash joining of CVD-SiC coated C/SiC composites with a Ti interlayer. *Journal of the European Ceramic Society*, 2017, **37(13)**: 3841.
- [66] XIA J B, REN K, WANG Y G. One-second flash joining of zirconia ceramic by an electric field at low temperatures. *Scripta Materialia*, 2019, **165**: 34.
- [67] FRANCIS J S C, RAJ R. Flash-sinter-forging of nanograin zirconia: field assisted sintering and super-plasticity. *Journal of the American Ceramic Society*, 2012, **95(1)**: 138.
- [68] FRANCIS J S C, RAJ R. Influence of the field and the current limit on flash sintering at isothermal furnace temperatures. *Journal of the American Ceramic Society*, 2013, **96(9)**: 2754.
- [69] CAO Y, XU G C, SHEN P. Flash joining of 3YSZ and 430 SS using Ag-CuO filler. *Ceramics International*, 2022, **48(3)**: 4005.
- [70] XIA J B, REN K, LIU W, *et al.* Ultrafast joining of zirconia ceramics using electric field at low temperatures. *Journal of the European Ceramic Society*, 2019, **39(10)**: 3173.
- [71] XIA J, REN K, WANG Y. Flash joining of alumina ceramics under a small current density. *Journal of the European Ceramic Society*, 2021, **41(4)**: 2782.
- [72] SHI D. Research on the process and mechanism of BSCF ceramics' flash sintering and flash joining. Harbin: Master Thesis of Harbin Institute of Technology, 2020.
- [73] XIA J, REN K, WANG Y. Rapid joining of heterogeneous ceramics with a composite interlayer under the action of an electric field. *Journal of the European Ceramic Society*, 2021, **41(14)**: 7164.
- [74] XIA J B, REN K, WANG Y G. Reversible joining of zirconia to titanium alloy. *Ceramics International*, 2019, **45(2)**: 2509.
- [75] XIA J B, REN K, WANG Y G, *et al.* Reversible flash-bonding of zirconia and nickel alloys. *Scripta Materialia*, 2018, **153**: 31.
- [76] CAO Y, XU G C, LI L, *et al.* Flash sintering of 3YSZ and *in-situ* joining with 304 stainless steel using copper as an interlayer. *Scripta Materialia*, 2021, **194**: 5.
- [77] LI L, LIANG Y Z, CHEN S M, *et al.* Ultrafast and robust joining of 3YSZ and GH3128 superalloy using Cu interlayer under an electric field. *Journal of Alloys and Compounds*, 2022, **890**: 161893.