

## 等离子喷涂-物理气相沉积 Si/莫来石/Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> 环境障涂层

张小锋<sup>1,2</sup>, 周克崧<sup>1,2</sup>, 刘敏<sup>2</sup>, 邓春明<sup>2</sup>, 牛少鹏<sup>2</sup>, 许世鸣<sup>2</sup>

(1. 华南理工大学 材料科学与工程学院, 广州 510640; 2. 广东省新材料研究所, 现代材料表面工程技术国家工程实验室, 广东省现代表面工程技术重点实验室, 广州 510650)

**摘要:** 采用等离子喷涂-物理气相沉积技术(PS-PVD)在 SiC/SiC 复合材料表面依次制备了 Si(底层)、3Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-2SiO<sub>2</sub> (中间层)、Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>(面层)环境障涂层(EBC)。利用扫描电子显微镜(SEM)观察分析 EBC 涂层表面与界面的微观形貌, X 射线衍射仪对喷涂过程中易非晶化的莫来石涂层进行物相分析, 研究了喷涂粉末与高温等离子体的相互作用并探讨了 EBC 涂层的沉积机制。结果表明: 通过 PS-PVD 技术可制备出低孔隙率、高致密界面的 EBC 涂层。通过观察 EBC 涂层表面, Si 涂层表面无裂纹, 而莫来石和 Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> 涂层表面均发现有微裂纹, 其中莫来石涂层表面的裂纹尺度大于 Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> 涂层。三层结构的致密 EBC 涂层以液相沉积为主, 同时伴随有气、固沉积。在 Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> 涂层沉积过程中, 液相沉积导致涂层为致密的层状结构, 蒸发后气相在等离子焰流中及基体表面发生均匀形核和非均匀形核导致涂层中出现大量的纳米晶粒, 而微熔粒子和溅射粒子则形成涂层中亚微米、微米晶粒。

**关键词:** 等离子喷涂-物理气相沉积; 环境障涂层; 硅酸锆

中图分类号: TQ174 文献标识码: A

## Preparation of Si/Mullite/Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> Environment Barrier Coating (EBC) by Plasma Spray-Physical Vapor Deposition (PS-PVD)

ZHANG Xiao-Feng<sup>1,2</sup>, ZHOU Ke-Song<sup>1,2</sup>, LIU Min<sup>2</sup>, DENG Chun-Ming<sup>2</sup>, NIU Shao-Peng<sup>2</sup>, XU Shi-Ming<sup>2</sup>

(1. School of Materials Science and Engineering, South China University of Technology, Guangzhou 510640, China; 2. National Engineering Laboratory for Modern Materials Surface Engineering Technology & the Key Lab of Guangdong for Modern Surface Engineering Technology, Guangdong Institute of New Materials, Guangzhou 510650, China)

**Abstract:** Environmental barrier coating (EBC) Si/3Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-2SiO<sub>2</sub>/Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> was prepared by plasma spray-physical vapor deposition (PS-PVD) on SiC/SiC ceramic matrix composites. The surface and interface of tri-layered EBC were characterized by SEM. And the phase transformation of the mullite coating was analyzed by XRD. The interaction of feedstock powder and high temperature plasma jet was investigated. Furthermore, the deposition mechanism of EBC was studied. Experimental results demonstrated that EBC with low porosity and good bonding can be obtained by PS-PVD. EBC without micro-crack was observed on the surface of Si coating in contrast to coating mullite and Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> coating. The size of crack in mullite surface was larger than that in Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> coating. Low porous EBC was deposited by liquid droplet accompanied by gas and solid state through PS-PVD. Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> coating was dense and formed laminar structure, mainly resulting from liquid droplet deposition. Additionally, nano-grains were observed in Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> coating which resulted from both homogeneous and heterogeneous nucleation of vapor

收稿日期: 2017-04-21; 收到修改稿日期: 2017-06-30

基金项目: 广东省科学院项目(2017GDASCX-0843); 广东省科技计划(201313050800031, 201413050502008, 2014B070706026, 2013B061800053); 广东省自然科学基金团队项目(2016A030312015)  
Guangdong Academy of Sciences (2017GDASCX-0843), Guangdong Technical Research Program (201313050800031, 201413050502008, 2014B070706026, 2013B061800053); Guangdong Natural Science Foundation (2016A030312015)

作者简介: 张小锋(1986-), 男, 博士, 工程师. E-mail: zxf200808@126.com

通讯作者: 周克崧, 教授. E-mail: kszhou2004@163.com

phase. And sub-micron/micron grains were obtained from semi-molten and splashed particles.

**Key words:** plasma spray-physical vapor deposition; environmental barrier coating;  $\text{Yb}_2\text{SiO}_5$

为满足我国先进战机的要求,新一代航空发动机推重比设计要求大于 10。提升航空发动机推重比的方法包括提高使用温度和降低结构重量,陶瓷基复合材料(CMC)使用温度可比高温合金提高 300℃左右,密度仅为高温合金的 1/3~1/4,因此它已成为大推重比航空发动机的首选热端部件材料<sup>[1-2]</sup>。新一代航空发动机的热端部件,如尾喷管调节片、密封片等部位就设计采用了更耐高温的低密度纤维增强陶瓷基复合材料,以提高进口温度,降低整体结构重量。但是航空发动机服役期间需要不断重复启动、飞行、停车的热循环过程,热端部件需多次经历低、中、高温反复热震,并且在室温至高温的全温度段暴露于空气气氛中,服役环境恶劣,氧化、烧蚀等问题突出。以 SiC/SiC 为代表的陶瓷基复合材料部件如直接使用,则存在中低温氧化(<800℃)、中高温冲刷、烧蚀破坏失效等问题,将直接威胁发动机及飞行器的安全。这些安全隐患依靠单纯的陶瓷基复合材料性能优化难以消除,因此急需开展高性能陶瓷基复合材料热防护涂层研制,为陶瓷基复合材料热端部件提供全温度段有效热防护,以保证热端结构部件在飞行过程的可靠性及稳定性<sup>[1,3-4]</sup>。

此外,在发动机高温服役环境下,由于空气中含有大量的水蒸气, SiC 与空气中的氧气和水蒸气均发生反应形成  $\text{SiO}_2$ , 随后  $\text{SiO}_2$  与水蒸气发生反应生成挥发性  $\text{Si}(\text{OH})_4$  促使 SiC/SiC 复合材料中的纤维暴露在空气中,纤维与空气中的氧气和水蒸气又进一步反应,如此循环,最终导致 SiC/SiC 复合材料的性能急剧下降。兼顾到航空发动机的恶劣服役环境和水氧腐蚀等工况,为延长 SiC/SiC 复合材料在高推重比航空发动机苛刻环境下的服役寿命,在 SiC/SiC 复合材料基体表面制备环境障涂层(EBC, Environmental Barrier Coating)是一种有效的解决途径<sup>[5]</sup>。经过 30 多年的摸索与发展, EBC 涂层大致经历了三个阶段<sup>[1,2,4-6]</sup>: 第一代,莫来石与氧化钇稳定氧化锆(Mullite/YSZ)体系;第二代,钡锶铝硅酸盐(BSAS,  $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_8$ ,  $0 \leq x \leq 1$ )体系;第三代,稀土硅酸盐(Rare-Earth (RE) Silicates, RE: 稀土元素)体系。随着 EBC 涂层的发展,其制备工艺也随之发展,主要有浆料法、溶胶-凝胶法、聚合物转化陶瓷法和大气等离子喷涂法(APS)等制备方法<sup>[7-10]</sup>。

传统 EBC 涂层一般采用 APS 制备,尽管该技术

成本低且在国内外已得到应用,但该方法存在如下缺点<sup>[5]</sup>: (1)喷涂 Si 涂层时容易氧化,导致 Si 涂层含有氧化物夹杂,使得高温下 Si 涂层的韧性和粘性降低,自愈合性能下降; (2)喷涂莫来石涂层时,由于基体温度较低(<300℃),熔融的莫来石凝固降温速率大,导致莫来石涂层中含有大量未结晶的亚稳态莫来石相,这种莫来石在高温服役时较易发生结晶即从亚稳态向稳态的转变,相变产生的热应力将会导致莫来石涂层在服役过程中形成裂纹。因此,喷涂莫来石涂层时基体温度必须保持在无定形莫来石结晶温度以上,以提高莫来石涂层的抗裂纹能力,并且涂层的高温粘结性能也能得到很好的改善。基于上述分析,本研究采用新型等离子喷涂-物理气相沉积涂层技术(PS-PVD, Plasma Spray-Physical Vapor Deposition)在 SiC/SiC 复合材料表面依次制备致密的 Si、 $3\text{Al}_2\text{O}_3\text{-}2\text{SiO}_2$ 、 $\text{Yb}_2\text{SiO}_5$  三层结构的 EBC 涂层,首先观察和分析了 EBC 涂层中各涂层表面和界面形貌,其次探讨了喷涂粉末与高温等离子体的相互作用,并提出致密 EBC 涂层的沉积机制。

## 1 实验方法

### 1.1 试样制备

实验采用 5719 厂提供的 SiC/SiC 复合材料为基体(50 mm×5 mm×3 mm),采用等离子喷涂-物理气相沉积技术(PS-PVD, Oerlikon-Metco)在基体表面制备 Si、 $3\text{Al}_2\text{O}_3\text{-}2\text{SiO}_2$ 、 $\text{Yb}_2\text{SiO}_5$  多层结构的 EBC 涂层,其中 Si(图 1(a))和莫来石(图 1(b))为市售喷涂粉末, $\text{Yb}_2\text{SiO}_5$  喷涂粉末是先采用固相法合成一次颗粒,然后采用喷雾造粒工艺制备得到的团聚颗粒(图 1(c))。把 SiC/SiC 基体固定在工装上,喷涂过程中以 60 r/min 旋转依次用不同工艺喷涂底层 Si、中间层  $3\text{Al}_2\text{O}_3\text{-}2\text{SiO}_2$  和面层  $\text{Yb}_2\text{SiO}_5$ ,其中基体温度依次控制在 600、800、600℃。具体喷涂过程如下:首先用煤油、丙酮、酒精依次对样品进行超声除油,清洗完毕后把样品放置在喷涂夹具上,设置好机械手喷涂程序;然后通过真空泵把喷涂真空罐抽至 150 Pa,再回填氩气至 4000 Pa 时进行喷枪点火;最后通过等离子体先预热基体至相应温度(通过红外测温仪监控基体温度),通过机械手调整喷距进行双管内送粉喷涂,在喷涂  $\text{Yb}_2\text{SiO}_5$  涂层过程中对真空罐进行适量的补氧防止晶体失氧。

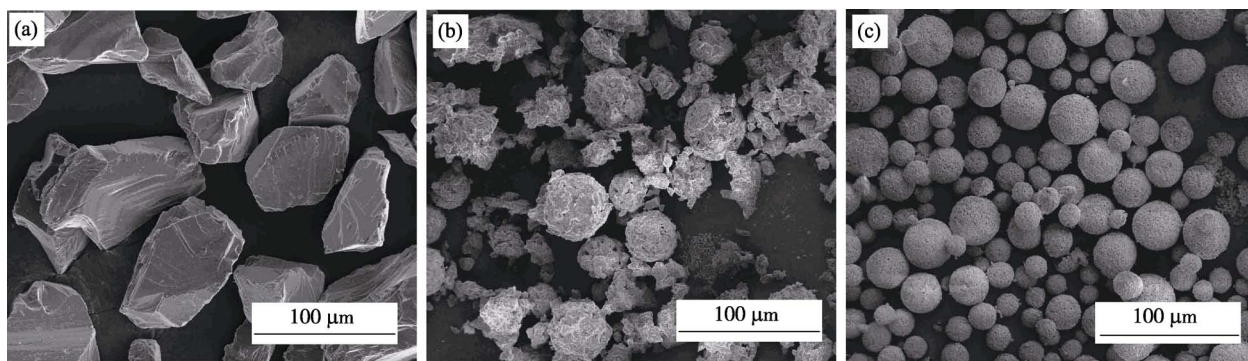


图1 (a)Si粉末, (b)莫来石团聚粉末和(c)Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>团聚粉末的形貌

Fig. 1 Micrographs of (a) Si powders, (b) agglomerated mullite powders and (c) agglomerated Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> powders

## 1.2 样品分析

采用场发射-扫描电子显微镜(FE-SEM, Nava-Nano-430, FEI) 对制备好的 EBC 涂层进行表征, 观察 EBC 涂层中各涂层表面及界面的形貌。对喷涂前后莫来石、Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> 粉末和涂层进行 XRD 分析(D8-Advance, Bruker, 0.02°/step, Cu-Kα, 10°~90°), 研究物相变化。

## 2 结果与讨论

### 2.1 EBC 涂层形貌及相结构分析

SiC/SiC 复合材料表面形貌如图 2(a)所示, 其主要由纤维编制而成, 纤维之间存在不同尺寸的孔洞。采用 PS-PVD 在基体表面依次喷涂 Si、3Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-2SiO<sub>2</sub>、Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> 三层涂层后, 其形貌如图 2(b)所示, 表面为 Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> 涂层形貌, 经涂层沉积后, 原基体表面的孔洞尺寸已减小且部分孔洞已填隙。

EBC 涂层的断面形貌如图 3(a)所示, 其中底层 Si、中间层 3Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-2SiO<sub>2</sub> 和面层 Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> 的厚度分别为 50、70、110 μm, 图 3(b)~(d)分别为 Si、3Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-2SiO<sub>2</sub>、Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> 三种涂层之间的界面形貌, 由图显示 Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> 涂层为层状结构, 涂层致密度较高, 无明显的贯通裂纹与孔洞; 3Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-2SiO<sub>2</sub> 涂层为致密结构, 虽然涂层中无贯通裂纹和孔洞, 但是涂层中含有少量独立的孔洞; Si 涂层为致密结构, 也无明显孔隙和裂纹。三种涂层之间涂层界面结合紧密, 其中 Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> 与 3Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-2SiO<sub>2</sub> 涂层之间存在明显界面; 3Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-2SiO<sub>2</sub> 涂层与 Si 涂层之间界面较为模糊, 说明两涂层材料高温润湿性较好; Si 涂层与基体界面相容性则介于前两者之间。PS-PVD 作为一种新型热喷涂技术, 其主要优点在于功率高(额定功率可到 180 kW)和真空度较低, 较高的功率可使喷涂材料实现气、固、液多相沉积, 较低的喷涂压力使粉

末粒子拥有较高的飞行速度(>300 m/s), 因此通过 PS-PVD 技术可获得致密的结构或功能涂层<sup>[11-13]</sup>。在喷涂 EBC 涂层时, 高温、高速的等离子焰流可使喷涂粉末 Si、3Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-2SiO<sub>2</sub> 以及 Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> 熔融充分, 甚至气化, 从而在基体表面获得低孔隙率、高致密界面的 EBC 涂层。

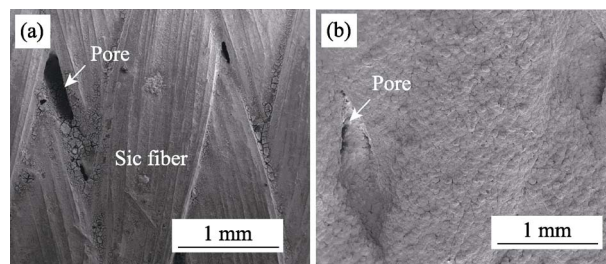


图2 (a)喷涂前和(b)喷涂后样品表面的 SEM 照片

Fig. 2 Surface SEM images of (a) original sample and (b) EBC sample

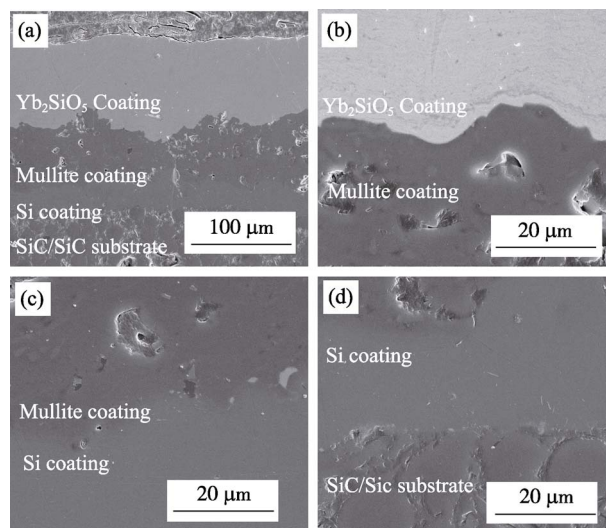


图3 (a)EBC 涂层断面, (b)Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>/莫来石涂层界面, (c)莫来石/Si 涂层界面和(d)Si/基体界面的 SEM 照片

Fig. 3 SEM images of (a) cross-section of EBC, (b) interface of Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> and mullite coating, (c) interface of mullite and Si coating and (d) interface of Si and substrate



EBC 涂层中莫来石和  $\text{Yb}_2\text{SiO}_5$  的物相分析如图 4 所示。图 4(a)中(a1)和(a2)分别为莫来石喷涂粉末和 PS-PVD 莫来石涂层的 XRD 图谱, 对比分析表明, 莫来石涂层衍射峰没有出现明显的宽化现象, 表明喷涂过程中莫来石晶粒结晶程度高, 并没有形成明显的亚稳相, 因此, PS-PVD 高基体预热温度有助于避免涂层非晶现象的产生, 进而避免传统 APS 喷涂技术的缺点。图 4(b)中(b1)和(b2)分别为  $\text{Yb}_2\text{SiO}_5$  喷涂粉末和 PS-PVD  $\text{Yb}_2\text{SiO}_5$  涂层的 XRD 图谱,  $\text{Yb}_2\text{SiO}_5$  粉末由  $\text{Yb}_2\text{O}_3$  和  $\text{SiO}_2$  高温固相反应合成, 与其标准卡片(PDF 40-0386)对比, 衍射峰拟合度较高, 因此采用固相法可获得高纯度及高结晶度的  $\text{Yb}_2\text{SiO}_5$  粉末。该粉末经过 PS-PVD 喷涂后获得  $\text{Yb}_2\text{SiO}_5$  涂层, 发现涂层的衍射峰消失, 出现了晶体择优取向生长现象。

## 2.2 EBC 涂层微裂纹形成机制

通过 EBC 断面形貌分析表明, EBC 中三种涂层均为致密结构, 其中 Si 涂层和莫来石涂层没有典型的层状结构,  $\text{Yb}_2\text{SiO}_5$  涂层有明显的层状结构。尽管 EBC 涂层断面不存在明显的裂纹, 但有部分涂层表面存在少量的微裂纹, 图 5(a)~(c)分别为 Si、莫来石

和  $\text{Yb}_2\text{SiO}_5$  涂层的表面形貌。图 5(a)中显示 Si 涂层表面较为光滑, 其表面由熔融性较好的扁平粒子组成, 同时还存在少量的微熔和溅射粒子。图 5(b)为莫来石涂层表面形貌, 表面存在交织的微裂纹, 表面的微熔和溅射粒子均大于 Si 涂层。图 5(c)为  $\text{Yb}_2\text{SiO}_5$  涂层表面形貌, 涂层表面也存在微裂纹, 但裂纹尺度比莫来石涂层小, 涂层表面微熔和溅射粒子数量大于 Si 涂层但小于莫来石涂层。

涂层表面存在微裂纹有利于增加涂层应力容限, 提高涂层抗剥落能力, 但微裂纹的存在又会加速水蒸气和熔融腐蚀物向涂层内部渗透, 加速失效。在喷涂过程中, 涂层裂纹的形成主要归因于涂层应力的产生包括淬火应力、冷却应力、相变应力等。

淬火应力是喷涂粒子由液态向固态凝固形成的应力, 其主要取决于材料本身的性质如表面张力, 不同材料具有不同的表面张力, 表面张力与原子间的键能相关。由热力学理论可知, 材料表面张力与材料表面内能和界面张力(本研究中是指液-固)相关, 如表达式(1)所示<sup>[14]</sup>:

$$\delta = U + T \frac{d\gamma}{dT} \quad (1)$$

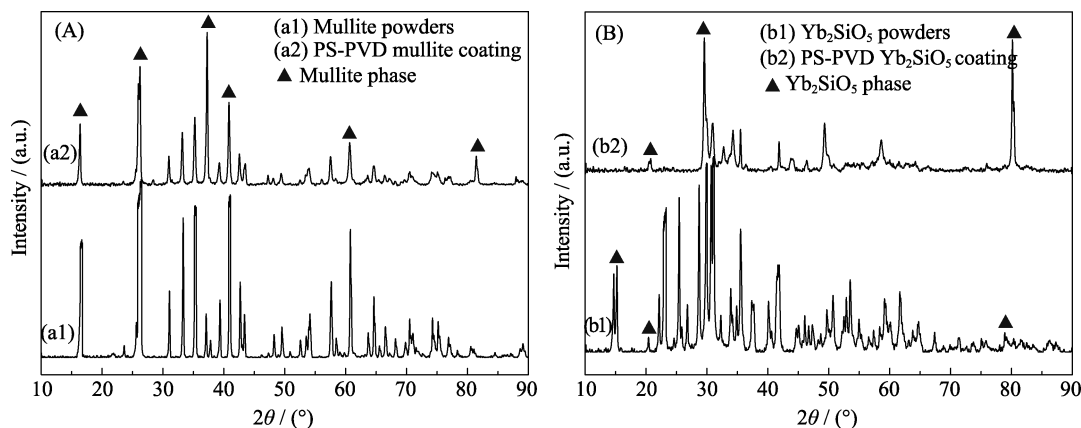


图 4 粉末和涂层的 XRD 图谱

Fig. 4 XRD patterns of powders and coatings

(a1) Mullite powders; (a2) Mullite coating; (b1)  $\text{Yb}_2\text{SiO}_5$  powders; (b2)  $\text{Yb}_2\text{SiO}_5$  coating

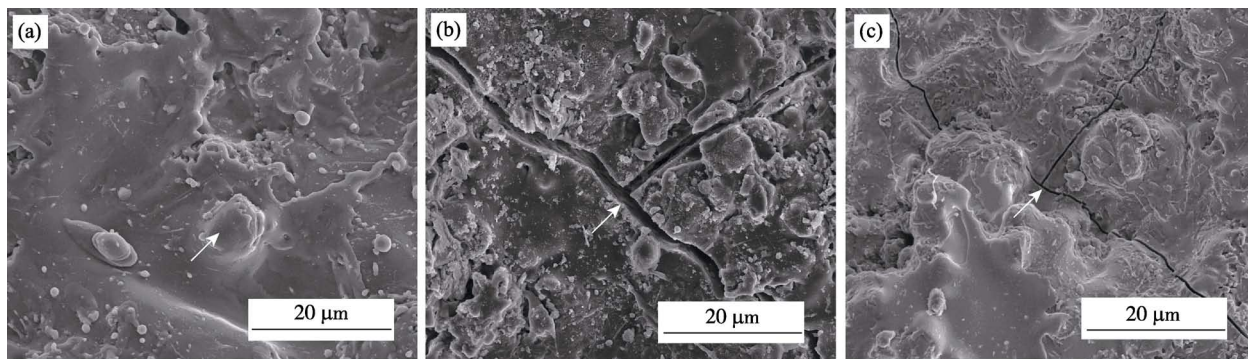


图 5 EBC 涂层表面形貌

Fig. 5 Surface microstructures of EBC coating

(a) Si coating; (b) Mullite coating; (c)  $\text{Yb}_2\text{SiO}_5$  coating

式中,  $\delta$  为材料表面张力,  $U$  为表面内能;  $\gamma$  为单位面积液-固的界面张力,  $T$  为喷涂粉末温度变化。设在固体材料晶胞内有  $n$  个原子位于表面, 采用“最邻近原子相互作用模型”计算所有原子的相互作用能, 可得到表面内能  $U$  为:

$$U = \frac{n(Z_0 - Z_S)}{4}u$$

(2)

式中  $u$  是两原子间的相互作用势能;  $Z_0$  是原子的体积配位数;  $Z_S$  是原子的表面配位数; 通常为表面层内最近邻原子数, 因此材料表面张力  $\delta$  为:

$$\delta = \frac{n(Z_0 - Z_S)}{4}u + T \frac{d\gamma}{dT}$$

(3)

由上式可知, 单位体积内的原子数量越大, 熔点或蒸发温度越高, 材料的表面张力越大。如表 1 数据所示, 在 EBC 涂层中莫来石和 Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> 材料的熔点和晶格配位数均大于 Si, 根据计算,  $\delta_{Yb_2SiO_5}$ 、 $\delta_{Mullite} > \delta_{Si}$ , 表现为释放应力, 因此在喷涂过程中 Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> 和 Mullite 涂层均比 Si 涂层更容易龟裂。

冷却应力为喷涂完成后, 涂层与基体一起冷却, 由于两者热膨胀系数不匹配而产生的应力。当涂层的膨胀系数大于基体时, 涂层受拉应力, 反之涂层受压应力。在沉积过程中, 基体温度越高, 涂层与基体之间热膨胀相差越大, 这将加剧涂层的冷却应力<sup>[15]</sup>。在 EBC 涂层中, Si 的热膨胀系数小于基体, 因此 Si 涂层受压应力, 不容易产生裂纹, 而其它涂层材料 Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> 和 Mullite 的热膨胀系数大于 Si, 沉积后 Mullite 和 Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> 涂层受拉应力, 比 Si 涂层更易产生微裂纹。在喷涂过程中, 为了避免莫来石涂层非晶化, 喷涂前 Mullite 涂层的预热温度为 800℃, 大于 Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> 涂层的预热温度 600℃, 因此 Mullite 涂层的冷却应力大于 Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> 涂层, 造成 Mullite 涂层的微裂纹尺度大于 Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> 涂层, 如图 5(b)~(c)。

2.3 涂层沉积机制分析

根据图 3 和图 5 EBC 涂层断面和表面形貌分析

表明, 涂层沉积主要以液相为主。本节以 Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> 涂层沉积为例, 对 EBC 涂层进行沉积机制分析。图 6(a)为 Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> 团聚前粉末形貌, 粉末粒径均>0.5 μm, 图 6(b)~(c)均为涂层表面形貌。图 6(b)显示在 Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> 涂层表面存在扁平的圆形锯齿状粒子, 这是由于团聚粉末注入到高温等离子焰流中发生熔融形成液滴并随着高速等离子射流而加速飞行, 熔滴具有较高的速度, 当撞击基体表面时发生扁平化形成圆形扁平粒子, 其边沿部分则发生溅射, 飞溅的小液滴凝固形成了涂层表面一些亚微米尺度的球形颗粒。在涂层表面还可观察到层状液滴间存在孔隙, 在涂层沉积过程中, 这些间隙可能被后续液滴填充, 形成致密结构, 也可能被后续液滴覆盖, 而未被填充, 在这种情况下就在涂层中就形成了独立的孔洞<sup>[16]</sup>。此外, 在涂层表面还存在较多的纳米颗粒, 如图 6(c)所示, 这些纳米颗粒由喷涂粉末蒸发后气相冷凝而成<sup>[17]</sup>。

EBC 涂层的沉积过程可用图 7 进一步说明, 团聚的粉末由于颗粒间结合力较大, 当粉末注入等离子喷枪中相互碰撞, 部分粉末粒子从原团聚粉末中分离, 其中经过焰流中心的颗粒则在高温等离子作用下表面直接由固态气化, 而这些气相在等离子焰流温度变化过程中发生均匀形核, 或在基体表面发生非均匀形核, 最终在涂层中形成纳米晶粒<sup>[18]</sup>。原始喷涂粉末表面气化后的粒子由于粒径较小, 其塑

表 1 Si、3Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-2SiO<sub>2</sub> 和 Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> 粉末的配位数、熔点和膨胀系数

Table 1 Coordination number, melting point and coefficient of thermal expansion of Si, 3Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-2SiO<sub>2</sub> and Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>

Materials	Coordination number	Melting point /℃	Coefficient of thermal expansion at 100℃/×10 <sup>-6</sup> ℃
SiC/SiC	—	2827	4.5–5.5
Si	4	1410	3.5–4.5
3Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -2SiO <sub>2</sub>	8	1830	6.5–7.0
Yb <sub>2</sub> SiO <sub>5</sub>	8	2000	6.8–7.3

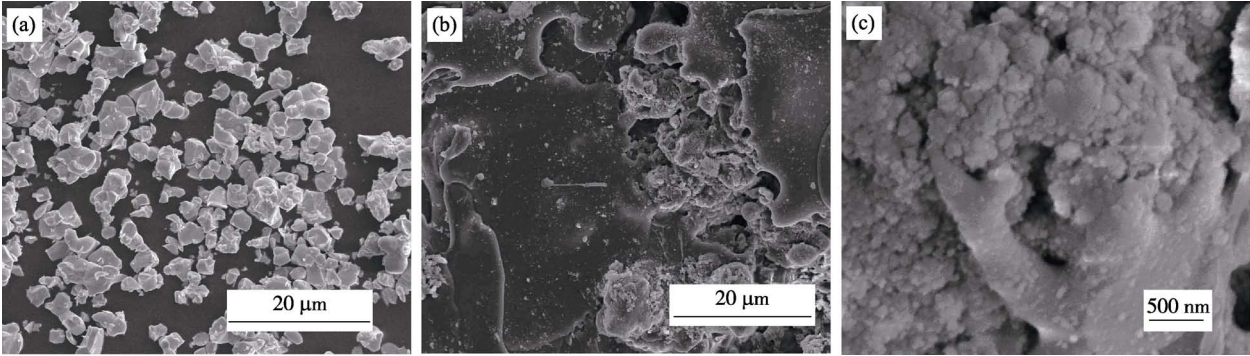


图 6 (a)Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> 团聚前原始粉末和(b, c) Yb<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> 涂层区域的形貌  
Fig. 6 Micrographs of (a) mullite powders, (b, c) partial surface of mullite coating

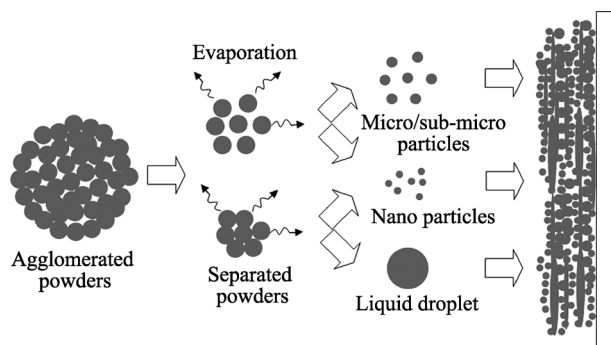


图 7 PS-PVD 涂层沉积示意图

Fig. 7 Schematic diagram of coating deposition by PS-PVD

性变形能力差, 因此以微米或亚微米尺度颗粒保留在涂层中, 而涂层中大部分还是以大尺寸液滴形成的扁平粒子存在。

### 3 结论

采用等离子喷涂-物理气相沉积技术(PS-PVD)在 SiC/SiC 复合材料表面依次制备了 Si、 $3\text{Al}_2\text{O}_3\cdot 2\text{SiO}_2$ 、 $\text{Yb}_2\text{SiO}_5$  三层结构的环境障涂层(EBC), 观察并分析了涂层表面及界面形貌, 研究了涂层表面微裂纹形成的原因, 探讨了 EBC 涂层的沉积机制, 结论如下所示:

1) 采用 PS-PVD 可制备低孔隙率、高致密界面的 Si/ $3\text{Al}_2\text{O}_3\cdot 2\text{SiO}_2$ / $\text{Yb}_2\text{SiO}_5$  多层 EBC 涂层, 由于涂层预热温度较高, 莫来石涂层非晶化现象不明显;

2) EBC 涂层形貌显示微裂纹的形成与材料熔点、晶格配位数、膨胀系数和基体温度相关, 与 Si 涂层相比, 莫来石和  $\text{Yb}_2\text{SiO}_5$  涂层更容易产生微裂纹。并且, 高预热温度造成莫来石涂层表面微裂纹尺度大于  $\text{Yb}_2\text{SiO}_5$  涂层;

3) 致密 EBC 涂层主要以液相沉积为主, 依据不同涂层材料及工艺, 气、液、固比例不同, 液相沉积导致涂层出现层状结构, 气相沉积使得涂层中存在纳米颗粒, 而固相沉积导致涂层中存在大量的亚微米及微米晶粒。

### 参考文献:

[1] WANG L, JIAO J, JIAO C L. Research progress of environmental

barrier coatings for SiC ceramic matrix. *Aeronautical Manufacturing Technology*, 2014, **6**: 50–53.

- [2] HUANG G H, WANG N, MO R D, *et al.* Development of environmental barrier coatings on Si-based ceramics. *Failure Analysis and Prevention*, 2007, **2**(1): 59–64.
- [3] JOSH K, NARENDERNATH M, JEFFREY P, *et al.* Evaluation of CFCC liners with EBC after field testing in a gas turbine. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2002, **22**: 2769–2775.
- [4] LU M H, PENG Z H, ZHOU Y C. Recent research progress on environmental barrier coatings for non-oxide ceramics. *Journal of Ceramics*, 2015, **36**(2): 107–118.
- [5] BRADLEY T R, STEPHEN S, FOUCAULT D F, *et al.* Fracture mechanisms of ytterbium monosilicate environmental barrier coatings during cyclic thermal exposure. *Acta Materialia*, 2016, **103**: 448–460.
- [6] JIAO C L, WANG L, YANG J H, *et al.* Study on the properties of BSAS environmental barrier coating by atmospheric plasma spraying. *Materials China*, 2016, **35**(6): 466–471.
- [7] RAMASAMY S, TEWARI S N, LEE K N, *et al.* Environmental durability of slurry based mullite-gadolinium silicate EBCs on silicon carbide. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2011, **31**(6): 1123–1130.
- [8] LU Y, GANGULI R, DREWIEN C A, *et al.* Continuous formation of supported cubic and hexagonal mesoporous films by Sol-Gel dip-coating. *Nature*, 1997, **389**(6649): 364–368.
- [9] MODENA S, SORARU G D, BLUM Y, *et al.* Passive oxidation of an effluent system: the case of polymer-derived SiCO. *J. Am. Ceram. Soc.*, 2005, **88**(2): 339–345.
- [10] HE S M, MO R D, XU Z H, *et al.* Study of water vapor corrosion at  $1300^\circ\text{C}$  of Si/ $3\text{Al}_2\text{O}_3\cdot 2\text{SiO}_2$ +BSAS/ $\text{Yb}_2\text{SiO}_5$  environmental barrier coating. *Journal of Materials Engineering*, 2011, **7**: 34–38.
- [11] GEORG M, ANDREAS H, ROBERT V. Process development and coating characteristics of plasma spray-PVD. *Surf. Coat. Technol.*, 2013, **220**: 219–224.
- [12] MICHAEL P, BRYAN J, DOUGLAS E, *et al.* Process-structure-property relations for the erosion durability of plasma spray-physical vapor deposition (PS-PVD) thermal barrier coatings. *Surf. Coat. Technol.*, 2016, **297**: 11–18.
- [13] LEE K N. Current status of environmental barrier coatings for Si-based ceramics. *Surf. Coat. Technol.*, 2000, **133**: 1–7.
- [14] 徐 瑞. 材料热力学与动力学, 哈尔滨工业大学出版社, 2003: 164–165.
- [15] 李 辉, 贺定勇译. 热喷涂科学与工程, 机械工业出版社, 2010: 140–144.
- [16] GAO L H, WEI L L, GUO H B, *et al.* Deposition mechanisms of yttria-stabilized zirconia coatings during plasma spray physical vapor deposition. *Ceram. Int.*, 2016, **42**: 5530–5536.
- [17] GAO L H, GUO H B, WEI L L, *et al.* Micro structure and mechanical properties of yttria stabilized zirconia coatings prepared by plasma spray physical vapor deposition. *Ceram. Int.*, 2015, **41**: 8305–8311.
- [18] ZHANG X F, ZHOU K S, DENG C M, *et al.* Gas-deposition mechanisms of 7YSZ coating based on plasma spray-physical vapor deposition. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2016, **36**: 697–703.