专题——超高温材料氧化烧蚀行为与防护技术

# C/C-SiC-ZrB2复合材料表面 SiC/ZrB2-SiC/SiC 涂层的制备及抗氧化烧蚀性能研究

## 韩文波',周长灵<sup>2</sup>,胡平',张幸红'

(1. 哈尔滨工业大学 特种环境复合材料技术国家重点实验室,哈尔滨 150080;2. 山东工业陶瓷研究 设计院有限公司,山东 淄博 255000)

摘要:目的 研究 C/C-SiC-ZrB<sub>2</sub>复合材料表面 SiC/ZrB<sub>2</sub>-SiC/SiC 涂层的制备、抗氧化烧蚀性能与机理。方法 选择 ZrB<sub>2</sub>和 SiC 改性的 C/C 复合材料为基体,通过包埋-刷涂法在 C/C-SiC-ZrB<sub>2</sub> 复合材料表面制备了 SiC/ZrB<sub>2</sub>-SiC/SiC 多重抗氧化涂层,并对复合材料的微结构、抗氧化烧蚀性能与机理进行分析和研究。结果 制备了一种三层结构的 SiC/ZrB<sub>2</sub>-SiC/SiC 超高温陶瓷复合涂层,获得了风洞考核试验下的复合材料微结构变 化、线烧蚀率等试验数据,并得到了 C/C-SiC-ZrB<sub>2</sub>复合材料的氧化烧蚀机理。结论 SiC/ZrB<sub>2</sub>-SiC/SiC 涂层 对 C/C-SiC-ZrB<sub>2</sub>复合材料的抗氧化和耐烧蚀性能具有明显提升,有效提高了 C/C-SiC-ZrB<sub>2</sub>复合材料的综合 热防护性能。

关键词: C/C 复合材料; 超高温陶瓷涂层; 抗氧化烧蚀性能 DOI: 10.7643/ issn.1672-9242.2019.10.001 中图分类号: TG174.4 文献标识码: A 文章编号: 1672-9242(2019)10-0001-07

## Preparation and Oxidation Ablation Resistance of SiC/ZrB<sub>2</sub>-SiC/SiC Coating on C/C-SiC-ZrB<sub>2</sub> Composites

HAN Wen-bo<sup>1</sup>, ZHOU Chang-ling<sup>2</sup>, HU Ping<sup>1</sup>, ZHANG Xing-hong<sup>1</sup>

(1. National Key Laboratory of Science and Technology on Advanced Composites in Special Environments, Harbin Institute of Technology, Harbin 150080, China; 2. Shandong Research and Design Institute of Industrial Ceramic, Zibo 255000, China)

**ABSTRACT: Objective** To study the preparation of SiC/ZrB<sub>2</sub>-SiC/SiC coating on C/C-SiC-ZrB<sub>2</sub> composite surface and its oxidation ablation resistance. **Methods** SiC/ZrB<sub>2</sub>-SiC/SiC multiple anti-oxidation coatings were prepared on the surface of C/C composite with graphite and C/C-SiC-ZrB<sub>2</sub> composite as the matrix. The microstructure, anti-oxidation and oxidation ablation resistance of the composite were analyzed and studied. **Results** A three-layer SiC/ZrB<sub>2</sub>-SiC/SiC ultra-high temperature ceramic coating was prepared. Data on microstructure change and linear ablation rate of C/C-SiC-ZrB<sub>2</sub> composite coated with SiC/ZrB<sub>2</sub>-SiC/SiC coating under wind tunnel test were obtained. The oxidation and ablation mechanism of C/C-SiC-ZrB<sub>2</sub> composite was obtained. **Conclusion** SiC/ZrB<sub>2</sub>-SiC/SiC coating can significantly improve the oxidation resistance and ablation resistance of C/C-SiC-ZrB<sub>2</sub> composite, effectively improving the comprehensive thermal protection performance of C/C-SiC-ZrB<sub>2</sub> composite.

KEY WORDS: C/C composite material; ultra-high temperature ceramic coating; oxidation ablation resistance

作者简介:韩文波(1972-),男,山东人,博士,教授,主要研究方向为超高温陶瓷材料。

收稿日期: 2019-05-30; 修订日期: 2019-06-12

**基金项目:**国家自然科学基金委杰出青年基金 (51525201);国家自然科学基金委面上项目 (51872059,11572105,51772061)

通讯作者:张幸红(1972-),男,安徽人,博士,教授,主要研究方向为超高温热防护材料。

以高超声速、可重复使用以及远距离精确抵达等 为主要技术特征的高超声速飞行器已成为世界各国 研究的热点,将对未来航天发展带来一场革命,其对 材料在服役环境中的耐高温、抗氧化和抗烧蚀等性能 要求也越来越苛刻。在惰性气氛中, C/C 复合材料即 使在 2000 ℃也能保持其良好的力学性能,是目前惰 性气氛中高温力学性能最好的耐高温材料。然而,在 温度大于 773 K 的氧化气氛中, C/C 复合材料开始发 生氧化,限制了其广泛的应用<sup>[1]</sup>。因此,开展 C/C 复 合材料的抗氧化技术研究具有重要的科学意义与工 程价值。为了提高 C/C 复合材料的抗氧化性能<sup>[2]</sup>,主 要通过两种途径:一是通过 C/C 复合材料基体改性技 术来提升自身的抗氧化性能;二是在 C/C 复合材料表 面制备抗氧化涂层,通过抗氧化涂层来阻隔氧化气 氛。然而 C/C 基体与单一陶瓷涂层之间的热膨胀系数 差异较大,在高温下涂层会与基体产生热失配而形成裂 纹,从而为氧扩散提供通道,导致材料易被氧化<sup>[3-5]</sup>。 因此,在基体改性的复合材料表面制备多重超高温陶瓷 涂层可以极大地提高复合材料的抗氧化性能。

为了改善 C/C 复合材料自身的抗氧化性能,并缓 解其与超高温陶瓷涂层的热失配问题,首先应对 C/C 复合材料进行超高温陶瓷改性。ZrB2-SiC 材料展现出优 异的抗烧蚀性能,在2200℃的氧乙炔火焰烧蚀10min 后,其质量烧蚀率仅为-0.23 mg/s,线烧蚀率仅为 0.66 µm/s。此外 NASA 艾姆斯研究中心还研究了 C/C 复 合材料与 ZrB<sub>2</sub>-SiC 超高温陶瓷材料的抗烧蚀性能, 通过烧蚀结果发现,超高温陶瓷的质量烧蚀为0.01g, C/C 复合材料质量烧蚀为 1.31 g, 这表明 ZrB<sub>2</sub>-SiC 超 高温陶瓷材料具有优异的抗氧化烧蚀性能。因此可在 C/C 复合材料中引入抗氧化性能优异的 ZrB<sub>2</sub>-SiC 超 高温陶瓷组分,用以改善其自身的抗氧化性能。为了 实现对 C/C 复合材料的双重保护,在超高温陶瓷改性 的 C/C 复合材料表面可制备超高温抗氧化涂层。通常 SiC 涂层热膨胀系数较低, 与 C/C 复合材料的匹配性 较好<sup>[6-7]</sup>,为中间层与基体之间的结合提供了良好的 物理和化学适应性<sup>[8-11]</sup>。ZrB<sub>2</sub>-SiC 涂层可在 1700 ℃以 上为 C/C 复合材料提供氧化保护, 尤其在高温段, 可 作为最外层来使用,具有优异的抗氧化性能<sup>[12-16]</sup>。C/C 复合材料的热膨胀系数仅为1.0×10<sup>-6</sup>/℃<sup>[17]</sup>,ZrB<sub>2</sub>和SiC 的热膨胀系数分别为 5.9×10<sup>-6</sup> /℃<sup>[4]</sup>和 4.3×10<sup>-6</sup> /℃<sup>[18]</sup>。 在 C/C 复合材料中引入 ZrB2和 SiC 后, C/C-SiC-ZrB2 复合材料的热膨胀系数增加至 2.27×10<sup>-6</sup>/℃。由此可 见, SiC-ZrB2 引入 C/C 复合材料基体, 可减少 C/C 与 SiC 涂层或 ZrB<sub>2</sub>-SiC 涂层之间的热膨胀差异,缓 解基体材料与涂层间的热失配问题。由于 SiC 具有相 对较高的发射率(0.91~0.96),在烧蚀过程中最外层 SiC 最先开始氧化, 生成 SiO<sub>2</sub>。ZrB<sub>2</sub>-SiC 涂层氧化的 产物为大量的 ZrO<sub>2</sub>和 SiO<sub>2</sub>, 而 SiO<sub>2</sub>的发射系数要高 于 ZrO2 的发射系数<sup>[19-20]</sup>。根据之前的研究工作<sup>[21]</sup>发 现, SiO<sub>2</sub>、SiC、ZrB<sub>2</sub>、ZrO<sub>2</sub>的发射率有以下关系:

SiO<sub>2</sub> ~ CVD SiC > 烧结 SiC > ZrB<sub>2</sub> > ZrO<sub>2</sub>。因此烧蚀 过程中,无论 SiC 是否发生氧化,其都具有高于 ZrB<sub>2</sub> 和 ZrO<sub>2</sub>的发射率,高发射率的 SiC 作为最外层有助 于辐射更多的表面热量到外部环境,降低材料表面的温 度<sup>[21-23]</sup>,缓解内部涂层的压力。因此选取 SiC 涂层作为 C/C-SiC-ZrB<sub>2</sub> 复合材料的最内层和最外层,选取 ZrB<sub>2</sub>-SiC 涂层作为 C/C-SiC-ZrB<sub>2</sub>复合材料的中间涂层。

文中在 ZrB<sub>2</sub>-SiC 改性的 C/C 复合材料表面优化设 计了一种三层结构的 SiC/ZrB<sub>2</sub>-SiC/SiC 复合涂层。三 层涂层分别采用包埋法、刷涂法以及包埋法进行制备, 最终得到 SiC/ZrB<sub>2</sub>-SiC/SiC 多重抗氧化涂层,并系统 研究了该涂层的组成、微结构以及抗氧化烧蚀性能。

## 1 试验

#### 1.1 材料和试样

试验所用材料和试样有:碳纤维预制体(宜兴市天 鸟高新技术有限公司,体积密度为 0.45~0.55 g/cm<sup>3</sup>)、 ZrB<sub>2</sub>粉体(有色金属研究西北研究院,平均粒径为 2  $\mu$ m,密度为 6.09 g/cm<sup>3</sup>,纯度>99.5%)、Si 粉(上海 胡氏实验室设备有限公司,平均粒径为 200 目)、石 墨(青岛天生石墨有限公司生产,纯度≥98%,平均 粒径为 20  $\mu$ m)、烧结助剂 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(上海阿拉丁试剂 有限公司,纯度≥99.9%,平均粒径为 0.2  $\mu$ m)等。 所选的 C/C-SiC-ZrB<sub>2</sub>基体材料的制备过程如下:首先 采用化学气相沉积制备低密度 C/C 复合材料,然后采 用化学气相渗透沉积 SiC,最后通过浸渍裂解 ZrB<sub>2</sub>-SiC 先驱体获得 C/C-SiC-ZrB<sub>2</sub>基体材料。

#### 1.2 性能测试及组织观察

通过电弧风洞考核试验来模拟材料的实际服役 环境,通过控制气流、热流以及压力来最大限度地模 拟真实飞行环境。考核条件:考核温度为 2300 K,压 力为 0.5 MPa,速度为 0.6 Ma,考核时间为 1000 s, 加水 10 g。采用配备 EDS 能谱分析仪和 FIB 微纳米 加工技术的场发射环境扫描电镜观察试样涂层的微 观结构 (FEI HELIOS NanoLab 600i,加速电压为 0.5~30 kV),并分析研究该复合材料的动态氧化机理。

#### 1.3 实验流程

首先,通过包埋法制备一层 SiC 过渡层,再通过 涂刷法在制备 ZrB<sub>2</sub>-SiC 外层。

第一步, SiC 内层的制备。将质量分数为 70%的 Si 粉、20%的石墨粉、5%的 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粉(烧结助剂)以无水乙 醇为介质进行球磨 12 h,将球磨后的浆料真空干燥过筛, 得到混合粉末。将 C/C 基体置于石墨坩埚中用混合粉包 埋,在 1800 ℃氩气气氛下无压烧结 2 h,得到 SiC 内层。

第二步, ZrB<sub>2</sub>-SiC 中间层的制备。将 ZrB<sub>2</sub>粉、 SiC 粉和 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粉按 ZrB<sub>2</sub>-20%(体积分数)SiC-5%(体 积分数)Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>组分进行称量混料,以酒精为溶剂, PVB 为粘结剂。球磨 8 h 后,通过涂刷法在制备有 SiC 过渡层的式样表面涂刷 ZrB<sub>2</sub>-SiC 涂层浆料。涂刷 完后,将试样在氩气气氛下 1900 ℃常压烧结 2 h,得 到 ZrB<sub>2</sub>-SiC 中间层。

最后将质量分数为95%的SiC粉以及5%的Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 粉(烧结助剂)以无水乙醇为介质进行球磨混料,得 到混合粉末。将含有SiC过渡层和ZrB<sub>2</sub>-SiC中间层 的C/C-SiC-ZrB<sub>2</sub>复合材料放入石墨坩埚中,用混合粉 进行包埋,在1800℃烧结2h,烧结压力为10MPa, 得到SiC外涂层。最终采用包埋-刷涂工艺在 C/C-SiC-ZrB<sub>2</sub>复合材料表面制备了SiC/ZrB<sub>2</sub>-SiC/SiC 多重复合涂层

## 2 结果及分析

#### 2.1 SiC/ZrB2-SiC/SiC 涂层的微观结构

SiC 内涂层的微观形貌如图 1 所示。可以看出, SiC 内涂层表面平整,颗粒间较为疏松。作为内涂层 所具有的这种疏松多孔结构可以起到缓解热应力的 作用,同时为中间层的钉扎结合提供了很好的基础。 从内涂层与基体的接触面可以看出,SiC 内涂层填充 到基体表面孔隙,制备的 SiC 涂层厚度在 5 µm 左右。



a 表面



图 1 SiC 内层表面和截面的微观结构

通过涂刷法制备的 ZrB<sub>2</sub>-SiC 中间涂层的形貌如图 2 所示。表面颗粒分布均匀,但由于涂刷法本身的缺陷 以及内部有机物在烧结过程中的挥发,涂层表面存在部

分孔洞。这些孔洞的存在会为氧气进入涂层内部提供通 道,造成内涂层及基体的氧化。作为中间层,这些孔洞的 存在能较好地起到应力过渡作用,为三层涂层体系的稳定 提供保障。从截面图可以看出,涂层厚度为 40~50 μm, 涂层的厚度主要通过涂层的涂刷次数进行控制。





图 2 ZrB<sub>2</sub>-SiC 涂层表面和截面的微观形貌

为了提高外涂层的辐射系数,最外层采用具有高 辐射系数的 SiC 涂层。SiC/ZrB<sub>2</sub>-SiC/SiC 复合涂层的微 观形貌如图 3 所示。可观察到制备的 SiC 外涂层较第 一步制备的 SiC 过渡层结构更为致密。从涂层的截面 形貌可以看出,三层涂层之间结合良好,界面处没有 明显裂纹。SiC 内层的厚度为 5~10 μm, ZrB<sub>2</sub>-SiC 中间 层的厚度为 40~50 μm, SiC 外层厚度在 30 μm 左右。

#### 2.2 电弧风洞考核及烧蚀机理分析

对含涂层的 C/C-SiC-ZrB<sub>2</sub> 复合材料进行了风洞 考核试验。含涂层的 C/C-SiC-ZrB<sub>2</sub> 复合材料风洞考核 前后的宏观表面如图 4 所示。考核后,样件结构完整, 仅出现微烧蚀现象,线烧蚀率为 9.37×10<sup>-4</sup> mm/s。

含涂层的 C/C-SiC-ZrB<sub>2</sub> 复合材料风洞考核后的 表面微观形貌如图 5 所示。从图 5a 中可观察到样品 表面的微裂纹以及内涂层裸露的现象,这是由于在考 核后快速降温的过程中,外涂层与内涂层之间的热应 力引起了涂层开裂与剥落。此外在图 5b 中还发现了 孔洞,这是由于中间涂层中的 ZrB<sub>2</sub>氧化,产生的 B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 向外部挥发形成的通道残存在涂层中。图 5b 为涂层表 面形貌的高倍图,可观察到白色氧化物颗粒和致密灰色 氧化膜,对其进行能谱分析,结果如图 5e 所示,其主 要含有 Zr、Si和 O 元素,所以推断为 ZrO<sub>2</sub>和 SiO<sub>2</sub>。图 5c 为内涂层的微观形貌,可观察到半球形的致密涂层 结构,这是由于外部氧气通过孔洞进入内层 SiC 涂层, 使 SiC 层氧化的结果。对其进行能谱分析,结果如图 5d 所示,主要是 Si 和 O 元素,还有少量的 C 元素。





a考核前 b考核后



图 5 含涂层 C/C-SiC-ZrB2复合材料烧蚀 1000 s 后的微观形貌

含涂层的 C/C-SiC-ZrB<sub>2</sub> 复合材料经风洞考核后 的断口形貌如图 6 所示。从图 6a、b 可观察到涂层与 基体连接紧密,结构完整,未发生涂层脱落或与基体 脱粘情况。从图 6c 可以发现,靠近涂层处的碳纤维 完好地保留在基体内部,没有发现纤维的氧化现象, 说明涂层具有较好的保护基体的作用。图 6d 为基体 内部的微观形貌,经过风洞考核后,材料内部结构与 考核前无明显差别,碳纤维与基体接触紧密,未发生 氧化。这是因为风洞考核过程中,其表面形成了致密 的 ZrO<sub>2</sub>和 SiO<sub>2</sub>保护层,具有较高的黏度、熔点以及 较低的氧气渗透率和蒸汽压,阻碍了外部氧气的进一 步侵蚀,从而更好地保护了基体。



图 6 风洞考核后含涂层 C/C-SiC-ZrB2 复合材料断面的微观形貌

基于对含 SiC/ZrB<sub>2</sub>-SiC/SiC 涂层的 C/C-SiC-ZrB<sub>2</sub> 复合材料在烧蚀过程中的微观结构演变、氧化产物及 形貌变化的结果进行分析,提出了 C/C-SiC-ZrB<sub>2</sub>复合 材料的动态氧化烧蚀机理,如图 7 所示。在烧蚀初期, 最外层的 SiC 涂层在氧化烧蚀中最先发生氧化(如式 (1)所示),生成粘流态的 SiO<sub>2</sub>,附着在中间的 ZrB<sub>2</sub>-SiC 涂层表面,如图 7a 所示。随着烧蚀温度的 升高,玻璃态 SiO<sub>2</sub>的黏度降低,并转变成气态的 SiO<sub>2</sub>, 开始大量挥发,部分 SiC 直接氧化成气态的 SiO<sub>2</sub>,如 式(2)和式(3)所示。随着 SiO<sub>2</sub>和 SiO 的挥发, 中间 ZrB<sub>2</sub>-SiC 层开始暴露在氧气下,并发生氧化, 如式(1)、式(3)和式(4)所示,ZrB<sub>2</sub>氧化生成 ZrO<sub>2</sub>和B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>。此时SiC氧化成SiO<sub>2</sub>和SiO,然而B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>和SiO会大量挥发,生成的ZrO<sub>2</sub>其熔点在2700℃以上,与粘流态的SiO<sub>2</sub>形成了良好的氧化保护屏障,如图7b所示。然而B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>和SiO的挥发会产生孔通道,此时部分孔通道会被粘流态的SiO<sub>2</sub>所封堵,未被封堵的孔通道会成为氧气进入内层SiC涂层的渠道。随后氧气开始侵蚀最内层涂层,使内层SiC涂层发生氧化,生成SiO<sub>2</sub>并不断补充到多孔ZrO<sub>2</sub>层中,如图7c所示。内层生成的SiO<sub>2</sub>具有低氧渗透率,较好地隔绝了外层和内层中氧气进一步渗入到基体中,实现了保护基体的作用,最终C/C-SiC-ZrB<sub>2</sub>由ZrO<sub>2</sub>-SiO<sub>2</sub>形成的多孔氧化外层与致密的SiO<sub>2</sub>内层所保护。



图 7 含 SiC/ZrB<sub>2</sub>-SiC/SiC 三层涂层的 C/C-SiC-ZrB<sub>2</sub>复合材料的氧化烧蚀机理

 $\begin{aligned} &\text{SiC}(s)+2O_2(g) \rightarrow \text{SiO}_2(s)+\text{CO}_2(g) & (1) \\ &\text{SiO}_2(l) \rightarrow \text{SiO}_2(g) & (2) \\ &\text{SiC}(s)+O_2(g) \rightarrow \text{SiO}(g)+\text{CO}(g) & (3) \\ &2\text{ZrB}_2(s)+5O_2(g) \rightarrow 2\text{ZrO}_2(s)+2\text{B}_2\text{O}_3 & (4) \end{aligned}$ 

## 3 结论

1)获得了一种三层结构的 SiC/ZrB<sub>2</sub>-SiC/SiC 复 合涂层:采用包埋方法制备 SiC 内层,厚度为 5~10 μm;中间层为涂刷法制备的超高温陶瓷(ZrB<sub>2</sub>-SiC) 自愈合中间层,厚度为 40~50 μm;最外层依然采用 包埋法制备高辐射的 SiC 外层,厚度在 30 μm 左右。

2)在 2000 ℃对 SiC/ZrB<sub>2</sub>-SiC/SiC 涂层包覆的 C/C-SiC-ZrB<sub>2</sub>复合材料进行风洞考核 1000 s,考核结 束后样件结构完整,表现出微烧蚀特性,线烧蚀率仅 为 9.37×10<sup>-4</sup> mm/s。

3)SiC/ZrB<sub>2</sub>-SiC/SiC 涂层的烧蚀机理为:在烧蚀 初期,由最外层的 SiC 氧化生成粘流态的 SiO<sub>2</sub>提供 保护。在烧蚀中期,随着烧蚀温度的升高和烧蚀时间 的延长,SiO<sub>2</sub>和 SiO 大量挥发,ZrB<sub>2</sub>-SiC 中间层开始 氧化,生成了熔点在 2700 ℃以上的 ZrO<sub>2</sub>和粘流态的 SiO<sub>2</sub>,形成了良好的氧化保护屏障。然而内部 B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 和 SiO 的挥发产生的孔通道使 SiC 内层在烧蚀后期开 始氧化,并生成低氧渗透率的致密 SiO<sub>2</sub>内层。最终 C/C-SiC-ZrB<sub>2</sub>由 ZrO<sub>2</sub>-SiO<sub>2</sub>形成的多孔氧化外层与致 密的 SiO<sub>2</sub>内层所保护。

#### 参考文献:

- [1] 魏玺,李捷文,张伟刚. HfB<sub>2</sub>-HfC-SiC 改性 C/C 复合材 料的超高温烧蚀性能研究[J]. 装备环境工程,2016, 13(3): 12-17.
- [2] YANG X, WEI L, SONG W, et al. ZrB<sub>2</sub>/SiC as a Protective Coating for C/SiC Composites: Effect of High Temperature Oxidation on Mechanical Properties and Antiablation Property[J]. Composites Part B: Engineering, 2013, 45(1): 1391-1396.
- [3] ZHOU H, GAO L, WANG Z, et al. ZrB<sub>2</sub>-SiC Oxidation Protective Coating on C/C Composites Prepared by Vapor Silicon Infiltration Process[J]. Journal of the American Ceramic Society, 2010, 93(4): 915-919.
- [4] ZHANG Y, HU Z, LI H, et al. Ablation Resistance of ZrB<sub>2</sub>-SiC Coating Prepared by Supersonic Atmosphere Plasma Spraying for SiC-coated Carbon/Carbon Composites[J]. Ceramics International, 2014, 40(9): 14749-14755.
- [5] CHU Y, FU Q, LI H, et al. Influence of SiC Nanowires on the Properties of SiC Coating for C/C Composites between Room Temperature and 1500 °C [J]. Corrosion Science, 2011, 53(9): 3048-3053.

- [6] ZHENG G B, MIZUKI H, SANO H, et al. CNT-PyC-SiC/SiC Double-layer Oxidation -protection Coating on C/C Composite[J]. Carbon, 2008, 46(13): 1808-1811.
- [7] FENG T, LI H J, FU Q G, et al. Microstructure and Oxidation of Multi-layer MoSi<sub>2</sub>-CrSi<sub>2</sub>-Si Coatings for SiC Coated Carbon/Carbon Composites[J]. Corrosion Science, 2010, 52(9): 3011-3017.
- [8] 景君怡. SiC 纳米线增韧过渡层对 C/C 复合材料表面 CVD-SiC 涂层性能的影响[C]// 中国金属学会炭素材 料分会.中国金属学会炭素材料分会第三十届学术交流 会论文集. 北京: 中国金属学会炭素材料分会, 2016.
- [9] 黄沛宇, 徐永东, 范尚武, 等. 浸渗时间对 C/C-SiC 复 合材料显微结构和力学性能的影响[J]. 固体火箭技术, 2009, 32(1): 103-108.
- [10] ZHOU S, WANG Z, SUN X, HAN J. Microstructure, Mechanical Properties and Thermal Shock Resistance of Zirconium Diboride Containing Silicon Carbide Ceramic Toughened by Carbon Black[J]. Materials Chemistry and Physics, 2010, 122: 470-473.
- [11] GUI K, HU P, HONG W, et al. Microstructure, Mechanical Properties and Thermal Shock Resistance of ZrB<sub>2</sub>-SiC-C<sub>f</sub> Composite with Inhibited Degradation of Carbon Fibers[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2017, 706: 16-23.
- [12] ZHANG Y L, Li H J, FU Q G, et al. AC/SiC Gradient Oxidation Protective Coating for Carbon/Carbon Composites[J]. Surface and Coatings Technology, 2006, 201(6): 3491-3495.
- [13] WEBSTER J D, WESTWOOD M E, HAYES F H, et al. Oxidation Protection Coatings for C/SiC Based on Yttrium Silicate[J]. Journal of the European Ceramic Society, 1998, 18(16): 2345-2350.
- [14] 李贺军,薛晖,付前刚,等. C/C 复合材料高温抗氧化 涂层的研究现状与展望[J]. 无机材料学报,2010, 25(04): 337-343
- [15] 李斌,陈招科. 热处理对含C-SiC-TaC-C界面C/C复合 材料力学性能的影响[J]. 复合材料学报, 2012, 29(1): 98-103.
- [16] TANG S, HU C. Design, Preparation and Properties of Carbon Fiber Reinforced Ultra-high Temperature Ceramic Composites for Aerospace Applications: A Review[J]. Journal of Materials Science & Technology, 2017, 33(2): 117-130.
- [17] BOKROS J C. Deposition, Structure, and Properties of Pyrolytic Carbon[J]. Chem Phys Carbon, 1969 (5): 1-117
- [18] SOMIYA S, INOMATA Y. Silicon Carbide Ceramics-1[M]. London: Elsevier Applied Science, 1991.
- [19] WHITTEMORE Jr O J, MARSHALL D W. Fused Stabi-

lized Zirconia and Refractories[J]. Journal of the American Ceramic Society, 1952, 35(4): 85-89.

- [20] RAVINDRA N M, SOPORI B, GOKCE O H, et al. Emissivity Measurements and Modeling of Silicon-related Materials: An Overview[J]. International Journal of Thermophysics, 2001, 22(5): 1593-1611.
- [21] 王鹏. 石墨表面耐烧蚀抗氧化复合涂层制备及性能研 究[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2016.
- [22] COCKERAM B V, MUELLER A J. The Development

and Testing of Emissivity Enhancement Coatings for Themophotovoltaic (TPV) Radiator Applications[J]. Thin Solid Films, 1999, 355: 17-25.

- [23] TOULOUKIAN Y S, DEWITT D P. Thermal Radiative Properties of Non-metallic Solids, Thermophysical Properties of Matter[M]. New York: IFI/Plenum, 1972.
- [24] NEUER G, JAROMA-WEILAND G. Spectral and Total Emissivity of High-temperature Materials[J]. International Journal of Thermophysics, 1998, 19(3): 917-929.