

说明书摘要

【总体说明及优点】

本发明涉及一种微结构构造中间层界面 Mullite/硅酸钇复合涂层的制备方法，将莫来石纤维球磨成粉体，分散于 1-甲基吡咯烷酮得到均匀的悬浮液，然后加入混合粘结剂机械搅拌均匀，注入带有 Si 粘结层的 C/SiC 复合材料表面，再经烧结得到莫来石多孔涂层；取六水合硝酸钇和正硅酸乙酯溶解于去离子水中得到溶胶，并将溶胶热浸渍旋涂到经过热处理的莫来石多孔涂层，反复热浸渍-热处理得到致密的 Mullite/硅酸钇环境阻隔复合涂层。与现有技术相比，本发明具有微孔分布均匀，界面结合较好，抗裂纹扩展等优点。

权 利 要 求 书

【材料制备方法的总体描述】

1. 一种微结构构造中间层界面 Mullite/硅酸钇复合涂层的制备方法，其特征在于，该方法采用以下步骤：

(1) 取莫来石纤维以无水乙醇为球磨介质，采用行星球磨，干燥后研磨成粒径为 $0.3-1\mu\text{m}$ 的粉体，将上述粉体均匀分散于 1-甲基吡咯烷酮中，采用磁力搅拌 20-60 min，再向其中加入 0.1-8.0wt % 聚乙二醇 6000 作为分散剂，继续磁力搅拌 20-60 min，然后采用细胞超声粉碎机超声震荡 10-60 min 得到均匀的悬浮液；

(2) 向悬浮液中加入混合粘结剂，然后采用机械搅拌 12-48 h，调节搅拌转速为 200-600 r/min，同时采用 30-70 °C 恒温油浴加热，确保混合粘结剂在悬浮液中充分溶解混合均匀；

(3) 将上述配置好的料浆放入真空干燥器中抽真空排除料浆中的空气，然后注入带有 Si 粘结层的 C/SiC 复合材料表面，采用平板涂布机进行均匀涂覆 200-500 μm ，接着浸入去离子水中保持 4-12h，自然室温干燥得到前驱体莫来石涂层试样；

(4) 将前驱体莫来石涂层试样放入真空管式炉中氩气气氛保护下进行烧得到莫来石多孔涂层；

(5) 取六水合硝酸钇和正硅酸乙酯分别作为钇源和硅源溶解于去离子水中，采用磁力搅拌使其充分水解，控制 Y^{3+} 浓度为 0.5-4.0mol/L，再调节溶液的 pH 为 3-9，并不断磁力搅拌 1-4h 获得均匀稳定透明的溶胶，然后向其中加入 LiYO_2 粉末作为烧结助剂，继续搅拌使得 LiYO_2 粉末均匀悬浮于溶胶中；

(6) 取步骤 (5) 中的最终溶胶，将步骤 (4) 中的涂层试样放入 600-1100°C 真空管式炉中热处理 0.5-4h，控制真空度为 $0-10^{-3}\text{Pa}$ ，待管式炉温度降到 400°C 时，取出试样浸入溶胶中进行浸渍旋涂，然后同样放入 600-1100°C 真空管式炉中热处理 0.5-4h，反复热浸渍-热处理重复以上过程 2-6 次即可得到致密的 Mullite/硅酸钇环境阻隔复合涂层。

【对上述主要步骤中的特点作进一步限定】

2. 根据权利要求 1 所述的一种微结构构造中间层界面 Mullite/硅酸钇复合涂层的制备方法，其特征在于，步骤 (1) 中所述的悬浮液中莫来石粉末与 1-甲基吡咯

烷酮的质量比为 (1~5) : (1~15)。

3. 根据权利要求 1 所述的一种微结构构造中间层界面 Mullite/硅酸钇复合涂层的制备方法, 其特征在于, 步骤 (2) 中所述的悬浮液中混合粘结剂的浓度为 5-25wt%。

4. 根据权利要求 1 或 3 所述的一种微结构构造中间层界面 Mullite/硅酸钇复合涂层的制备方法, 其特征在于, 步骤 (2) 中所述的混合粘结剂由聚乙烯醇和聚醚砜树脂按质量比 (1~5) : (1~10) 混合得到。

5. 根据权利要求 1 所述的一种微结构构造中间层界面 Mullite/硅酸钇复合涂层的制备方法, 其特征在于, 步骤 (4) 中在烧结时控制升温速率和降温速率均为 2-8°C/min, 烧结温度为 800-1100°C 烧结保温 1-4 h。

6. 根据权利要求 1 所述的一种微结构构造中间层界面 Mullite/硅酸钇复合涂层的制备方法, 其特征在于, 步骤 (4) 中得到的莫来石多孔涂层的厚度为 100-300 μm 。

7. 根据权利要求 1 所述的一种微结构构造中间层界面 Mullite/硅酸钇复合涂层的制备方法, 其特征在于, 步骤 (5) 中六水合硝酸钇和正硅酸乙酯的摩尔比为 (1~15) : (1~10)。

8. 根据权利要求 1 所述的一种微结构构造中间层界面 Mullite/硅酸钇复合涂层的制备方法, 其特征在于, 步骤 (5) 采用浓度为 0.5-5mol/L 的氨水调节 pH 值。

9. 根据权利要求 1 所述的一种微结构构造中间层界面 Mullite/硅酸钇复合涂层的制备方法, 其特征在于, 步骤 (5) 中所述的 LiYO₂ 粉末的加入量为 0.1-1g/L。

10. 根据权利要求 1 所述的一种微结构构造中间层界面 Mullite/硅酸钇复合涂层的制备方法, 其特征在于, 步骤 (6) 中制备得到的致密的 Mullite/硅酸钇环境阻隔复合涂层的厚度为 100-300 μm 。

说明书

一种微结构构造中间层界面 Mullite/硅酸钇复合涂层的制备方法

技术领域

本发明涉及一种复合环境阻障涂层的制备方法，尤其是涉及一种微结构构造中间层界面 Mullite/硅酸钇复合涂层的制备方法。

背景技术

【要求介绍与本题目相关现有技术的发展情况，客观地指出其存在的缺点】

碳纤维增强碳化硅陶瓷基复合材料（C/SiC，CMCs）是一种新型高性能复合材料，20 世纪 70 年代以来，成为结构材料研究领域的新热点。C/SiC 复合材料由于其具有以下两方面优势：一方面连续碳纤维引入提高了复合材料的韧性，另一方面保留了 SiC 陶瓷基体强度高、耐高温等优点，是一种新型高温结构材料和功能材料。已在军用、民用的重要领域得到了越来越广泛的应用，例如作为航空发动机高温部件、高速制动材料、火箭喷管、航天飞机热防护系统、核反应堆第一壁材料等。但是 C/SiC 复合材料在高温高速燃气环境下，会迅速发生氧化生成 SiO₂ 相，可以使得 C/SiC 复合材料具有好的耐高温性能，然而 SiO₂ 相在高温条件下与水蒸气发生反应，形成气态的 Si(OH)₄ 相，造成 C/SiC 复合材料的失效。这将大大限制了其应用，因此 C/SiC 复合材料的氧化和水蒸气腐蚀防护问题成为近年来国内外研究的热点之一。同时对其进行高温抗氧化防护对其高温应用具有重要的意义。

环境阻障涂层（Environmental barrier coatings, EBCs）被认为是解决 SiC 基复合材料高温氧化问题和水蒸气腐蚀问题的有效方法。Si 涂层由于与 C/SiC 复合材料的物理、化学相容性好而普遍作为过渡粘结层使用，但是单一的 Si 涂层（ $3.4-4.5 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ ）不能对 C/SiC（ $4.5-5.5 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ ）基体提供有效的保护，最终在高温有氧和水蒸气条件下很快失效。莫来石涂层（Mullite，CTE: $5.5 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ ）因其具有较好的高温稳定性，抗氧化性能，低氧渗透率，但是由于热喷涂的莫来石涂层在高温制备过程中，迅速冷却会发生结晶转变而引起体积收缩引起涂层中裂纹产

生和涂层的剥落；再者，莫来石涂层在高温燃气冲刷条件下，会引起 SiO_2 的挥发，残余的多孔 Al_2O_3 涂层容易剥离导致涂层失效。另外，采用化学气相沉积法（CVD）虽然可以制备结晶性较好的莫来石涂层，但是还是不能有效阻止高温水蒸气对 C/SiC 复合材料的腐蚀。为了解决以上问题，复合 EBCs 成为当前的研究热点。

到目前为止环境阻隔外涂层的制备方法多种多样，主要有以下几种：大气等离子喷涂法（APS），化学气相沉积（CVD），料浆涂覆法（Slurry dip-coating），溶胶-凝胶法（Sol-gel），磁控溅射法，电子束物理气相沉积（EB-PVD）和聚合物先驱体陶瓷涂层法等。采用大气等离子喷涂技术制备 C/SiC 复合材料环境阻隔涂层虽然可以调控制备片层状结构，涂层结合力较好，但是涂层中存在一定的孔隙率，均匀性和涂层的成分难以调控，无法实现涂层多相复合和致密化制备；同时由于热应力的存在，导致涂层中出现垂直裂纹，这样将会对涂层后期性能不利。采用化学气相沉积制备的涂层需要在 $900\text{-}1200^\circ\text{C}$ 的高温条件下进行，且沉积效率低，成本高，涂层中组成难以控制，尾气难以回收处理。采用溶胶-凝胶法制备的外涂层表面容易开裂并且涂层厚度不足及需要后期高温热处理的缺点。而采用料浆涂覆法制备涂层仍然存要多次反复旋涂且不能一次制备完成，需要后期热处理的弊端。同样磁控溅射法和电子束物理气相沉积法虽然已经制备出环境阻隔涂层，但是该工艺沉积效率低，需要前期靶材的制备，对设备要求较高且难以控制，所制备的高温环境阻隔性能尚需要进一步的提高。还有采用聚合物先驱体陶瓷法制备涂层方法，此种方法直接制备涂层将会产生涂层体积收缩并且同时涂层的沉积效率低且致密性较差。

发明内容

【详细说明本发明的技术方案：

- （1）对制备方法的主要步骤和工艺参数范围进行描述；**
- （2）对上述主要步骤和工艺参数范围的特点作进一步限定；**
- （3）改进之处及其相应带来的有益效果】**

本发明的目的就是为了解决上述现有技术存在的缺陷而提供一种微结构构造中间层界面 Mullite/硅酸钇复合涂层的方法，很好地结合 L-S 相转化法和溶胶热浸渍原位反应法两者的优点制备 Mullite/硅酸钇环境阻挡复合涂层，一方面进行中间莫来石微结构设计，即为采用 L-S 相转化法制备多孔梯度分布的涂层有利于抵抗裂纹扩展且可以有效构造界面的结构提高界面结合强度，具有较好的抗热循环性能；

另一方面结合溶胶热浸渍原位反应法制备硅酸钇外涂层, 在热浸渍过程中溶胶充分进入界面填充空隙, 在后期烧结驱动下原位形成致密的硅酸钇涂层。

本发明的目的可以通过以下技术方案来实现:

(1) 对制备方法的主要步骤和工艺参数范围进行描述:

一种微结构构造中间层界面 Mullite/硅酸钇复合涂层的制备方法, 采用以下步骤:

(1) 取莫来石纤维以无水乙醇为球磨介质, 采用行星球磨, 干燥后研磨成粒径为 $0.3-1\mu\text{m}$ 的粉体, 将上述粉体均匀分散于 1-甲基吡咯烷酮中, 采用磁力搅拌 20-60 min, 再向其中加入 0.1-8.0wt % 聚乙二醇 6000 作为分散剂, 继续磁力搅拌 20-60 min, 然后采用细胞超声粉碎机超声震荡 10-60 min 得到均匀的悬浮液;

(2) 向悬浮液中加入混合粘结剂, 然后采用机械搅拌 12-48 h, 调节搅拌转速为 200-600 r/min, 同时采用 30-70 °C 恒温油浴加热, 确保混合粘结剂在悬浮液中充分溶解混合均匀;

(3) 将上述配置好的料浆放入真空干燥器中抽真空排除料浆中的空气, 然后注入带有 Si 粘结层的 C/SiC 复合材料表面, 采用平板涂布机进行均匀涂覆 200-500 μm , 接着浸入去离子水中保持 4-12h, 自然室温干燥得到前驱体莫来石涂层试样;

(4) 将前驱体莫来石涂层试样放入真空管式炉中氩气气氛保护下进行烧结得到莫来石多孔涂层;

(5) 取六水合硝酸钇和正硅酸乙酯分别作为钇源和硅源溶解于去离子水中, 采用磁力搅拌使其充分水解, 控制 Y^{3+} 浓度为 0.5-4.0mol/L, 再调节溶液的 pH 为 3-9, 并不断磁力搅拌 1-4h 获得均匀稳定透明的溶胶, 然后向其中加入 LiYO_2 粉末作为烧结助剂, 继续搅拌使得 LiYO_2 粉末均匀悬浮于溶胶中;

(6) 取步骤 (5) 中的最终溶胶, 将步骤 (4) 中的涂层试样放入 600-1100°C 真空管式炉中热处理 0.5-4h, 控制真空度为 $0-10^{-3}\text{Pa}$, 待管式炉温度降到 400°C 时, 取出试样浸入溶胶中进行浸渍旋涂, 然后同样放入 600-1100°C 真空管式炉中热处理 0.5-4h, 反复热浸渍-热处理重复以上过程 2-6 次即可得到致密的 Mullite/硅酸钇环境屏障复合涂层。

(2) 对上述主要步骤和工艺参数范围的特点作进一步限定:

步骤 (1) 中所述的悬浮液中莫来石粉末与 1-甲基吡咯烷酮的质量比为 1~5 :

1~15。

步骤（2）中所述的悬浮液中混合粘结剂的浓度为 5-25wt%，混合粘结剂由聚乙烯醇和聚醚砜树脂按质量比 1~5：1~10 混合得到。

步骤（4）中在烧结时控制升温速率和降温速率均为 2-8°C/min，烧结温度为 800-1100°C 烧结保温 1-4 h，得到的莫来石多孔涂层的厚度为 100-300 μm 。

步骤（5）中六水合硝酸钇和正硅酸乙酯的摩尔比为（1~15）：（1~10），采用浓度为 0.5-5mol/L 的氨水调节 pH 值，LiYO₂ 粉末的加入量为 0.1-1g/L。

步骤（6）中制备得到的致密的 Mullite/硅酸钇环境阻隔复合涂层的厚度为 100-300 μm 。

L-S 相转化法又称为沉浸凝胶相转化法，或沉浸凝胶法，凝胶法或相转化方法的一种，即将高分子溶液浸入非溶剂浴中，高分子聚合物在界面快速析出，形成极薄的致密层，而在致密层的下面形成了多孔层，这种外密内疏的界面结构即是膜的基本结构。L-S 法的六个阶段：（1）高分子材料、添加剂溶于溶剂中配成铸膜液；（2）制膜液用流延法制成平板、圆管型膜，或用纺丝法制成中空纤维；（3）使膜中的溶剂部分蒸发；（4）将膜浸渍在 高分子非溶解液体中，聚合物析出，液相的膜表面在液体中凝胶固化；（5）对膜进行热处理；（6）膜的预压处理。浸渍法的原理是通过毛细管压力使液体（活性组分）渗透到载体空隙内部；但如果使用真空的话，那么内外压力差也是活性组分进入的一个因素。真空的好处可以清除孔里面的杂质和水分，因而相对能使更多的活性相进入，增加负载量。通常用于制备载体固体催化剂，其方法比较经济且催化剂形状、表面积、孔隙率等主要取决于载体，容易选取。本发明提出一种改进的浸渍法（溶胶热浸渍原位反应法）制备硅酸钇涂层，改进的该方法的优点是活性组分分散比较均匀，并且热的基体有利于溶胶的干燥和浸渍效率的提高，避免后期干燥导致开裂和缺陷的产生；另一方面在后期热处理过程中便于活性成分的烧结反应，结合烧结助剂（LiYO₂）的添加有利于在较低的温度下达到涂层致密化，可以有效控制涂层的厚度。因此，本发明结合以上两种技术的优势，制备均匀、致密且结构可控的微结构构造中间层界面 Mullite/硅酸钇环境阻隔复合涂层。

（3）改进之处及其相应带来的有益效果：

与现有技术相比，本发明具有以下优点：

（1）采用 L-S 相转化法-溶胶热浸渍原位反应法制备了厚度均一、中间莫来石

涂层微孔分布均匀，界面结合较好，无裂纹的 Mullite/硅酸钇环境阻隔复合涂层。

(2) 这种方法制备 Mullite/硅酸钇环境阻隔复合涂层结晶性较好、涂层抗裂纹扩展能力强且界面结合较好，有效降低了涂层的表面粗糙度，大大提高了涂层的抗水蒸气腐蚀的性能。

(3) 这种方法制备 Mullite/硅酸钇环境阻隔复合涂层工艺简单，操作方便，成分及结构可控，界面易优化。

(4) 这种方法制备的环境阻隔复合涂层具有优异的抗水蒸气腐蚀性能，能在 1400℃ 的 90% H_2O -10% O_2 环境下对 C/SiC 复合材料有效保护 200h，氧化失重小于 5%且无明显裂纹产生。

附图说明

【请提供方法的相关附图】

图 1 为制备 Mullite/硅酸钇环境阻隔复合涂层表面 XRD 图谱；

图 2 为制备 Mullite/硅酸钇环境阻隔复合涂层断面 SEM 照片。

图 3 为制备 Mullite/硅酸钇环境阻隔复合涂层试样经过 1400℃ 的 90% H_2O -10% O_2 环境下氧化腐蚀 200 h 的氧化失重与时间的关系曲线。

具体实施方式

【即具体实施例，是对上述技术方案的举例说明，应当详细描述方法步骤及具体参数】

下面结合具体实施例对本发明进行详细说明。以下实施例将有助于本领域的技术人员进一步理解本发明，但不以任何形式限制本发明。应当指出的是，对本领域的普通技术人员来说，在不脱离本发明构思的前提下，还可以做出若干变形和改进。这些都属于本发明的保护范围。

实施例 1:

一种微结构构造中间层界面 Mullite/硅酸钇复合涂层的制备方法，采用以下步骤:

(1) 取市售的莫来石纤维以无水乙醇为球磨介质，采用行星球磨 48 h，干燥后采用玛瑙研钵研磨粉体待用 (0.3-1 μm)；称取一定量的以上莫来石粉体均匀分散于 1-甲基吡咯烷酮中，采用磁力搅拌 30 min，再向其中加入 0.5 Wt % 聚乙二醇 6000

作为分散剂，继续磁力搅拌 30 min，然后采用细胞超声粉碎机超声震荡 20 min 得到均匀的悬浮液 A，控制悬浮液 A 中莫来石粉与 1-甲基吡咯烷酮的质量比为 (3 : 5)；

(2) 将悬浮液 A 转入到锥形瓶中，同时加入 10Wt %混合粘结剂聚乙烯醇和聚醚砜树脂，控制其质量比为 (1 : 2)，然后此锥形瓶安装到铁架台上，采用机械搅拌 12 h，调节搅拌转速为 350 r/min，同时采用 40 °C 恒温油浴加热，确保粘结剂在悬浮液中充分溶解混合均匀；

(3) 将上述配置好的料浆，放入真空干燥器中抽真空排除料浆中的空气，然后注入带有 Si 粘结层的 C/SiC 复合材料表面，采用平板涂布机进行均匀涂覆 200 μ m，接着浸入去离子水中保持 4h，自然室温干燥得到前驱体莫来石涂层试样；

(4) 将以上前驱体莫来石涂层试样放入真空管式炉中氩气气氛保护下进行烧结，控制升温速率和降温速率均为 5°C/min，烧结温度为 900°C 烧结保温 3 h，即可得到不同孔径结构及分布的莫来石多孔涂层，涂层厚度约为 100 μ m。

(5) 取六水合硝酸钇和正硅酸乙酯分别作为钇源和硅源溶解于去离子水中，采用磁力搅拌使其充分水解，控制 Y^{3+} 浓度为 1mol/L，其两种前驱体的物质的量之比为 (1 : 2)，同时浓度为 2mol/L 的氨水调节溶液的 pH 为 4.5，并不断磁力搅拌 2h 获得均匀稳定透明的溶胶，然后向其中加入 0.5g/L 的 $LiYO_2$ 粉末作为烧结助剂，继续搅拌使得 $LiYO_2$ 粉末均匀悬浮于溶胶中；

(6) 取步骤 (5) 中的最终溶胶，将步骤 (4) 中的涂层试样放入 800°C 真空管式炉中热处理 4h，控制真空度为 10^{-1} Pa，待管式炉温度降到 400°C 时，取出试样浸入溶胶中进行浸渍旋涂，然后同样放入 800°C 真空管式炉中热处理 4h，反复热浸渍-热处理重复以上过程 2 次即可得到致密的 Mullite/硅酸钇环境屏障复合涂层，硅酸钇外涂层的厚度为 120 μ m。

实施例 2:

一种微结构构造中间层界面 Mullite/硅酸钇复合涂层的制备方法，采用以下步骤：

(1) 取市售的莫来石纤维以无水乙醇为球磨介质，采用行星球磨 48 h，干燥后采用玛瑙研钵研磨粉体待用 (0.3-1 μ m)；称取一定量的以上莫来石粉体均匀分散于 1-甲基吡咯烷酮中，采用磁力搅拌 40 min，再向其中加入 5Wt %聚乙二醇 6000 作为分散剂，继续磁力搅拌 40 min，然后采用细胞超声粉碎机超声震荡 30 min 得

到均匀的悬浮液 A，控制悬浮液 A 中莫来石粉与 1-甲基吡咯烷酮的质量比为 (2 : 3)；

(2) 将悬浮液 A 转入到锥形瓶中，同时加入 15Wt %混合粘结剂聚乙烯醇和聚醚砜树脂，控制其质量比为 (1 : 3)，然后此锥形瓶安装到铁架台上，采用机械搅拌 18 h，调节搅拌转速为 400 r/min，同时采用 50 °C 恒温油浴加热，确保粘结剂在悬浮液中充分溶解混合均匀；

(3) 将上述配置好的料浆，放入真空干燥器中抽真空排除料浆中的空气，然后注入带有 Si 粘结层的 C/SiC 复合材料表面，采用平板涂布机进行均匀涂覆 300 μ m，接着浸入去离子水中保持 8h，自然室温干燥得到前驱体莫来石涂层试样；

(4) 将以上前驱体莫来石涂层试样放入真空管式炉中氩气气氛保护下进行烧结，控制升温速率和降温速率均为 2°C/min，烧结温度为 950°C 烧结保温 2 h，即可得到不同孔径结构及分布的莫来石多孔涂层，涂层厚度约为 150 μ m。

(5) 取六水合硝酸钇和正硅酸乙酯分别作为钇源和硅源溶解于去离子水中，采用磁力搅拌使其充分水解，控制 Y^{3+} 浓度为 2mol/L，其两种前驱体的物质的量之比为 (2 : 3)，同时浓度为 4mol/L 的氨水调节溶液的 pH 为 5，并不断磁力搅拌 6h 获得均匀稳定透明的溶胶，然后向其中加入 1.5g/L 的 $LiYO_2$ 粉末作为烧结助剂，继续搅拌使得 $LiYO_2$ 粉末均匀悬浮于溶胶中；

(6) 取步骤 (5) 中的最终溶胶，将步骤 (4) 中的涂层试样放入 900°C 真空管式炉中热处理 3h，控制真空度为 10^{-2} Pa，待管式炉温度降到 400°C 时，取出试样浸入溶胶中进行浸渍旋涂，然后同样放入 900°C 真空管式炉中热处理 3h，反复热浸渍-热处理重复以上过程 3 次即可得到致密的 Mullite/硅酸钇环境阻隔复合涂层，硅酸钇外涂层的厚度为 180 μ m。

图 1 为制备得到的 Mullite/硅酸钇环境阻隔复合涂层表面 XRD 图，从图中可以看出，硅酸钇外涂层的结晶性较好，并且晶相为单一的 Y_2SiO_5 晶相，主晶相与 PDF NO. 22-0992 相对应；图 2 为制备 Mullite/硅酸钇环境阻隔复合涂层断面 SEM 图，从图中可以看出，中间莫来石涂层呈现多孔结构，孔分布均匀，涂层厚度均匀约为 150 μ m；并且涂层之间界面结合较好，硅酸钇外涂层结构致密且厚度均匀，大约为 180 μ m；图 3 为制备 Mullite/硅酸钇环境阻隔复合涂层试样具有优异的抗水蒸气腐蚀性能，能在 1400°C 的 90% H_2O -10% O_2 环境下对 C/SiC 复合材料有效保护 200h，氧化失重仅为 4.9 %。

实施例 3:

一种微结构构造中间层界面 Mullite/硅酸钇复合涂层的制备方法, 采用以下步骤:

(1) 取市售的莫来石纤维以无水乙醇为球磨介质, 采用行星球磨 48 h, 干燥后采用玛瑙研钵研磨粉体待用 ($0.3-1\mu\text{m}$); 称取一定量的以上莫来石粉体均匀分散于 1-甲基吡咯烷酮中, 采用磁力搅拌 50 min, 再向其中加入 6.0Wt % 聚乙二醇 6000 作为分散剂, 继续磁力搅拌 50 min, 然后采用细胞超声粉碎机超声震荡 45 min 得到均匀的悬浮液 A, 控制悬浮液 A 中莫来石粉与 1-甲基吡咯烷酮的质量比为 (3 : 5);

(2) 将悬浮液 A 转入到锥形瓶中, 同时加入 20Wt % 混合粘结剂聚乙烯醇和聚醚砜树脂, 控制其质量比为 (3 : 7), 然后此锥形瓶安装到铁架台上, 采用机械搅拌 36 h, 调节搅拌转速为 300 r/min, 同时采用 $45\text{ }^{\circ}\text{C}$ 恒温油浴加热, 确保粘结剂在悬浮液中充分溶解混合均匀;

(3) 将上述配置好的料浆, 放入真空干燥器中抽真空排除料浆中的空气, 然后注入带有 Si 粘结层的 C/SiC 复合材料表面, 采用平板涂布机进行均匀涂覆 $400\mu\text{m}$, 接着浸入去离子水中保持 6h, 自然室温干燥得到前驱体莫来石涂层试样;

(4) 将以上前驱体莫来石涂层试样放入真空管式炉中氩气气氛保护下进行烧结, 控制升温速率和降温速率均为 $8\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{min}$, 烧结温度为 $1000\text{ }^{\circ}\text{C}$ 烧结保温 1 h, 即可得到不同孔径结构及分布的莫来石多孔涂层, 涂层厚度约为 $240\mu\text{m}$ 。

(5) 取六水合硝酸钇和正硅酸乙酯分别作为钇源和硅源溶解于去离子水中, 采用磁力搅拌使其充分水解, 控制 Y^{3+} 浓度为 3mol/L , 其两种前驱体的物质的量之比为 (1 : 1), 同时浓度为 3.5mol/L 的氨水调节溶液的 pH 为 6, 并不断磁力搅拌 3.5h 获得均匀稳定透明的溶胶, 然后向其中加入 0.8g/L 的 LiYO_2 粉末作为烧结助剂, 继续搅拌使得 LiYO_2 粉末均匀悬浮于溶胶中;

(6) 取步骤 (5) 中的最终溶胶, 将步骤 (4) 中的涂层试样放入 $1050\text{ }^{\circ}\text{C}$ 真空管式炉中热处理 1h, 控制真空度为 10^{-3}Pa , 待管式炉温度降到 $400\text{ }^{\circ}\text{C}$ 时, 取出试样浸入溶胶中进行浸渍旋涂, 然后同样放入 $1050\text{ }^{\circ}\text{C}$ 真空管式炉中热处理 1h, 反复热浸渍-热处理重复以上过程 4 次即可得到致密的 Mullite/硅酸钇环境屏障复合涂层, 硅酸钇外涂层的厚度为 $240\mu\text{m}$ 。

以上对本发明的具体实施例进行了描述。需要理解的是, 本发明并不局限于上

述特定实施方式，本领域技术人员可以在权利要求的范围内做出各种变形或修改，这并不影响本发明的实质内容。

说明书附图

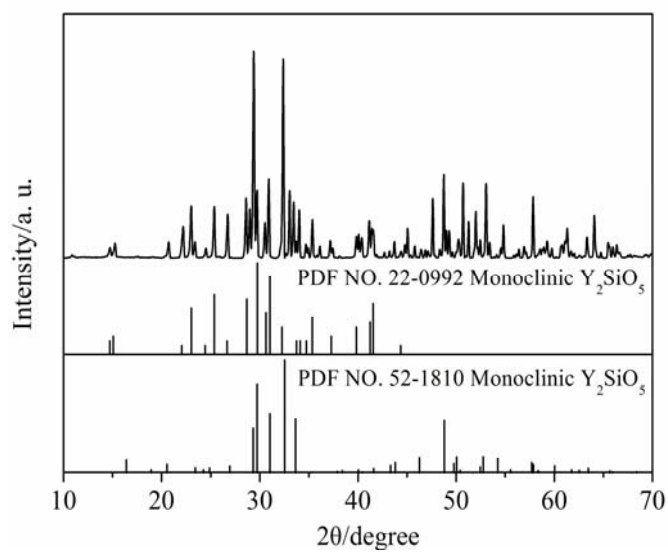


图 1

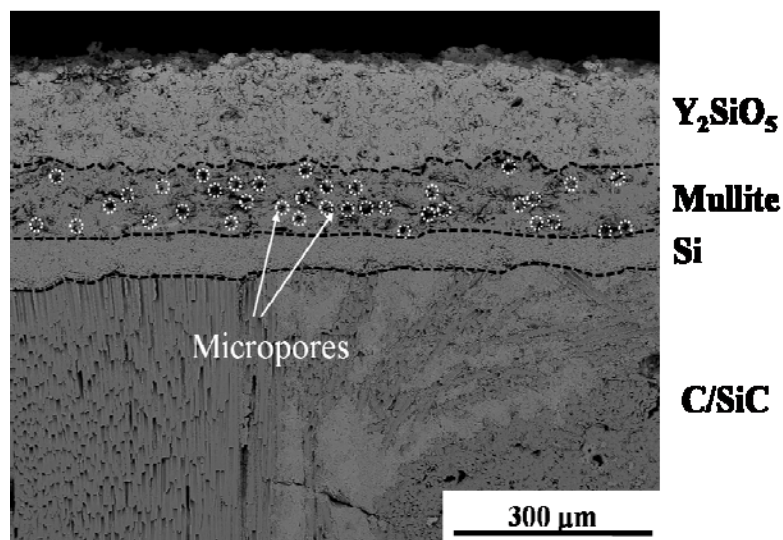


图 2

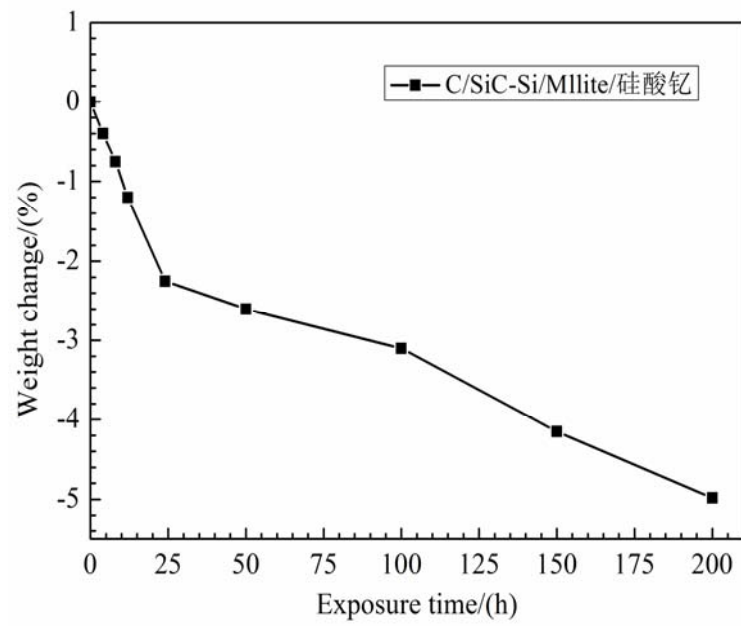


图 3