

高温氧化时间对 MoSi_2 - RSiC 复合材料组成、 微观结构和性能的影响*

高朋召^{1,2†}, 吕华南¹, 徐墨雨¹, 袁铮¹, 李冬云³, 肖汉宁¹

(1.湖南大学 材料科学与工程学院, 湖南 长沙 410082;

2.湖南大学 喷射沉积技术及应用湖南省重点实验室, 湖南 长沙 410082;

3.中国计量大学 材料科学与工程学院, 浙江 杭州 310018)

摘要:探讨了氧化时间对 MoSi_2 - RSiC 复合材料组成、微观形貌、力学性能和导电性能的影响。结果表明:复合材料氧化主要在外表面生成致密的 SiO_2 层;材料的力学性能随氧化时间的延长先增大后减小,MS-2.62 的抗弯强度和弹性模量在氧化 40 h 后达到最大值,分别为 146.03 MPa 和 239.49 GPa,氧化 100 h 后,三种材料的力学性能数据仍高于氧化前;随氧化时间的延长,材料的体积电阻率先减小后趋于平缓,MS-2.62 氧化 100 h 后的体积电阻率约为 $50 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$,比氧化前减小 42%,影响因子的计算表明这种变化可能源于 MoSi_2 发生塑性变形而减少了复合材料中 MoSi_2 和 RSiC 相界面处的微裂纹数量,在一定程度上有利于 MoSi_2 材料导电性能的充分发挥。

关键词: MoSi_2 - RSiC 复合材料;高温氧化;力学性能;电性能

中图分类号: TB333

文献标志码: A

Effect of High-temperature Oxidation Time on Composition, Microstructure and Properties of MoSi_2 - RSiC Composites

GAO Pengzhao^{1,2†}, LV Huanan¹, XU Moyu¹, YUAN Zheng¹, LI Dongyun³, XIAO Hanning¹

(1.College of Materials Science and Engineering, Hunan University, Changsha 410082, China;

2.Hunan Province Key Laboratory for Spray Deposition Technology and Application, Hunan University, Changsha 410082, China; 3.College of Materials Science and Engineering, China Jiliang University, Hangzhou 310018, China)

Abstract: The influence of high-temperature oxidation time on the composition, microstructure, and mechanical and electrical properties of MoSi_2 - RSiC composites was discussed. The experimental results show that the oxidation of composites mainly formed a dense cristobalite- SiO_2 film on the external surface. The mechanical properties of the composites increased and then decreased with the increase of oxidation time, and MS-2.62 oxidized for 40 h achieved the maximal flexural strength and elastic modulus of 146.03 MPa and 239.49 GPa, respectively. Meanwhile, the mechanical properties of composites were still greater than those of samples without any oxidation even after 100 h oxidation. With the increase of oxidation time, the volume resistivity of MoSi_2 - RSiC composites decreased and then reached a flat, while the volume resistivity of MS-2.62 was about $50 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$ after 100 h oxidation, which was about 42% lower than its o-

* 收稿日期:2016-12-13

基金项目:国家自然科学基金资助项目(51372078,51302076), National Natural Science Foundation of China (51372078,51302076); 湖南省自然科学基金资助项目(12JJ4054), Natural Science Foundation of Hunan Province (12JJ4054); 浙江省自然科学基金资助项目(LY14E020009), Natural Science Foundation of Zhejiang Province (LY14E020009)

作者简介:高朋召(1976—),男,陕西兴平人,湖南大学副教授,博士

† 通讯联系人, E-mail: gaopengzhao7602@hnu.edu.cn

original values. Additionally, the calculated influence factor I indicated that this variety might be caused by the healing of micro-crack at the interface between RSiC and MoSi₂ induced by the plastic deformation of MoSi₂, resulting in the decrease of the volume resistivity of composites.

Key words: MoSi₂-RSiC composites; high-temperature oxidation; mechanical properties; electrical properties

再结晶碳化硅(RSiC)具有纯度高、密度低(SiC的理论密度为 $3.21 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$)、高温力学性能优异、导热系数高、热膨胀率低、耐腐蚀、热稳定性好等优点,因而被广泛应用于高温窑具、冶金及尾气过滤、太阳能热交换器等要求较为苛刻的领域中^[1-4].特有的蒸发-凝聚烧成机理使RSiC在烧结过程中形成开口连通的多孔结构,这就导致该材料的力学性能较低,高温抗氧化、导热和导电性能较差^[5-6].目前解决这一问题的方法主要有两个,一个是在其孔隙中PIP填充SiC材料,实现RSiC的致密化^[7];另一个是通过高温熔渗等工艺填充某些高温下稳定、导热导电等性能优异的第二相来实现致密化,该方法不仅能解决RSiC的现存问题,而且可以拓展其应用领域^[1,8-10].

在前期的研究中,本课题组^[8]利用直接熔渗法(MI)将高温下稳定、导热导电性能优异的二硅化钼(MoSi₂)通过毛细管作用填充RSiC的孔隙,所制备的MoSi₂-RSiC复合材料兼具优异的高温力学性能、高温抗氧化性、较低的热膨胀系数和良好的导电导热性能,预期该材料在高温结构材料和电热元件材料领域具有良好的应用前景.基于上述两个应用领域,研究MoSi₂-RSiC复合材料高温下长期氧化过程中力学性能和电性能的变化极为重要,但目前这一方面的系统研究较少,同时前期的研究也表明,RSiC的密度对复合材料的力学性能和电阻率有重要影响^[7].为此,本文利用直接熔渗法制备了MoSi₂-RSiC复合材料,进而研究了高温氧化时间对材料组成、微观结构、力学和导电性能的影响,并进行了相关的理论分析.

1 试验部分

1.1 原料

本文选用三种密度分别为 $2.34 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ (气孔率26.3%)、 $2.42 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ (气孔率24.0%)、 $2.62 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ (气孔率17.8%)的RSiC作为基体^[11],编号分别为R-2.34, R-2.42和R-2.62. MoSi₂其粉体和

块体均为郑州世博电热元件公司生产. MoSi₂粉体纯度高于98.5%,平均粒径为 $8.22 \mu\text{m}$.

1.2 MoSi₂-RSiC 复合材料制备

将三种不同密度的RSiC材料分别加工成尺寸为 $3.2 \text{ mm} \times 4.3 \text{ mm} \times 50 \text{ mm}$ 的条状样,并进行抛光、洗涤等预处理.前期的研究发现,熔渗炉中炭气氛对复合材料的组成有较大影响,为此对熔渗过程中所用的坩埚等进行硅化预处理^[12].

将RSiC试样放置在已硅化的石墨坩埚中,加入适量MoSi₂粉末,以 $10 \text{ }^\circ\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$ 加热到 $2050 \text{ }^\circ\text{C}$ 并保温60 min,随炉冷却.所得复合材料的编号分别为MS-2.34, MS-2.42和MS-2.62(例如:MS-2.34表示RSiC密度 $2.34 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 对应的MoSi₂-RSiC复合材料).

1.3 氧化过程

将三种MoSi₂-RSiC复合材料放入硅钼炉中进行氧化.操作程序:采用 $5 \text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$ 的速率升温至 $1500 \text{ }^\circ\text{C}$ 保温10 h,随炉冷却至室温.重复上述过程10次,研究氧化时间对复合材料组成、微观结构、力学和导电性能的影响^[13-14].

1.4 测试与表征

利用Archimedes排水法测试复合材料的体积密度和表观气孔率.

采用JSM-6700F场发射扫描电子显微镜对氧化前后复合材料进行微观形貌观察,并用该设备附带的Oxford Inca型能谱仪(EDS)进行组成分析.

采用X射线衍射仪(XRD, Rigaku D/max2200)对氧化前后复合材料进行物相分析.测试条件:Cu-K_α射线,扫描范围为 $10^\circ \sim 80^\circ$,步长 0.02 ,扫描速度为 $8^\circ/\text{min}$.

利用苏州晶格电子有限公司ST-2258型多功能数字式四探针测量仪测量氧化前后复合材料的体积电阻率,每组试样测试10个数据后取平均值.

利用Instron3382万能电子材料试验机测试氧化前后复合材料的三点弯曲强度,试样尺寸为 $3.2 \text{ mm} \times 4.3 \text{ mm} \times 50 \text{ mm}$,跨距为30 mm,加载速率为 $0.5 \text{ mm}/\text{min}$,每组试样测5个值,取平

均值,从应力-应变曲线的斜率计算材料的弹性模量.

2 结果与讨论

2.1 物相组成

图 1 为三种 MoSi₂-RSiC 复合材料的 XRD 图谱.从图中可以看出,三种复合材料的物相均主要是 SiC,MoSi₂ 和 Mo_{4.8}Si₃C_{0.6},Mo_{4.8}Si₃C_{0.6} 是 SiC 和 MoSi₂ 在高温反应生成的,其反应过程可能是^[15]:



此外,三种复合材料的 XRD 图谱并没有明显的区别.

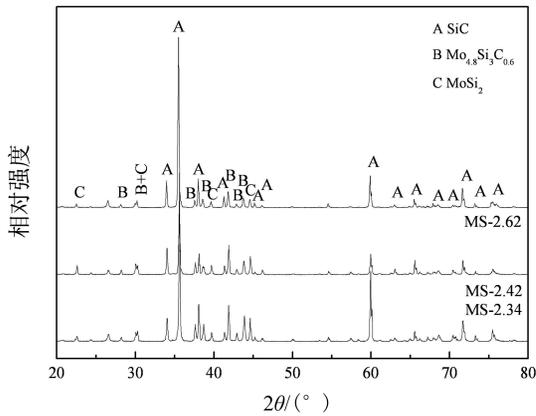


图 1 三种复合材料的 XRD 图谱

Fig.1 XRD patterns of three kinds of composites

三种复合材料的密度和气孔率数据如表 1 所示,将基体气孔率、表 1 数据与复合材料各组分的理论密度数据相结合,并采用混合规则等方法^[16],可以估算复合材料中各物相的含量.计算过程如下:在计算复合材料的理论密度 ρ_0 过程中,暂不考虑 Mo_{4.8}Si₃C_{0.6} 的含量,只考虑 SiC 和 MoSi₂ 的含量,并忽略闭气孔.由于 Mo_{4.8}Si₃C_{0.6} 的密度 (7.91 g/cm³)^[17] 比 MoSi₂ 的 (6.28 g/cm³)^[18] 大,可得到理论密度的极大值,如假设所得复合材料是致密体,即 MoSi₂ 的体积为开口气孔率.这样在下一步计算中可得到 Mo_{4.8}Si₃C_{0.6} 含量的极大值.于是有:

$$\rho_0 = \rho_{\text{SiC}}V_{\text{SiC}} + \rho_{\text{MoSi}_2}V_{\text{MoSi}_2}. \quad (3)$$

但实际上,所制备的复合材料并不是致密体,即下一步计算 MoSi₂ 含量时应该减去复合材料的气孔率.此外,只考虑 SiC 和 MoSi₂ 反应生成 Mo_{4.8}Si₃C_{0.6} 这一反应中的 MoSi₂ 体积变化,且该变化量与 Mo_{4.8}Si₃C_{0.6} 的含量相同.结合上述两个因素,式 (3)

可变为:

$$\rho_0 = \rho_{\text{SiC}}V_{\text{SiC}} + \rho_{\text{MoSi}_2}V_{\text{MoSi}_2} + \rho_{\text{Mo}_{4.8}\text{Si}_3\text{C}_{0.6}}V_{\text{Mo}_{4.8}\text{Si}_3\text{C}_{0.6}}. \quad (4)$$

通过计算可得到 Mo_{4.8}Si₃C_{0.6} 含量的近似值,结果如表 2 所示.

表 1 三种复合材料的气孔率和密度数据

Tab.1 Data of apparent porosity and volume density of three kinds of composites

试样	MS-2.34	MS-2.42	MS-2.62
表观气孔率/%	1.44	1.30	1.55
体积密度/(g·cm ⁻³)	3.95	3.97	3.61

表 2 三种复合材料的组成数据

Tab.2 Composition content of three kinds of composites

试样	V _{SiC}	V _{MoSi₂}	V _{Mo_{4.8}Si₃C_{0.6}}
MS-2.34	0.737	0.194	0.054
MS-2.42	0.760	0.185	0.042
MS-2.62	0.822	0.103	0.060

由表 2 可知,MS-2.34,MS-2.42 和 MS-2.62 复合材料中 Mo_{4.8}Si₃C_{0.6} 的含量分别为 5.4%,4.2% 和 6.0%,即相对密度越高,Mo_{4.8}Si₃C_{0.6} 的含量越低.

图 2 为 MS-2.62 材料不同氧化时间的 XRD 图谱.从图中可以看出,氧化 20 h 后,材料表面有少量方石英相(Cristobalite-SiO₂, PDF # 39-1425),随氧化时间延长,其强度逐渐增加.由于 XRD 测试试样为块体材料,加之氧化层较薄,方石英相的强度整体不高.同时,不同氧化时间所得复合材料中,也检测到了 SiC,MoSi₂ 和 Mo_{4.8}Si₃C_{0.6} 相.

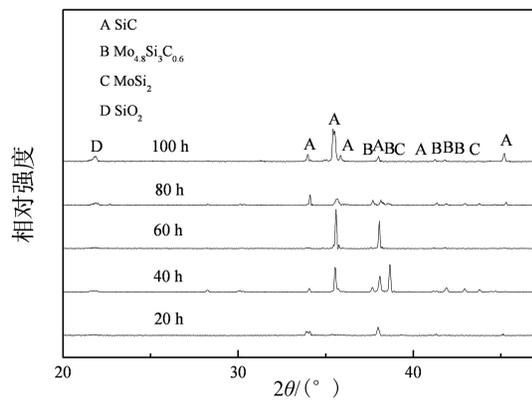


图 2 MS-2.62 复合材料氧化不同时间的 XRD 图谱

Fig.2 XRD patterns of MS-2.62 composites oxidized at 1 500 °C for different time

2.2 微观结构

图 3 为 MS-2.62 材料的断面形貌,其中灰色部分为 SiC,白色部分为 MoSi₂^[9](图 3(a)).这表明 MoSi₂ 在高温 (2 050 °C) 下可熔融并在毛细管力的作

用渗入三维连通的 RSiC 孔隙中,形成三维连续相。但是由于 RSiC 和 MoSi_2 的热膨胀系数不匹配 ($\alpha_{\text{RSiC}} = 4.5 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$, $\alpha_{\text{MoSi}_2} = 8.10 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$)^[19], 故而在两相的界面处存在微裂纹(图 3(b))。

表 3 图 4 中三点的 EDS 结果

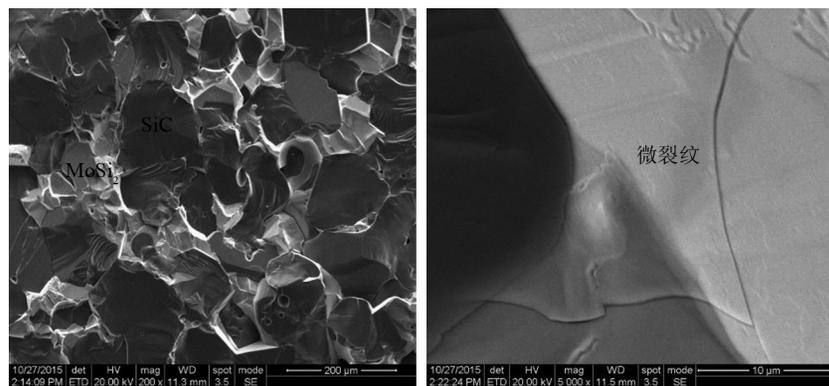
Tab.3 EDS results of three points in Fig.4

元素/at%	A	B	C
C K	4.76	12.15	19.25
O K	31.01	—	39.44
Si K	64.23	64.23	40.68
Mo L	—	23.62	0.63
组成	SiO_2, SiC	$\text{SiC}, \text{MoSi}_2$	$\text{SiO}_2, \text{SiC}, \text{MoSi}_2$

图 4 为 MS-2.62 材料不同氧化时间后的微观形貌。从图 4(a)(b)和(c)中可以看出,不同氧化时间的材料表面均形成一层均匀致密的氧化层, A 点能

谱分析表明其主要成分为 SiO_2 (表 3)。

图 4(d)和(e)分别为 MS-2.62 材料氧化 100 h 后断口内部 SEM 图,从图中可以看出,即使氧化 100 h,复合材料内部的颗粒表面较为光滑,没有明显的氧化现象,两相结合界面没有观察到微裂纹存在, B 点能谱数据表明其不存在氧化产物 SiO_2 ,其主要成分为 $\text{MoSi}_2, \text{SiC}, \text{Mo}_{4.8}\text{Si}_3\text{C}_{0.6}$, C 点主要成分为 SiO_2 (数据受能谱电子束直径和穿透能力的影响,会有少量其它组分)。结合表 1 可知,复合材料气孔率很低,而且在氧化过程形成的致密氧化层阻止 O_2 进入材料内部而发生氧化行为。图 4(f)表明,氧化 100 h 后,材料的外表面生成的氧化层厚度约为 $4 \mu\text{m}$ 。

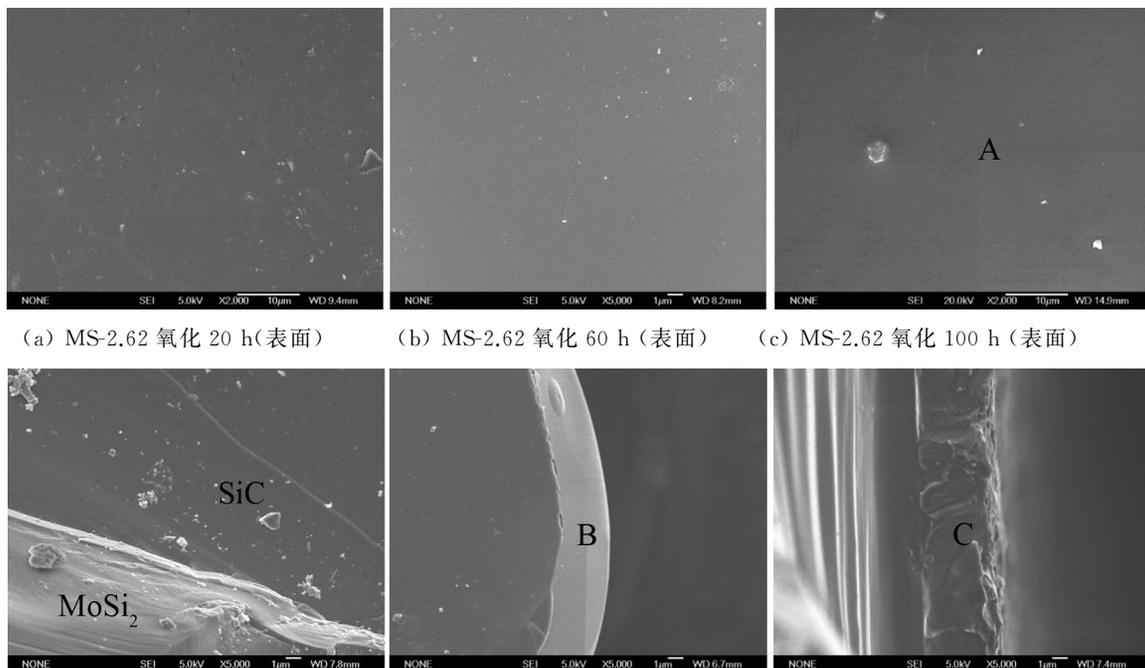


(a) MS-2.62 形貌

(b) MS-2.62 微裂缝

图 3 MS-2.62 复合材料断口的微观形貌

Fig.3 SEM photographs of fracture images of MS-2.62 materials



(a) MS-2.62 氧化 20 h (表面)

(b) MS-2.62 氧化 60 h (表面)

(c) MS-2.62 氧化 100 h (表面)

(d) MS-2.62 氧化 100 h (断口)

(e) MS-2.62 氧化 100 h (断口-内部)

(f) MS-2.62 氧化 100 h (断口-边缘)

图 4 MS-2.62 复合材料氧化不同时间的微观结构

Fig.4 Microstructure of MS-2.62 composites oxidized at 1500 °C for different time

2.3 氧化时间对复合材料力学性能的影响

图5为 MoSi₂-RSiC 复合材料在 1 500℃ 空气中氧化不同时间的室温抗弯强度与弹性模量.从图中可以看出,材料的力学性能随氧化时间延长先提高后降低.MS-2.34 在氧化 50 h,MS-2.42 和 MS-2.62 在氧化 40 h 后达到最大值,抗弯强度和弹性模量分别为 110.6 MPa 和 189.03 GPa,124.92 MPa 和 202.45 GPa,146.03 MPa 和 239.49 GPa.

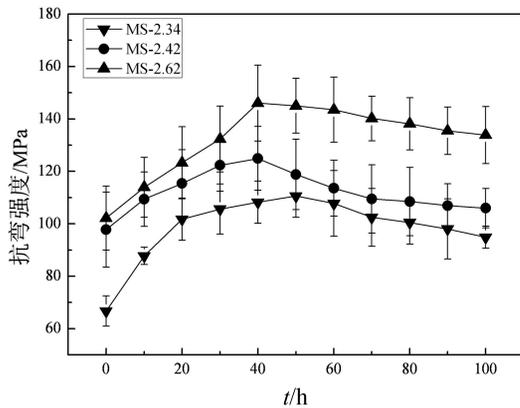
分析原因:在氧化的初始阶段,SiC,MoSi₂ 和 MoSi₃C_{0.6} 同时发生氧化,分别生成 SiO₂ 和 MoO₃,MoO₃ 的沸点较低(1 150℃)^[20],在氧化温度下(1 500℃)迅速挥发,所以在 SEM 和 XRD 结果中并没有发现 MoO₃ 相.而氧化生成的 SiO₂ 层有利于消除材料表面的缺陷,从而提高材料的力学性能,随氧化时间延长,这种作用越来越强,从而导致复合材料的力学性能逐渐增加.与此同时,SiO₂ 层的厚度增加也伴随 RSiC 和 MoSi₂ 等质量的损失,同时 MoO₃ 的挥发也会在一定程度上破坏 SiO₂ 层的完整性,这些对复合材料的力学性能有负面影响.两种因素的综合结果导致复合材料的力学性能先增加,后降低.但在氧化 100 h 后,三种复合材料的弯曲强度相比氧化前分别提高了 42%,8% 和 31%.

2.4 氧化时间对复合材料体积电阻率的影响

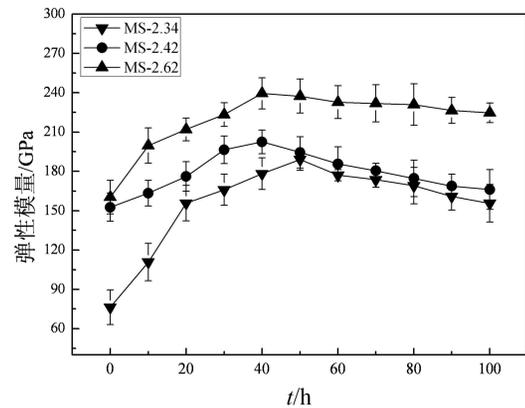
图6为三种复合材料在 1 500℃ 氧化不同时间的体积电阻率数据.氧化前,复合材料的体积电阻率

随着基体密度的增加而不断增大,分别为 9.67 mΩ·cm,13.04 mΩ·cm 和 91.50 mΩ·cm.这是因为 MoSi₂ 具有优异的电导率(21.50 × 10⁻² mΩ·cm^[21]),熔渗 MoSi₂ 后可显著改善 RSiC 基体的电性能.而基体密度越大,其开孔气孔率越小,所熔渗的 MoSi₂ 含量越少,导致其体积电阻越大.由前期工作可知,基体 R-2.34,R-2.42 和 R-2.62 的体积电阻率分别为 12.74 Ω·cm,7.43 Ω·cm 和 4.51 Ω·cm^[11],与 RSiC 相比,复合材料在其基础上下降 2 个数量级.同时,随氧化时间延长,复合材料的体积电阻率先缓慢减小而后趋于平缓.MS-2.34 和 MS-2.42 氧化 100 h 后的体积电阻率约为 7 mΩ·cm,MS-2.62 为 50 mΩ·cm 左右,与氧化前试样相比,三种复合材料氧化 100 h 后电阻率的减小幅度分别为 32%,40% 和 42%.

从表1可知,三种复合材料气孔率很小,而图4的微观分析表明复合材料的氧化主要发生在材料的外表面,而这对其电导率的影响较小.下降的主要原因可能是:由于氧化温度为 1 500℃,而 MoSi₂ 在高于 1 000℃ 会发生塑性变形^[19],但 RSiC 在氧化温度下仍保持原来的刚性结构,故而随氧化时间的延长,复合材料中 MoSi₂ 和 RSiC 相界面存在的微裂纹因 MoSi₂ 发生蠕变而逐渐愈合(图4(b)),这有利于提高材料的电导率,从而导致复合材料的体积电阻率先缓慢下降而后趋于平稳.



(a) MoSi₂-RSiC 复合材料的抗弯强度



(b) MoSi₂-RSiC 复合材料的弹性模量

图5 MoSi₂-RSiC 复合材料在 1 500℃ 氧化不同时间的力学性能

Fig.5 The flexural strength and elastic modulus versus oxidation time under atmospheric air at 1 500℃ of MoSi₂-RSiC composites

为了进一步分析各组分对 MoSi₂-RSiC 复合材料体积电阻率的影响,本文运用混合法则计算复合材料的电阻率^[22]:

$$\ln \sigma = \sum_{i=1}^m V_i \ln \sigma_i \quad (5)$$

式中: σ_i 表示第*i*相的电导率, V_i 表示第*i*相的

体积分数(见表2), m 表示复合材料的组成.其中 SiC,空气和 Mo_{4.8}Si₃C_{0.6} 的体积电阻率分别为 625 mΩ·cm^[9],2.8 × 10⁷ mΩ·cm^[9] 和 0.11 mΩ·cm (测量值).式(5)适用于各物相均匀分布的复合材料.本文对式(5)进行适当优化,使其能用于三维互穿网络结构的复合材料导电性能的研究^[4].

$$\ln \sigma = I \sum_{i=1}^m V_i \ln \sigma_i \quad (6)$$

式中: I 表示三维互穿网络结构和界面结合对复合材料电导率的影响因子, I 值越大, 影响越大. 三种复合材料的 I 值随氧化时间的变化如图 7 所示.

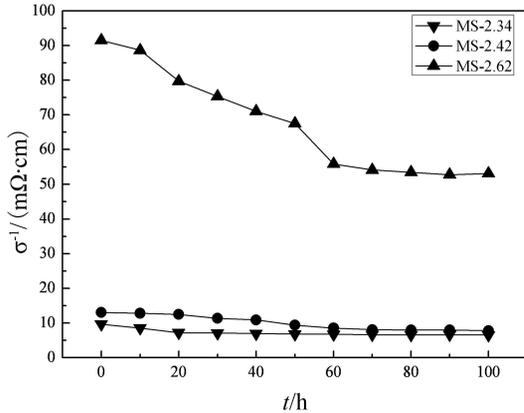


图 6 三种复合材料在 1 500 °C 氧化不同时间的体积电阻率数据

Fig.6 Data of volume resistivity of three kinds of composites versus oxidation time at 1 500 °C

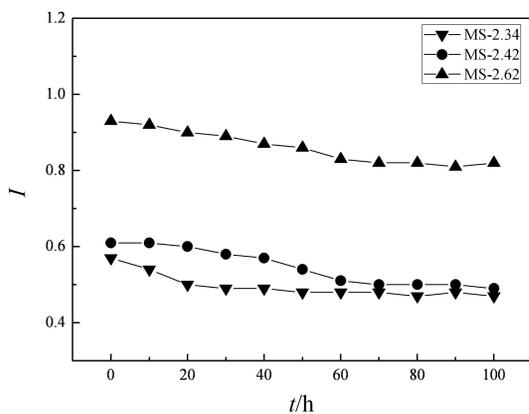


图 7 三种复合材料在 1 500 °C 氧化不同时间的电导率的影响因子 I

Fig.7 I values of electrical conductivity of MoSi₂-RSiC composites versus oxidation time at 1 500 °C

从图中可以看出, 氧化前的三种复合材料, 其 I 值都小于“1” (1 表示复合材料中各相均匀分布, 三种复合材料的数值分别为 MS-2.34:0.57; MS-2.42:0.61 和 MS-2.62:0.93), 这表明三维网络结构并没有达到理想的随机分布状态, 从微观结构(图 3)中也可以看出. 随着复合材料的基体密度的增加, I 值逐渐增大, 这说明 SiC 含量与熔渗相的比值越大, 所得的复合材料中这两相偏离随机分布的概率越小, 试样越趋于均匀分布的复合材料.

同时, 随着氧化时间的增加, I 值不断减小并趋于平缓, 但整体变化不大. 这可能是由于上述所说的 MoSi₂ 因发生塑性变形而减少了复合材料中 MoSi₂ 和 RSiC 相界面处和 MoSi₂ 材料内部的微裂纹数量,

在一定程度上有利于 MoSi₂ 材料导电性能的充分发挥, 相当于变相提高了 MoSi₂ 材料的含量, 从而导致复合材料的均匀性下降.

3 结论

1) MoSi₂-RSiC 复合材料在 1 500 °C 的氧化主要在材料外表面生成致密的 SiO₂ 层, 随氧化时间延长, 氧化层厚度增加, 氧化 100 h 时, 氧化层厚度约为 4 μm.

2) SiO₂ 层的形成有利于减少复合材料表面缺陷, 从而提高材料的力学性能, 而氧化产物 MoO₃ 的挥发会破坏氧化层的完整性, 削弱这种增强作用, 这两种作用的叠加效应导致复合材料的抗弯强度和弹性模量随氧化时间的增加先增大后减小, MS-2.62 的抗弯强度和弹性模量在氧化 40 h 后达到最大值, 分别为 146.03 MPa 和 239.49 GPa, 氧化 100 h 后, 三种材料的力学性能数据仍高于氧化前.

3) 随氧化时间的延长, 复合材料的体积电阻率先逐渐减小后趋于平缓, MS-2.62 氧化 100 h 后的体积电阻率约为 50 mΩ · cm, 比氧化前减小 42%; 影响因子的计算表明这种变化可能缘于 MoSi₂ 发生塑性变形而减少了复合材料中 MoSi₂ 和 RSiC 相界面处和 MoSi₂ 材料内部的微裂纹数量, 在一定程度上有利于 MoSi₂ 材料导电性能的充分发挥.

参考文献

- [1] GAO P Z, ZHANG X L, HUANG S T, *et al.* Influence of MoSi₂ content on the microstructure and properties of MoSi₂-RSiC composites [J]. *Materials Research Bulletin*, 2014, 54 (2): 13-19.
- [2] CARTER J R C H, DAVIS R F, BENTLEY J. Kinetics and mechanisms of high-temperature creep in silicon carbide: II, chemically vapor deposited [J]. *Journal of American Ceramic Society*, 1984, 67: 732-740.
- [3] SONNTAG A. New R-SiC extends service life in kiln furniture [J]. *American Ceramic Society Bulletin*, 1997, 76(11): 51-54.
- [4] RIBEIRO S, GÉNOVA L A, RIBEIRO G C, *et al.* Effect of heating rate on the shrinkage and microstructure of liquid phase sintered SiC ceramics [J]. *Ceramics International*, 2016, 42(15): 17398-17404.
- [5] GUO W M, XIAO H N, XIE W, *et al.* A new design for preparation of high performance recrystallized silicon carbide [J]. *Ceramics International*, 2012, 38(3): 2475-2481.
- [6] BUNDSCHUH K, SCHUZE M, MULLER C, *et al.* Selection of materials for use at temperatures above 1 500 °C in oxidizing atmospheres [J]. *Journal of the European Ceramic Society*, 1998, 18: 2389-2391.
- [7] 郭文明. 再结晶碳化硅烧结机理及其材料性能改进研究 [D]. 长沙: 湖南大学材料科学与工程学院, 2012.
GUO W M. Sintering mechanism and performance improvements of recrystallized silicon carbide [D]. Changsha: College of Materials Science and Engineering, Hunan University, 2012. (In Chinese)
- [8] GAO P Z, WANG L, HUANG S T, *et al.* Microstructure and mechanical properties of 3-D interpenetrated network

- structure MoSi₂-RSiC composite[J]. *Ceramic International*, 2012, 38(7): 5799–5805.
- [9] XIE W, GAO P Z, LI D Y, *et al.* Detailed electrical and mechanical retention characteristics of MoSi₂-RSiC composites exhibiting three-dimensional (3D) interpenetrated network structure during long-term high-temperature oxidation process [J]. *Ceramics International*, 2016, 42: 5873–5884.
- [10] XIE W, GAO P Z, LV H N, *et al.* Mechanical and electrical properties of MoSi₂-RSiC composites via a combination of phenolicresin infiltration-pyrolysis and MoSi₂-Si-Ti alloy activated melting infiltration composite processes[J]. *Advances in Applied Ceramics*, 2016, 115(5): 249–259.
- [11] LV H N, ZHANG X L, GAO P Z, *et al.* Influence of density on the microstructure, mechanical, electrical and thermal properties of recrystallized silicon carbide[J]. *Key Engineering Materials*, 2016, 680 (1): 93–98.
- [12] SUYAMA S, KAMEDA T, ITOH Y. Development of high-strength reaction-sintered silicon carbide[J]. *Diamond and Related Materials*, 2003, 12(3): 1201–1204.
- [13] 雷海波, 肖汉宁, 郭文明, 等. 高温氧化对再结晶碳化硅陶瓷断裂强度的影响[J]. *硅酸盐学报*, 2010, 38(8): 1519–1522.
LEI H B, XIAO H N, GUO W M, *et al.* Influence of oxidation time at high temperature on the fracture strength of SiC ceramics [J]. *Journal of the Chinese Ceramic Society*, 2010, 38(8): 1519–1522. (In Chinese)
- [14] 冯建基, 李国卿, 张长瑞, 等. 铝离子注入 Si₃N₄ 陶瓷的抗氧化性能[J]. *硅酸盐学报*, 2004, 32(9): 1060–1063.
FENG J J, LI G Q, ZHANG C R, *et al.* Oxidation resistance of Si₃N₄ ceramic by aluminum ion implantation[J]. *Journal of the Chinese Ceramic Society*, 2004, 32(9): 1060–1063. (In Chinese)
- [15] GUO W M, XIAO H N, GAO P Z, *et al.* Investigation of MoSi₂ melt infiltrated RSiC and its oxidation behavior[J]. *Ceramics International*, 2012, 38(1): 111–117.
- [16] ASKELAND D R, PHULE P P. 材料科学与工程[M]. 北京: 清华大学出版社, 2005: 527–536.
ASKELAND D R, PHULE P P. *Essential of materials science and engineering*[M]. Beijing: Tsinghua University Press, 2005: 527–536. (In Chinese)
- [17] PARTHE E, JEITSCHKO W, SADAGOPAN V. A neutron diffraction study of the nowotny phase Mo_{0.5}Si₃C_{0.5}[J]. *Acta Crystallographica*, 1965, 19(6): 1031–1037.
- [18] XU J G, ZHANG B L, JIAN G J, *et al.* Fabrication and characterization of SiCw/MoSi₂ composite from COSHSed powder [J]. *Journal of Materials Science*, 2007, 42(14): 5795–5798.
- [19] MEIER S, HEINRICH J G. Processing-microstructure-properties relationships of MoSi₂-SiC composites[J]. *Journal of the European Ceramic Society*, 2002, 22: 2357–2363.
- [20] BUCEVAC D, DAPCEVIC A, MAKSIMOVIC V. Porous acicula mullite obtained by controlled oxidation of waste molybdenum disilicide[J]. *Materials Research Bulletin*, 2014, 50(1): 155–160.
- [21] KUMAR S, SAIRAM K, SONBER J K, *et al.* Hot-pressing of MoSi₂ reinforced B₄C composites[J]. *Ceramics International*, 2014, 40(10): 16099–16105.
- [22] KINGERY W D, BOWEN H K, UHLMANN D R. *Introduction to Ceramics*[M]. New York: John Wiley & Sons Inc, 1960.