

膜层材料与技术

喷涂工艺对 $\text{MoSi}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ 涂层组织与性能的影响

霍达, 李文生, 冯力, 胡春霞, 胡伟

(兰州理工大学, 兰州 730050)

摘要: **目的** 在不锈钢表面制备一种可服役于高温富氧环境中的抗高温氧化防护涂层。**方法** 采用 $\text{MoSi}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ 团聚烧结粉末为喷涂原料, 分别利用等离子喷涂和火焰喷涂两种工艺在 310S 不锈钢表面制备 $\text{MoSi}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ 抗高温氧化涂层。采用 SEM、EDS、XRD 和粗糙度测量仪分析涂层的组织结构, 使用拉伸法检测涂层的结合强度, 采用高温氧化实验表征涂层的抗高温氧化性能。**结果** 等离子喷涂涂层中的粉末熔化程度较火焰喷涂涂层更高, 涂层呈现致密的堆叠结构且 Si、O 元素分布更为均匀。等离子喷涂涂层的结合强度为 24.25 MPa, 较火焰喷涂涂层提高了约 68%。经 1200 °C 高温氧化试验后, 火焰喷涂涂层出现粉化, 氧化剧烈并发生剥落, 而等离子喷涂涂层未出现粉化现象, 涂层结构完好。在高温氧化过程中, 由于等离子喷涂涂层组织致密, 可有效避免涂层粉化, 均匀分布的 Si 元素在涂层氧化过程中更易产生 SiO_2 并对涂层裂纹进行有效填补, 阻碍了氧原子向涂层内部扩散, 因此涂层抗高温氧化性优异。**结论** 采用等离子喷涂技术能够在 310S 不锈钢表面制备出组织结构、结合强度及高温性能更好的 $\text{MoSi}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ 涂层。

关键词: $\text{MoSi}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ 涂层; 团聚烧结粉末; 火焰喷涂; 等离子喷涂; 结合强度; 高温抗氧化性能

中图分类号: TG174.442 **文献标识码:** A **文章编号:** 1001-3660(2018)04-0267-07

DOI: 10.16490/j.cnki.issn.1001-3660.2018.04.039

Effects of Spraying Process on Microstructure and Properties of $\text{MoSi}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ Coating

HUO Da, LI Wen-sheng, FENG Li, HU Chun-xia, HU Wei

(Lanzhou University of Technology, Lanzhou 730050, China)

ABSTRACT: The work aims to prepare a protective coating which is resistant to high temperature oxidation and can be used in high temperature oxygen-enriched environment. With $\text{MoSi}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ agglomerated and sintered powder as raw material for spraying, high temperature oxidation resistant $\text{MoSi}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ coatings was prepared on the surface of 310S stainless steel by adopting process of flame spraying and plasma spraying. SEM, EDS, XRD and surface roughness tester were used to analyze structure of the coatings, bonding strength of the coatings was tested in tensile method, and high temperature oxidation resistance of the coatings was tested by performing high temperature oxidation experiment. Plasma spraying coating was superior to flame spraying coating in terms of powder melting degree, the coating exhibited more compact stacked structure, and distribution of Si, O element was more uniform. Bonding strength of plasma sprayed coating was 24.25 MPa, nearly 68% higher than

收稿日期: 2017-10-29; 修订日期: 2017-11-30

Received: 2017-10-29; Revised: 2017-11-30

基金项目: 国家国际科技合作项目 (2015DFR51090); 国家自然科学基金 (51674130); 甘肃省自然科学基金 (1508RJZA006)

Fund: Supported by International Science and Technology Cooperation Program of China (2015DFR51090), National Natural Science Foundation of China (51674130) and Natural Science Foundation of Gansu Province (1508RJZA006)

作者简介: 霍达 (1990—), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为金属陶瓷材料及表面工程技术。

Biography: HUO Da (1990—), Male, Master graduate student, Research focus: cermet materials and surface engineering technology.

通讯作者: 李文生 (1973—), 男, 博士, 教授, 主要研究方向为金属陶瓷材料及表面工程技术。

Corresponding author: LI Wen-sheng (1973—), Male, Ph. D., Professor, Research focus: cermet materials and surface engineering technology.

that of flame sprayed coating. After high temperature oxidation test at 1200 °C, the flame sprayed coating was subject to pulverization, severe oxidation and spalling while the plasma sprayed coating was not subject to pulverization (with intact coating structure). Coating pulverization could be prevented effectively in the process of high temperature oxidization due to compact structure of the plasma sprayed coating, uniformly distributed Si element was more likely to generate SiO_2 and repair coating cracks in the process of coating oxidization, which prevented oxygen atoms from diffusing toward coating interior. Moreover, the coating exhibited excellent high temperature oxidization resistance. Plasma spraying technology can be used to prepare $\text{MoSi}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ coatings exhibiting better microstructure, bonding strength and high temperature oxidation on the surface of 310S stainless steel.

KEY WORDS: $\text{MoSi}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ coating; agglomerated and sintered powder; flame spraying; plasma spraying; bonding strength; high temperature oxidation resistance

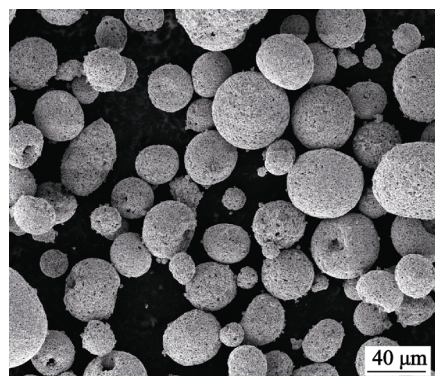
因其熔点和高温抗氧化性能的限制,传统耐热不锈钢材料逐渐难以满足各领域日益增长的工业需求,因此迫切需要通过陶瓷防护涂层来提高不锈钢材料在高温工况环境下的耐受温度和服役时间,以延长不锈钢关键零部件的使用寿命。 Mo-Si 系陶瓷具有较高的熔点、良好的耐腐蚀性和高温抗氧化性能,其中,作为 Mo-Si 二元化合物陶瓷中含 Si 量最高的 MoSi_2 ,具备密度低、熔点高、晶体结构稳定和高温抗氧化性能优异等众多优点^[1-2]。在高温下, MoSi_2 与氧气反应生成的黏性流动的 SiO_2 在填补材料中裂纹等缺陷的同时,还可隔绝外界 O_2 ,防止 MoSi_2 的进一步氧化^[3]。学者们利用现有的制备工艺,如放电等离子烧结、浆料烧结法、熔盐法、包埋法、化学气相沉积、热喷涂等制备 MoSi_2 涂层^[4-9],用以保护高温工况下的基体材料。在众多的制备工艺中,热喷涂工艺因灵活高效,涂层厚度可控,喷涂零件尺寸形状不受限制等众多优点而广受关注。

在大多数 MoSi_2 涂层研究中, MoSi_2 多作为 C/C、Nb、Mo 等材料表面的防护涂层^[10-12],在耐热不锈钢表面制备 MoSi_2 涂层的研究却鲜有报道。此外, Al_2O_3 与 MoSi_2 有较接近的熔点、密度及杨氏模量,两者的热膨胀系数匹配较好,具备较好的物理相容性,在烧结和降温的过程中,两者间没有明显的残余应力作用,最高可耐受 1600 °C 高温^[13]。将 Al_2O_3 作为第二添加相引入 MoSi_2 涂层中,有利于提高 MoSi_2 涂层中 SiO_2 氧化膜的热稳定性和结晶温度,并将显著减少 MoSi_2 涂层在 500 °C 左右时由于加速氧化而导致的涂层粉化倾向^[14],提高涂层的综合性能。因此文中将 MoSi_2 与 Al_2O_3 按体积比 9:1 混合,制备团聚烧结 $\text{MoSi}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ 复合粉末,同时结合等离子喷涂和火焰喷涂这两种热喷涂工艺在 310S 耐热不锈钢表面制备 $\text{MoSi}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ 涂层,研究喷涂工艺对涂层组织结构及性能的影响,为高温环境下不锈钢材料的防护应用及研究发展提供理论借鉴。

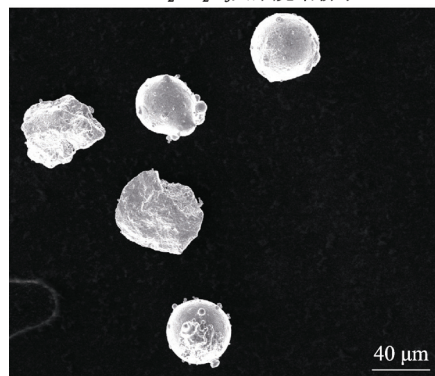
1 实验

1.1 粉体材料

将粒径为 1~5 μm 的 MoSi_2 和 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 粉末(上海乃欧纳米科技有限公司生产)按体积比 9:1 球磨混合,利用喷雾干燥法制备 $\text{MoSi}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ 粉末,在 1200 °C 中真空烧结 1.5 h,筛选粒径为 38~58 μm 的 $\text{MoSi}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ 粉末待用。粘接层材料是粒径为 40~60 μm 的 NiCrAlY 粉末(上海乃欧纳米科技有限公司生产)。两种粉末形貌如图 1 所示。



a $\text{MoSi}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ 团聚烧结粉末



b NiCrAlY 粉末

图 1 团聚烧结粉末和 NiCrAlY 粉末形貌
Fig.1 Morphology of agglomerated and sintered powder (a) and NiCrAlY powder (b)

1.2 涂层制备

分别采用 DH-2080 等离子喷涂设备与 TSG-10 火焰喷涂设备制备 MoSi₂-Al₂O₃ 涂层(厚度 200~300 μm), NiCrAlY 粘接层(厚度 100~150 μm)采用等离子喷

涂设备制备。基体材料选用尺寸 10 mm×10 mm×12 mm 的 310S 不锈钢,在喷涂实验前经清洗、除油及喷砂粗化处理。等离子与火焰喷涂工艺参数分别列于表 1 和表 2。

表 1 等离子喷涂工艺参数
Tab.1 Plasma spraying parameters

Plasma spraying	Spray voltage/V	Spray current/A	Gas flow rate/(L·min ⁻¹)		Spraying distance/mm
			Ar	H ₂	
NiCrAlY	140	390	130	8	120
MoSi ₂ -Al ₂ O ₃	160	420	115	15	130

表 2 火焰喷涂工艺参数
Tab.2 Flame spraying parameters

Flame spraying	Gas flow rate/(m ³ ·h ⁻¹)		Powder feed rate/(kg·min ⁻¹)	Compressed air/(m ³ ·h ⁻¹)	Spraying distance/mm
	O ₂	C ₂ H ₂			
MoSi ₂ -Al ₂ O ₃	2.28	0.7	0.02	3	100

1.3 分析测试

采用带有 EDS 能谱仪的 JEOL-6700F 型扫描电子显微镜对涂层进行表面形貌观察和微区成分分析。使用 2206 型表面粗糙度测量仪测定涂层的表面粗糙度。利用 D8/ADVANCE 型 X 射线衍射仪分析涂层的物相。

使用 AG-10TA 拉伸试验机测定涂层的结合强度,实验采用粘胶对偶试样拉伸法,按照 GB/T 8642—2002 测定。拉伸试样(φ20 mm×40 mm)截面经清洗干燥后喷砂,依次喷涂 NiCrAlY 粘接层和 MoSi₂-Al₂O₃ 工作涂层。涂层表面涂覆 E7 胶后与对拉件粘接,锡纸包裹后分别经室温固化 6 h 和 75 ℃固化 12 h。拉伸试验机加载载荷 1 t,拉伸速率 2 mm/min,结合强度取 5 个拉伸试样的平均值。结合强度计算公式为 $\sigma_f = \frac{F}{A} = \frac{4F}{\pi D^2}$,其中 F 为涂层断裂所需拉伸力,D 为试样直径,拉伸示意图如图 2 所示。

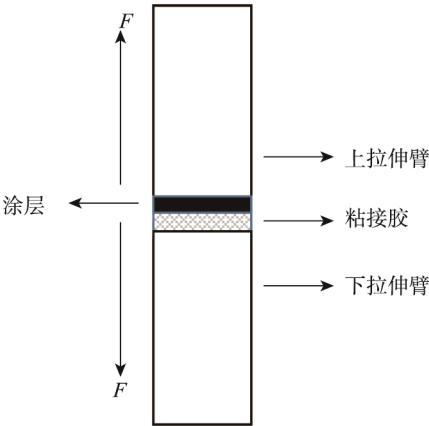


图 2 拉伸示意图
Fig.2 Schematic diagram of stretching test

高温氧化实验在 TCW-32B 高温电阻炉中进行。将等离子喷涂涂层试样和火焰喷涂涂层试样分别放入炉中,升温速率为 5 ℃/min,升至 1200 ℃时保温并计时,氧化 5 h 和 25 h 后取出试样冷却至室温,并分析检测。

2 实验结果

2.1 涂层的组织结构

表 3 为等离子喷涂和火焰喷涂涂层的表面粗糙度测试结果。从表 3 中可知,等离子喷涂涂层的表面粗糙度明显低于火焰喷涂涂层。

表 3 涂层表面粗糙度
Tab.3 Surface roughness of coatings

Coatings	Ra/μm	Rz/μm	Ry/μm
Flame spraying	8.34	41.04	60.52
Plasma spraying	6.98	34.64	41.32

图 3 为火焰喷涂和等离子喷涂喷涂态涂层的表面与截面形貌。由涂层表面形貌(图 3a 和图 3b)可以看出,等离子喷涂涂层表面的粒子熔化充分,无明显孔隙、半熔化粉末颗粒和细小粉末微粒。对比两种涂层的截面形貌(图 3c 和图 3d)发现,等离子喷涂涂层中扁平状粒子堆叠结构较火焰喷涂涂层更为明显,堆积区域孔隙的尺寸与数量均较小。结合图像分析法测定了涂层的孔隙率,等离子喷涂涂层的孔隙率为 11.28%,较火焰喷涂涂层(孔隙率 20.74%)更为致密。采用 EDS 能谱表征两种涂层截面的元素分布,结果表明,等离子喷涂涂层中 Si、O 元素的分布较火焰喷涂涂层更为均匀。

图 4 为两种工艺制备的涂层界面与拉伸断面形

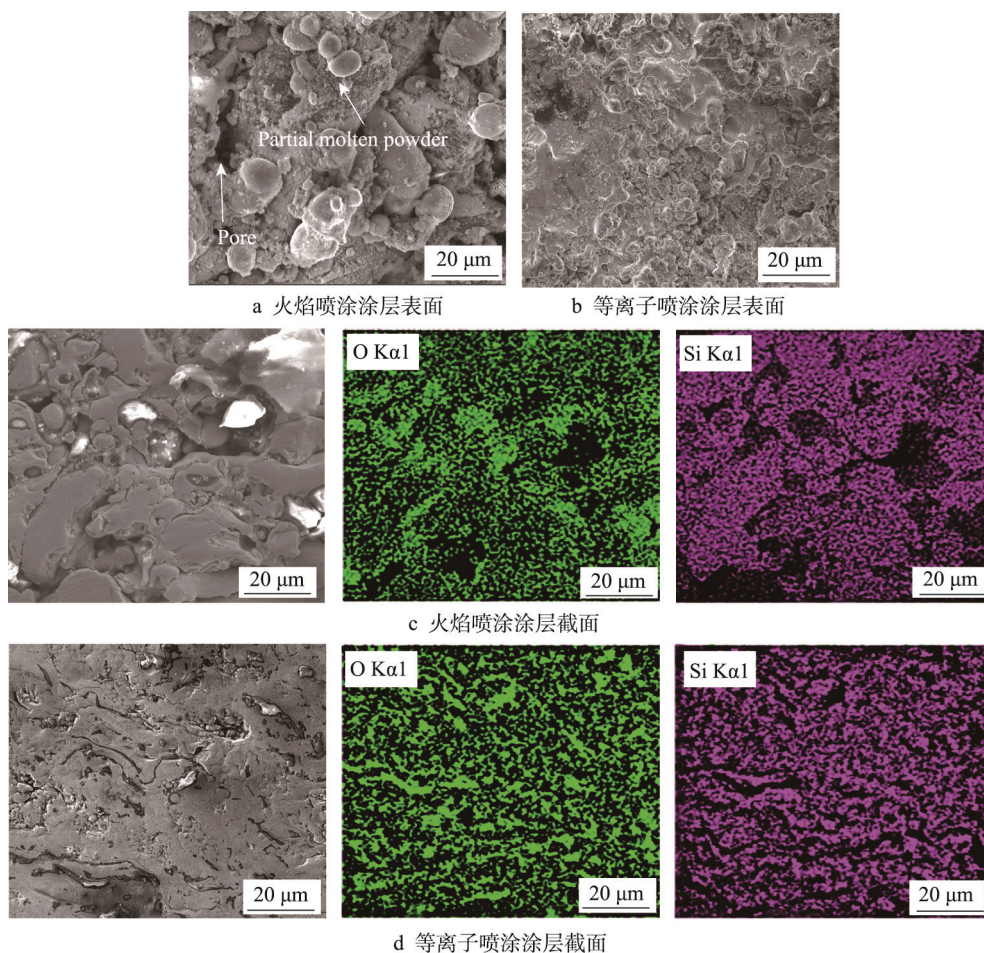
图 3 $\text{MoSi}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ 涂层形貌及截面元素分布

Fig.3 Morphology and cross-sectional element distribution of $\text{MoSi}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ coating: a) flame sprayed coating surface, b) plasma sprayed coating surface, c) flame sprayed coating section, d) plasma sprayed coating section

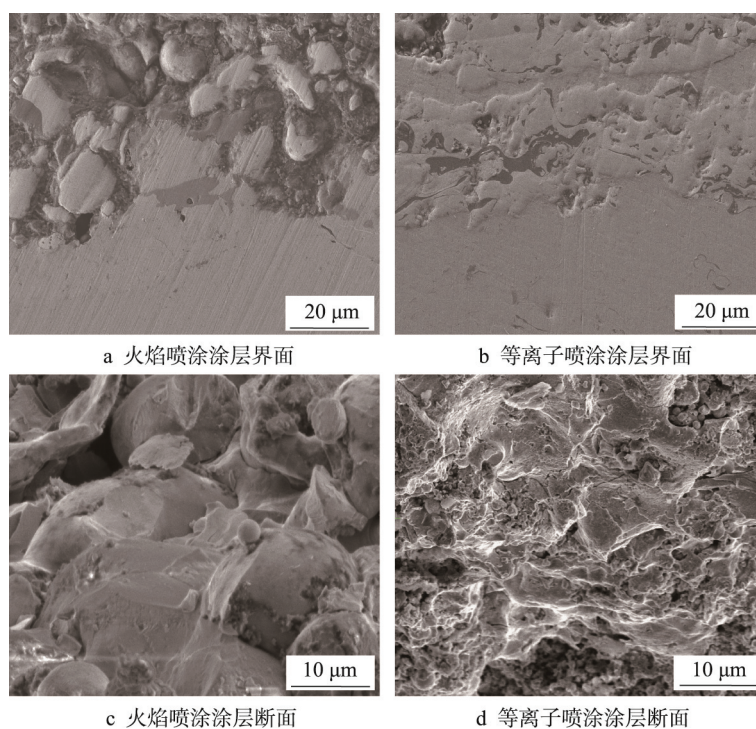


图 4 涂层界面与拉伸断面形貌

Fig.4 Morphology of $\text{MoSi}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ coating interface (a, b) and tensile section (c, d)

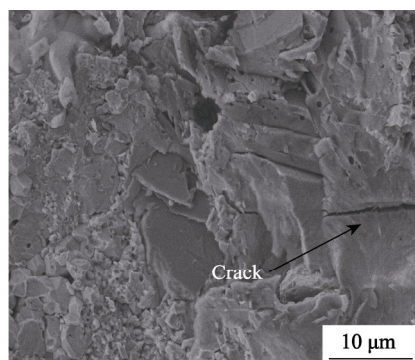
貌。由界面形貌 (图 4a 和图 4b) 看出, 等离子喷涂涂层界面处与粘接层衔接更好, 致密性、粉末粒子的扁平程度明显高于火焰喷涂涂层。对比两种涂层的拉伸断面形貌 (图 4c 和图 4d) 可知, 两种涂层的断面均有凹坑和突起, 等离子喷涂涂层断面整体更为平整, 起伏较小。

2.2 涂层的结合强度

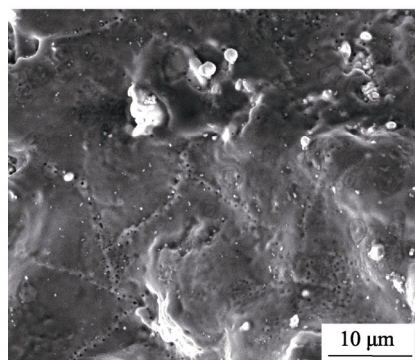
由火焰喷涂和等离子喷涂制备的 $\text{MoSi}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ 涂层的结合强度测试结果可知, 等离子喷涂 $\text{MoSi}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ 涂层的结合强度为 24.25 MPa, 较火焰喷涂涂层的结合强度 (14.36 MPa) 提高了约 68%, 这说明等离子喷涂涂层的机械结合力强于火焰喷涂涂层。

2.3 涂层的高温氧化性能

图 5 为经 1200 °C 高温氧化 5 h 后火焰喷涂和等离子喷涂涂层的形貌。由图 5a 可以看出, 火焰喷涂涂层出现粉化, 涂层组织呈现疏松的层片状, 层片间存在大量裂纹。由图 5b 可知, 等离子喷涂涂层未出现粉化现象, 涂层组织大部分区域致密完好。



a 火焰喷涂涂层



b 等离子喷涂涂层

图 5 高温氧化 5 h 后火焰喷涂和等离子喷涂涂层形貌
Fig.5 Morphology of flame sprayed coating (a) and plasma sprayed coating (b) after high temperature oxidation for 5 h

图 6 为喷涂涂层与经高温氧化 5 h 后涂层的 X 射线衍射图谱。由图可知, 两种喷涂工艺制备的 $\text{MoSi}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ 喷涂涂层中均以 MoSi_2 为主相。氧化 5 h 后火焰喷涂涂层的主相变为 Mo_5Si_3 , 且该涂层中 MoO_3 、 SiO_2 等氧化相的衍射峰强度高于等离子喷涂涂层。

图 7a 和 7b 分别为 1200 °C 高温氧化 25 h 后火焰

喷涂与等离子喷涂涂层的形貌。从图中可以看出, 火焰喷涂涂层疏松并出现部分剥落, 等离子喷涂涂层致密, 裂纹被物质填补。

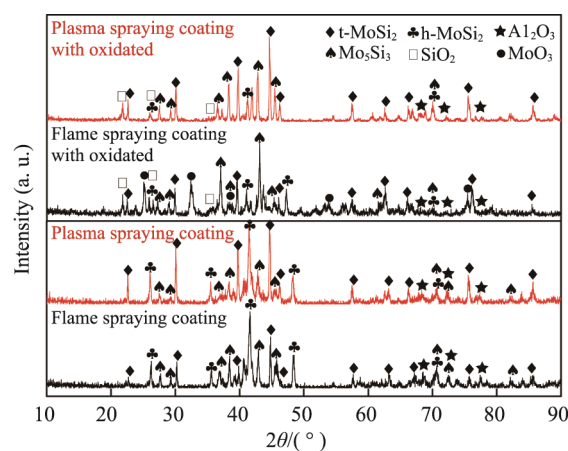
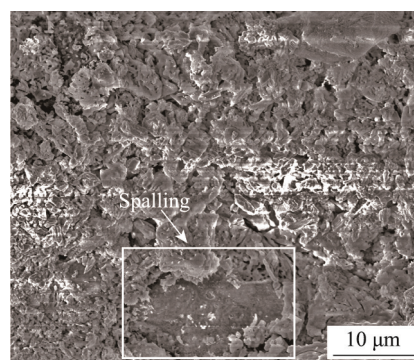
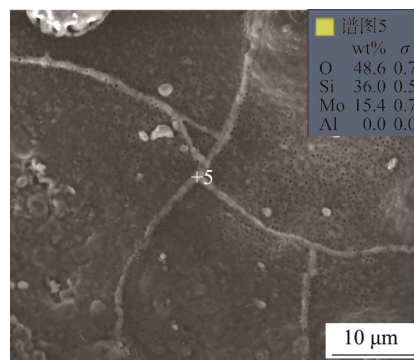


图 6 喷涂涂层与高温氧化 5 h 后涂层的物相
Fig.6 Phases of plasma sprayed coating and flame sprayed coating after 5 h oxidation



a 火焰喷涂涂层



b 等离子喷涂涂层

图 7 高温氧化 25 h 后火焰喷涂和等离子喷涂涂层形貌
Fig.7 Morphologies of flame spraying (a) and plasma spraying (b) coating after high temperature oxidation for 25 h

3 讨论分析

3.1 制备工艺对涂层组织结构的影响

由图 3 中喷涂涂层的形貌可知, 火焰喷涂涂层中, 孔隙、未熔颗粒较多, 存在部分尺寸远小于原始

喷涂粉末(如图1a所示)的细小粉末颗粒,涂层层状结构不明显。由此说明,受焰流温度影响,火焰喷涂时部分粉末粒子熔化不足,从而形成涂层时扁平铺展不充分,未完全熔化粒子的边界处形成孔隙,造成涂层孔隙数量的增加。结合粗糙度测试结果(表3)可知,部分未熔融粉末粒子高速撞击基体后发生了破碎,在涂层中形成了细小的粉末颗粒。涂层中的孔隙和未熔粉末颗粒分别是涂层表面凹谷和高峰的主要来源,两者均造成了涂层粗糙度增大。由图3c和3d中EDS元素分布结果可知,与火焰喷涂涂层相比,由于等离子喷涂粉末粒子较好地熔融且具有较好的扁平化铺展程度,其涂层中Si、O元素分布更为均匀。

3.2 制备工艺对涂层力学性能的影响

由2.2小节中结合强度的数据可知,等离子喷涂涂层的结合强度高于火焰喷涂涂层。结合图4a和4b中陶瓷层与粘接层界面形貌可知,等离子喷涂涂层界面处结合致密,无明显孔隙存在。分析认为,等离子喷涂粒子熔滴经历碰撞—铺展—收缩形成涂层时,粉末扁平铺展变形程度较火焰喷涂粉末粒子更大,有利于促进其与凹凸不平的粘接层表面充分接触、嵌合,增加粉末粒子与粘接层间结合率,继而影响涂层的拉伸强度。喷涂粉末粒子的状态影响涂层中粒子层间结合率的现象与王卫泽等人的研究结果^[15]相符。

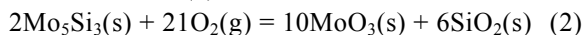
此外,等离子喷涂涂层断面整体较火焰喷涂断面更为平整,突起处更少(图4c和4d)。分析认为,喷涂涂层层间的结合主要以机械互锁为主,涂层从拉伸至断裂实际上是裂纹从涂层间的薄弱处产生至扩展的过程。断面中突起处是未熔粉末粒子,涂层的分离均出现在粒子交界处,这表明粒子交界处是涂层结合薄弱处,由粒子交界处断裂起始^[16]。在拉伸过程中,等离子喷涂涂层中粉末粒子充分熔化并扁平铺展,其组成的堆叠涂层结构有利于减少涂层从粉末粒子间分离的倾向,因而结合强度高于火焰喷涂涂层。

3.3 制备工艺对涂层高温氧化性能的影响

由喷涂涂层与高温氧化5h后涂层X射线衍射图谱(图6)可知,两种喷涂涂层中均以 MoSi_2 为主相,主相 t-MoSi_2 与 h-MoSi_2 衍射峰强度有所差异,相对四方相 t-MoSi_2 而言,六方相 h-MoSi_2 是由喷涂粉末熔滴撞击基体后以 10^6 K/s 快速凝固产生的^[17]。高温氧化5h后,等离子喷涂涂层仍以 MoSi_2 为主相,而火焰喷涂涂层的主相已转变为 Mo_5Si_3 且涂层中 SiO_2 与 MoO_3 衍射峰强度高于等离子喷涂涂层。根据涂层中的氧化产物推断,氧化过程中 MoSi_2 涂层发生如下化学反应^[18]:



的 Mo_5Si_3 和反应式(1)中的 Mo_5Si_3 参与氧化反应:



火焰喷涂涂层中,未熔粉末粒子的错乱堆叠致使涂层内部存在较多的粗大孔隙(图3a和3c),结合EDS能谱结果,O元素分布于孔隙处并在孔隙处大量富集。由于孔隙处具有更低的氧分压^[19],导致内部大量闭合的粗大孔隙成为氧气隐藏的场所,同时,Si元素在孔隙处缺失,此现象致使孔隙周围难以形成连续熔融的保护性 SiO_2 。因为火焰喷涂涂层较等离子喷涂涂层氧化更为剧烈,从而造成火焰喷涂涂层中 Mo_5Si_3 与 SiO_2 衍射峰强度高于等离子喷涂涂层。此外, MoO_3 在 800°C 开始挥发^[20],而火焰喷涂涂层中仍存在 MoO_3 ,表明火焰喷涂涂层在降温过程中发生如下氧化反应:



此低温氧化反应由Mo、Si选择性氧化主导^[21],是造成火焰喷涂涂层出现粉化现象的原因(如图5a所示)。

等离子喷涂涂层具备致密的层状结构,涂层中无明显孔隙。EDS能谱表明,涂层中未出现O元素富集的现象,同时,均匀分布的Si元素(图3d)有利于 MoSi_2 与 O_2 反应形成连续的 SiO_2 ,涂层氧化倾向小。由此说明粉末充分熔化铺展形成的致密涂层结构可以有效避免“PEST”粉化现象的产生,减少涂层的氧化倾向。

由图7高温氧化25h后涂层的形貌可知,由于火焰喷涂涂层氧化初期出现一定程度的粉化现象,在涂层持续氧化过程中,O元素易进入涂层内部加剧氧化,致使其出现大量裂纹及局部剥落(如图7a所示),涂层保护性能下降。等离子喷涂涂层中的裂纹被物质填充(如图7b所示),结合EDS结果,表明填充物为 SiO_2 ,说明涂层氧化过程中熔融的 SiO_2 对裂纹进行了填补封堵。由于 SiO_2 封堵了涂层中的裂纹,外界氧气在 SiO_2 层中的扩散率低^[22],阻断了氧原子向涂层内部扩散的通道,因此等离子喷涂涂层具有良好的抗氧化性能。

4 结论

1) 等离子喷涂 $\text{MoSi}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ 涂层中,喷涂粉末熔化程度、元素分布均匀程度及涂层结构均优于火焰喷涂涂层。

2) 等离子喷涂 $\text{MoSi}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ 涂层的结合强度为 24.25 MPa ,较火焰喷涂涂层提高了约68%。

3) 经 1200°C 高温氧化,较高的氧化速率造成火焰喷涂涂层粉化并剥落。等离子喷涂中 SiO_2 对涂层裂纹进行有效填补,阻碍氧原子向涂层内部扩散,涂层氧化速率低且未出现粉化现象,高温抗氧化性能优异。

参考文献:

- [1] SUN S P, LI X P, WANG H J, et al. Prediction on Anisotropic Elasticity, Sound Velocity, and Thermodynamic Properties of MoSi_2 under Pressure[J]. *Journal of Alloys & Compounds*, 2015, 652(12): 106-115.
- [2] HUANG L P, NIU Y R, LI H, et al. Ablation Behavior of Low Pressure Plasma Sprayed $\text{TiB}_2\text{-MoSi}_2$ Composite Coatings[J]. *Key Engineering Materials*, 2016, 697: 685-688.
- [3] 肖来荣, 蔡志刚, 易丹青, 等. MoSi_2 涂层的组织结构与高温抗氧化性能[J]. *中国有色金属学报*, 2006, 16(6): 1028-1033.
XIAO Lai-rong, CAI Zhi-gang, YI Dan-qing, et al. Histology and High-temperature Oxidation Resistance of Molybdenum Disilicide Coating[J]. *The Chinese Journal of Nonferrous Metals*, 2006, 16(6): 1028-1033.
- [4] FU Q, ZOU X, CHU Y, et al. A Multilayer $\text{MoSi}_2\text{-SiC-B}$ Coating to Protect SiC-coated Carbon/Carbon Composites against Oxidation[J]. *Vacuum*, 2012, 86(12): 1960-1963.
- [5] 侯党社, 李克智, 李贺军, 等. C/C 复合材料 $\text{SiC-TaSi}_2/\text{MoSi}_2$ 抗氧化复合涂层研究[J]. *金属学报*, 2008, 44(3): 331-335.
HOU Dang-she, LI Ke-zhi, LI He-jun, et al. Study of the SiC-TaSi₂/MoSi₂ Multilayer Oxidation Protective Coating for Carbon/Carbon Composite[J]. *Acta Metallurgica Sinica*, 2008, 44(3): 331-335.
- [6] YAN J H, WANG Y, LIU L F, et al. Oxidation and Interdiffusion Behavior of Niobium Substrate Coated MoSi_2 , Coating Prepared by Spark Plasma Sintering[J]. *Applied Surface Science*, 2014, 320: 791-797.
- [7] YOON J K, LEE J K, BYUN J Y, et al. Effect of Ammonia Nitridation on the Microstructure of MoSi_2 Coatings Formed by Chemical Vapor Deposition of Si on Mo Substrates[J]. *Surface and Coatings Technology*, 2002, 160(1): 29-37.
- [8] XIONG D, KE P, ZHOU W Y, et al. Salt Pack Cementation Synthesis of $\text{MoSi}_2\text{-SiC}$ Composite Coating on Graphite Surface at Mid-temperature[J]. *Materials Science & Engineering of Powder Metallurgy*, 2014, 19(1): 89-94.
- [9] MAO J Y, LIU M, MAO J, et al. Oxidation-resistance of $\text{ZrB}_2\text{-MoSi}_2$ Composite Coatings Prepared by Atmospheric Plasma Spraying[J]. *Journal of Inorganic Materials*, 2015, 30(3): 282-286.
- [10] WANG Y Q, HUANG J F, CAO L Y, et al. $\text{Y}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ Whisker Reinforced MoSi_2 Multi-composition Coating for SiC Pre-coated Carbon/Carbon Composites[J]. *Advanced Composite Materials*, 2011, 20(2): 125-132.
- [11] PANG J, WANG W, ZHOU C. Microstructure Evolution and Oxidation Behavior of B Modified MoSi_2 Coating on Nb-Si Based Alloys[J]. *Corrosion Science*, 2016, 105: 1-7.
- [12] ZHANG H, GU S. Preparation and Oxidation Behavior of $\text{MoSi}_2\text{-CrSi}_2\text{-Si}_3\text{N}_4$, Composite Coating on Mo Substrate[J]. *International Journal of Refractory Metals & Hard Materials*, 2013, 41(11): 128-132.
- [13] KÖBEL S, PLÜSCHKE J, VOGT U, et al. $\text{MoSi}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$, Electroconductive Ceramic Composites[J]. *Ceramics International*, 2004, 30(8): 2105-2110.
- [14] FEI X A, NIU Y R, JI H, et al. Oxidation Behavior of Al_2O_3 Reinforce MoSi_2 Composite Coatings Fabricated by Vacuum Plasma Spraying[J]. *Ceramics International*, 2010, 36: 2235-2239.
- [15] 王卫泽, 李长久. 热喷涂涂层的结构及其表征[J]. *材料保护*, 2006, 39(11): 43-47.
WANG Wei-ze, LI Chang-jiu. Structure and Characterization of Thermal Spray Coating[J]. *Materials Protection*, 2006, 39(11): 43-47.
- [16] 邹慧, 王志平, 纪朝辉. Ni-Cr-Al 合金电弧喷涂工艺对涂层结合强度的影响[J]. *金属热处理*, 2010, 35(2): 51-54.
ZOU Hui, WANG Zhi-ping, JI Chao-hui. Influence of Arc Spraying Process on Adhesive Strength of Ni-Cr-Al Alloy Coating[J]. *Heat Treatment of Metals*, 2010, 35(2): 51-54.
- [17] WANG Y, WANG D, YAN J, et al. Preparation and Characterization of Molybdenum Disilicide Coating on Molybdenum Substrate by Air Plasma Spraying[J]. *Applied Surface Science*, 2013, 284(11): 881-888.
- [18] 颜建辉, 王金林, 唐思文. TiC- MoSi_2 复合材料原位合成及其低温氧化特性[J]. *材料热处理学报*, 2011, 32(1): 5-9.
YAN Jian-hui, WANG Jin-lin, TANG Si-wen, et al. In-suit Synthesis and Low Temperature Oxidation Properties of TiC- MoSi_2 Composites[J]. *Transaction of Materials and Heat Treatment*, 2011, 32(1): 5-9.
- [19] ZHANG Y, LI Y, BAI C. Microstructure and Oxidation Behavior of Si- MoSi_2 , Functionally Graded Coating on Mo Substrate[J]. *Ceramics International*, 2017, 43(8): 6250-6256.
- [20] WANG L, FU Q G, ZHAO F L. A Novel Gradient SiC-ZrB₂- MoSi_2 , Coating for SiC Coated C/C Composites by Supersonic Plasma Spraying[J]. *Surface & Coatings Technology*, 2017, 313: 63-72.
- [21] KNITTEL S, MATHIEU S, VILASI M. The Oxidation Behaviour of Uniaxial Hot Pressed MoSi_2 in Air from 400 to 1400 °C[J]. *Intermetallics*, 2011, 19(8): 1207-1215.
- [22] FU Q G, JING J Y, LI H J, et al. Design of an Inlaid Interface Structure to Improve the Oxidation Protective Ability of SiC- $\text{MoSi}_2\text{-ZrB}_2$, Coating for C/C Composites[J]. *Ceramics International*, 2015, 42(3): 4212-4220.