

$(\text{Sm}_{0.2}\text{Gd}_{0.2}\text{Dy}_{0.2}\text{Y}_{0.2}\text{Yb}_{0.2})_3\text{TaO}_7$ 高熵陶瓷的制备及热物理性能

桑玮玮^{1,2}, 张红松², 陈华辉¹, 温斌², 李新春²

(1. 中国矿业大学(北京) 机电与信息工程学院, 北京 100083; 2. 河南工程学院 机械工程学院, 郑州 450019)

摘要: 寻求具有良好热物理性能的新型陶瓷材料是热障涂层领域的研究热点之一。本研究采用固相反应法制备了 $(\text{Sm}_{0.2}\text{Gd}_{0.2}\text{Dy}_{0.2}\text{Y}_{0.2}\text{Yb}_{0.2})_3\text{TaO}_7$ 高熵陶瓷材料, 对其晶体结构、显微组织、元素分布、结构稳定性和热物理性能进行了研究。结果表明: 制备的高熵陶瓷具有单一的缺陷萤石结构, 元素分布均匀, 晶粒尺寸在 0.2~3 μm 之间。经高温循环热处理后依然保持单一的萤石结构, 表现出良好的高温结构稳定性。25~800 $^\circ\text{C}$ 范围内热导率为 0.72~0.74 $\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$, 远低于 7YSZ, 1200 $^\circ\text{C}$ 下的热膨胀系数约为 $5.6\times 10^{-6} \text{K}^{-1}$, 低于热障涂层(TBCs)对表面陶瓷层材料的要求, 但与环境障涂层(EBCs)硅基陶瓷基体的热膨胀系数($(3.4\sim 5.5)\times 10^{-6} \text{K}^{-1}$)接近。

关键词: 高熵陶瓷; 热障涂层; 热导率; 热膨胀系数

中图分类号: TQ174 文献标识码: A

Preparation and Thermophysical Properties of $(\text{Sm}_{0.2}\text{Gd}_{0.2}\text{Dy}_{0.2}\text{Y}_{0.2}\text{Yb}_{0.2})_3\text{TaO}_7$ High-entropy Ceramic

SANG Weiwei^{1,2}, ZHANG Hongsong², CHEN Huahui¹, WEN Bin², LI Xinchun²

(1. School of Mechanical Electronic & Information Engineering, China University of Mining & Technology-Beijing, Beijing 10083, China; 2. College of Mechanical Engineering, Henan University of Engineering, Zhengzhou 451191, China)

Abstract: Developing novel ceramic materials with excellent thermophysical properties is one of the hotspots in the field of thermal barrier coatings. The $(\text{Sm}_{0.2}\text{Gd}_{0.2}\text{Dy}_{0.2}\text{Y}_{0.2}\text{Yb}_{0.2})_3\text{TaO}_7$ high-entropy ceramic was fabricated *via* high-temperature solid-state reaction. The crystal structure, microstructure, phase stability and thermophysical properties were investigated. Results indicate that $(\text{Sm}_{0.2}\text{Gd}_{0.2}\text{Dy}_{0.2}\text{Y}_{0.2}\text{Yb}_{0.2})_3\text{TaO}_7$ high-entropy ceramic has single defective fluorite structure, its elements are homogenously distributed, its grain size ranges from 0.2 to 3 μm . After high-temperature thermal cycling, the sample still remains single fluorite structure, showing excellent phase stability at high temperature. Thermal conductivity lies in the range of 0.72~0.74 $\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$, lower than that of 7YSZ. Thermal expansion coefficient at 1200 $^\circ\text{C}$ is $5.6\times 10^{-6} \text{K}^{-1}$, lower than requirement of thermal barrier coatings (TBCs) for surface ceramic layer. However, its thermal expansion coefficient is close to that of the silicon-based ceramics substrate of environmental barrier coatings (EBCs) ($(3.4\sim 5.5)\times 10^{-6} \text{K}^{-1}$).

Key words: high-entropy ceramic; thermal-barrier coating; thermal conductivity; thermal expansion coefficient

收稿日期: 2020-08-24; 收到修改稿日期: 2020-10-05; 网络出版日期: 2020-11-02

基金项目: 河南省高校科技创新团队(18IRTSHN005); 河南省高等学校重点科研项目(20A5600008)

Henan Province University Scientific and Technological Innovation Team (18IRTSHN005); Key Project of Science and Technology Research at Henan Province Department of Education (20A5600008)

作者简介: 桑玮玮(1982-), 女, 博士研究生, 讲师. E-mail: lyft0602@126.com

SANG Weiwei(1982-), female, PhD candidate, lecturer. E-mail: lyft0602@126.com

通信作者: 张红松, 教授. E-mail: zhsandchen@126.com

ZHANG Hongsong, professor. E-mail: zhsandchen@126.com

在燃气轮机叶片等高温端部件涂覆热障涂层(TBCs)可以有效屏蔽高温燃气,显著提高发动机的热效率和工作部件使用寿命,这是目前航空发动机必须处理的步骤之一。热障涂层表层用陶瓷材料由于直接接触复杂的服役环境,对整个热障涂层体系的热绝缘作用至关重要^[1-4]。热障涂层陶瓷材料必须具备高熔点(>2000 °C)、工作温度范围内无相变化、与基体材料相匹配的热膨胀系数(>9×10⁻⁶ K⁻¹)和低热导率(<2 W/(m·K))^[5-6]等典型特征。现役氧化钇部分稳定氧化锆((6~8)wt% Y₂O₃ stabilized zirconia, 简称 YSZ)涂层在 1200 °C 以上长期服役时易发生相变,产生约(3~5)%的体积膨胀,导致涂层大面积开裂剥落^[7-8]。因此,开发性能更加优异的替代材料迫在眉睫。

近几年来,RE₃TaO₇ 稀土钽酸盐以其优异的热物理性能,成为最具潜力的新型热障涂层陶瓷^[9-14],张昊明等^[9]发现 La₃TaO₇ 氧化物在 20~1200 °C 范围内的平均热导率仅为 1.12 W/(m·K),远低于 YSZ,1200 °C 的热膨胀系数为 11.5×10⁻⁶ K⁻¹,与镍基合金基体更加接近。陈琳等^[14]发现加入 TiO₂ 不仅可有效抑制 Sm₃TaO₇ 的高温相变,而且能够改善热膨胀系数和隔热性能,9mol% TiO₂-Sm₃TaO₇ 高温热导率低至 1.37 W/(m·K)。但这些材料的实际热导率与最低热导率模型的预测结果仍然存在明显差距,表明其热导率仍有较大降低空间。上述问题有可能通过形成高熵陶瓷(High-entropy ceramics, 简称 HECs)予以解决^[15-16]。

周延春等^[17-18]研究发现(La_{0.2}Ce_{0.2}Nd_{0.2}Sm_{0.2}Eu_{0.2})₂-Zr₂O₇ 高熵陶瓷的室温热导率为 0.76 W/(m·K),明显低于 YSZ(2.3 W/(m·K));(La_{0.2}Ce_{0.2}Nd_{0.2}Sm_{0.2}Eu_{0.2})₂PO₄ 的室温热导率比 LaPO₄ 低约 42%,其热膨胀系数均与 Al₂O₃ 相近,有可能发展为热障材料。张国军等^[19]研究表明多种 (5RE_{1/5})₂Zr₂O₇ 高熵陶瓷材料,在 300~1200 °C 范围内的热导率均低于 1 W/(m·K)。任晓敏等^[20]发现(Y_{0.25}Ho_{0.25}Er_{0.25}Yb_{0.25})₂SiO₅ 比单一组元稀土硅酸盐具有较低的热导率和良好的高温相稳定性,也是一种潜在的热障涂层用陶瓷材料。王一光等^[21]指出 (Sm_{0.2}Eu_{0.2}Tb_{0.2}Dy_{0.2}Lu_{0.2})₂Zr₂O₇ 与 RE₂Zr₂O₇、RE₂Sn₂O₇、REPO₄ 等相比具有更低的热导率,更高的热膨胀性能。赵子樊等^[22]发现 (Y_{1/3}Yb_{1/3}Er_{1/3})₃TaO₇ 和 (Sm_{1/6}Eu_{1/6}Y_{1/6}Yb_{1/6}Lu_{1/6}Er_{1/6})₃-(Nb_{1/2}Ta_{1/2})O₇ 高熵钽酸盐的热膨胀系数分别为 9.0×10⁻⁶ 和 7.9×10⁻⁶ K⁻¹,并且具有良好的相稳定性,但未研究其热导率。目前,稀土钽酸盐高熵陶瓷材料热物理性能的研究依然处于初步阶段。为此,本工作合成了 (Sm_{0.2}Gd_{0.2}Dy_{0.2}Y_{0.2}Yb_{0.2})₃TaO₇ 高熵陶瓷,并对其组织、相稳定性及热物理性能进行分析。

1 实验方法

1.1 原材料及制备

选用 Sm₂O₃、Gd₂O₃、Dy₂O₃、Y₂O₃、Yb₂O₃ 和 Ta₂O₅ 等高纯度(>99.9%)氧化物粉末为原料,先将原料在 1000 °C 下煅烧 2 h,除去氧化物中可能吸附的 H₂O 和 CO₂ 等杂质,再将精确称量的混合粉末置于玛瑙研钵中,以丙酮为分散剂充分研磨半小时,经压片和冷等静压处理后得到预制坯体,最后将预制坯体在 1600 °C 常压烧结 10 h,合成所需的致密块体材料。

1.2 样品表征

采用日本 Rigaku D/Max-2500 型 X 射线衍射仪和 Renishaw 公司的 inVia Reflex 激光显微拉曼光谱仪分析样品的相组成。

利用阿基米德排水法测量致密块体样品的实际密度 ρ ,材料的理论密度 ρ_0 (g·cm⁻³)根据晶体结构,由晶格常数和晶胞质量计算得出,其中晶格常数根据 XRD 图谱计算。材料的气孔率 φ 表示为:

$$\varphi = 1 - \frac{\rho}{\rho_0} \quad (1)$$

采用 Sigma 500 场发射扫描电子显微镜观察样品显微组织,并利用电镜自带的 EDS 电子能谱仪分析样品元素分布状况。

采用德国 Netzsch 公司的 STA449 F3 同步热分析仪进行差热失重分析。烧制成型样品先在 1000 °C 热处理 10 h(简称 1000-HT),分析其相组成;随后再进行 1600 °C 保温 10 h(以下简称 1000-1600-Cycle)的热循环处理,分析相组成变化规律。

采用德国耐驰 DIL 402C/7 热膨胀仪分析样品的热膨胀性能,样品尺寸为 25 mm×3 mm×4 mm。采用德国耐驰 LFA1000 型激光热导仪测量 200~800 °C 区间内的热扩散系数 λ ,样品尺寸为 ϕ 12.7 mm×1 mm。采用 Neumann-Kopp 定律计算 (Sm_{0.2}Gd_{0.2}Dy_{0.2}Y_{0.2}Yb_{0.2})₃TaO₇ 的比热。由样品的实际密度 ρ 、热扩散系数 λ 及比热 C_p ,依据方程(2)计算样品的热导率 k ^[23]:

$$k = C_p \cdot \lambda \cdot \rho \quad (2)$$

为了得到材料的本征热导率(k_0),用方程(3)对上式结果进行修正以排除气孔率的影响^[23]:

$$\frac{k}{k_0} = 1 - \frac{4}{3}\varphi \quad (3)$$

2 结果与讨论

2.1 相结构

$(\text{Sm}_{0.2}\text{Gd}_{0.2}\text{Dy}_{0.2}\text{Y}_{0.2}\text{Yb}_{0.2})_3\text{TaO}_7$ 陶瓷材料 XRD 图谱如图 1 所示。由图 1 可以看出, 合成高熵陶瓷的 XRD 图谱与 RE_3TaO_7 ($\text{RE}=\text{Sm}, \text{Gd}, \text{Dy}, \text{Y}, \text{Yb}$) 标准 PDF 卡基本一致。 RE_3TaO_7 ($\text{RE}=\text{Sm}, \text{Gd}, \text{Dy}, \text{Y}, \text{Yb}$) 的衍射峰随 RE^{3+} 离子半径的增大逐渐向小角度偏移, 合成的高熵陶瓷衍射峰位于五种单组分 RE_3TaO_7 之间, 与 Y_3TaO_7 的衍射峰几乎重合, 同时衍射峰发生宽化, 表明五种稀土元素在晶格中固溶良好, 等摩尔比形成的高构型熵促进了元素间相容性及固溶体的形成^[24], 从左至右 XRD 特征峰分别对应(111)、(200)、(220)、(311)、(222)、(400)、(331)、(420)晶面, 没有其他杂峰或第二相出现, 晶体结构为缺陷萤石结构, 表明成功合成了具有单一相的高熵陶瓷材料 $(\text{Sm}_{0.2}\text{Gd}_{0.2}\text{Dy}_{0.2}\text{Y}_{0.2}\text{Yb}_{0.2})_3\text{TaO}_7$ 。

图 2 对比了 $(\text{Sm}_{0.2}\text{Gd}_{0.2}\text{Dy}_{0.2}\text{Y}_{0.2}\text{Yb}_{0.2})_3\text{TaO}_7$ 陶瓷材料线性均布 6 点拉曼光谱与 Sm_3TaO_7 的拉曼光谱。由图 2 可知, 制备的高熵陶瓷与 Sm_3TaO_7 的拉曼振动模式一一对应, 室温下至少存在 6 个振动峰, 无其他振动模式出现, 高构型熵的晶格畸变增加了晶体结构中原子平面的粗糙度^[21], 导致 Ta-O 键的

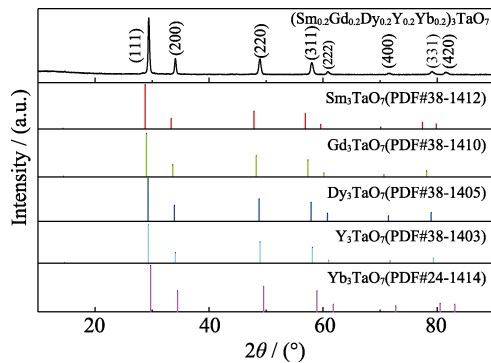


图 1 $(\text{Sm}_{0.2}\text{Gd}_{0.2}\text{Dy}_{0.2}\text{Y}_{0.2}\text{Yb}_{0.2})_3\text{TaO}_7$ 的 XRD 图谱
Fig. 1 XRD patterns of $(\text{Sm}_{0.2}\text{Gd}_{0.2}\text{Dy}_{0.2}\text{Y}_{0.2}\text{Yb}_{0.2})_3\text{TaO}_7$

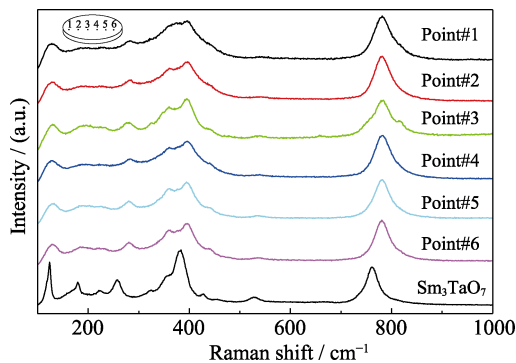


图 2 $(\text{Sm}_{0.2}\text{Gd}_{0.2}\text{Dy}_{0.2}\text{Y}_{0.2}\text{Yb}_{0.2})_3\text{TaO}_7$ 的拉曼图谱
Fig. 2 Raman spectra of $(\text{Sm}_{0.2}\text{Gd}_{0.2}\text{Dy}_{0.2}\text{Y}_{0.2}\text{Yb}_{0.2})_3\text{TaO}_7$

平均距离发生了变化, 致使在 750 cm^{-1} 处的 Ta-O-Ta 振动峰发生偏移, 在 $100\sim 400\text{ cm}^{-1}$ 范围内出现峰值的降低和宽化。从图 2 还可以看到制备圆形块体样品从左至右 6 个不同位置的拉曼振动峰的峰形保持一致, 表明合成的高熵陶瓷也具有单一萤石晶体结构^[14], 这与 XRD 图谱的分析结果一致。

2.2 显微组织及元素分布

图 3 为 $(\text{Sm}_{0.2}\text{Gd}_{0.2}\text{Dy}_{0.2}\text{Y}_{0.2}\text{Yb}_{0.2})_3\text{TaO}_7$ 陶瓷材料的微观组织与 EDS 元素面扫描结果。由图 3 可知, 晶界清晰且光滑干净, 不存在其它杂相或未反应的氧化物, 结构比较致密, 致密度达到 87.92%, 晶粒较小但分布不均匀, 大小在 $0.2\sim 3\mu\text{m}$ 之间。通过 EDS 元素面扫描可知各元素在样品表面分布相对均匀, 无明显偏析现象, 稀土元素 RE ($\text{RE}=\text{Sm}, \text{Gd}, \text{Dy}, \text{Y}, \text{Yb}$) 在样品表面的原子百分含量分别为 5.23%、5.06%、4.87%、5.37%、4.96%, 五种主元素摩尔比例接近 1:1:1:1:1, 与化学式基本一致, 说明高熵陶瓷材料在合成过程中各元素固溶均匀, 未出现成分偏析与元素富集区, 且无第二相出现, 同 XRD 和拉曼结果一致。

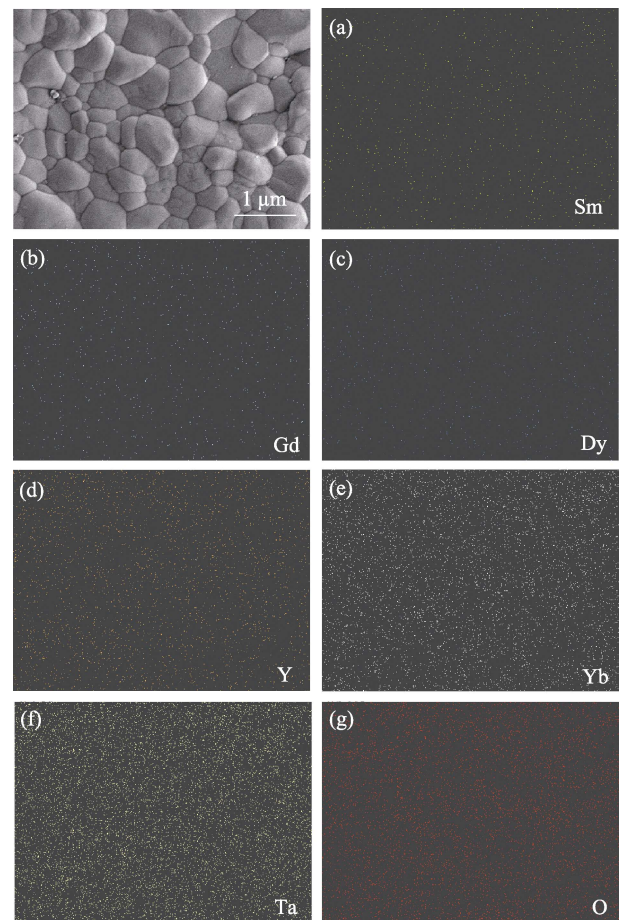


图 3 $(\text{Sm}_{0.2}\text{Gd}_{0.2}\text{Dy}_{0.2}\text{Y}_{0.2}\text{Yb}_{0.2})_3\text{TaO}_7$ 的 SEM 与 EDS 面扫描
Fig. 3 SEM image and EDS mappings of $(\text{Sm}_{0.2}\text{Gd}_{0.2}\text{Dy}_{0.2}\text{Y}_{0.2}\text{Yb}_{0.2})_3\text{TaO}_7$

2.3 高温相稳定性

图 4 为 $(\text{Sm}_{0.2}\text{Gd}_{0.2}\text{Dy}_{0.2}\text{Y}_{0.2}\text{Yb}_{0.2})_3\text{TaO}_7$ 高熵陶瓷材料在 50~1200 °C 范围的热重-差热分析, 升温过程中 TGA 曲线十分平滑, 同时 DSC 没有明显的吸热峰与放热峰, 表明制备的高熵陶瓷在室温~1200 °C 范围内具有良好的相结构稳定性。

图 5 为 $(\text{Sm}_{0.2}\text{Gd}_{0.2}\text{Dy}_{0.2}\text{Y}_{0.2}\text{Yb}_{0.2})_3\text{TaO}_7$ 高熵陶瓷经 1000 °C 重新煅烧, 以及 1000~1600 °C 热循环之后的 XRD 及拉曼图谱。通过对比可知, 采用 1000 °C 低温煅烧保温后, 衍射峰位置及拉曼振动模式保持不变; 低温煅烧样品再经过 1000-1600-Cycle 热循环处理后, 相结构依然保持单相萤石结构, 这与热重-差热分析结果一致。再次表明, 制备的高熵陶瓷的构型熵有利于形成单相, 低温热处理及高温热循环后均未发生相变, 对于改善热障涂层的结构稳定性十分有利。

2.4 热物理性能

图 6 为 $(\text{Sm}_{0.2}\text{Gd}_{0.2}\text{Dy}_{0.2}\text{Y}_{0.2}\text{Yb}_{0.2})_3\text{TaO}_7$ 高熵陶瓷材料在不同温度下与其他常见热障涂层用陶瓷材料的热物理性能对比。由图 6(a)可知, 制备的高熵陶瓷的比热在 25~800 °C 范围为 0.32~0.41 J/(K·g), 低

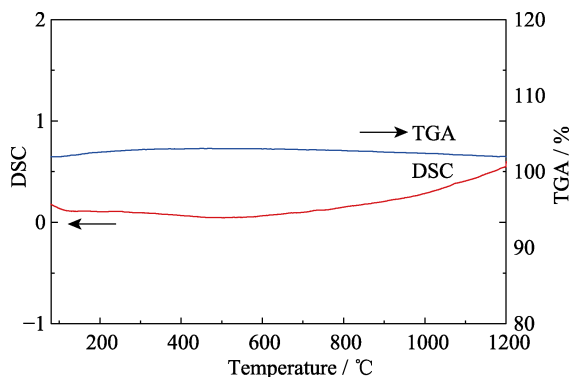


图 4 $(\text{Sm}_{0.2}\text{Gd}_{0.2}\text{Dy}_{0.2}\text{Y}_{0.2}\text{Yb}_{0.2})_3\text{TaO}_7$ 的 DSC 和 TGA 曲线
Fig. 4 DSC and TGA curves of $(\text{Sm}_{0.2}\text{Gd}_{0.2}\text{Dy}_{0.2}\text{Y}_{0.2}\text{Yb}_{0.2})_3\text{TaO}_7$

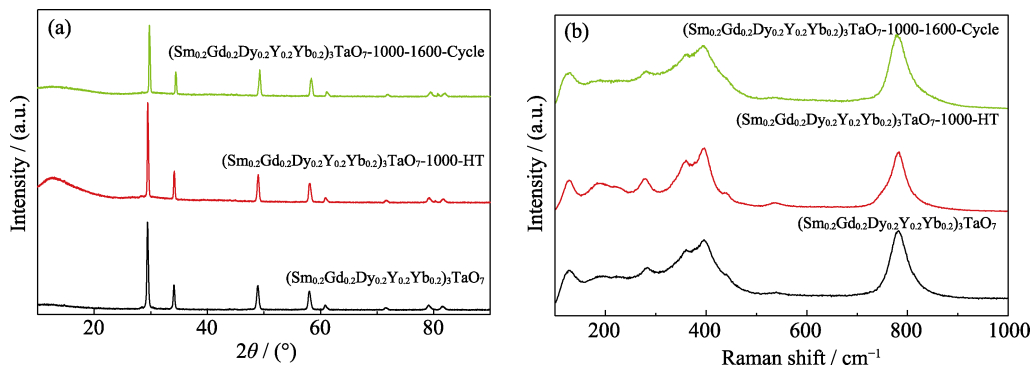


图 5 $(\text{Sm}_{0.2}\text{Gd}_{0.2}\text{Dy}_{0.2}\text{Y}_{0.2}\text{Yb}_{0.2})_3\text{TaO}_7$ 热处理前后的 XRD 和 Raman 对比图谱

Fig. 5 Comparison of XRD patterns and Raman spectra of $(\text{Sm}_{0.2}\text{Gd}_{0.2}\text{Dy}_{0.2}\text{Y}_{0.2}\text{Yb}_{0.2})_3\text{TaO}_7$ before and after thermal cycling

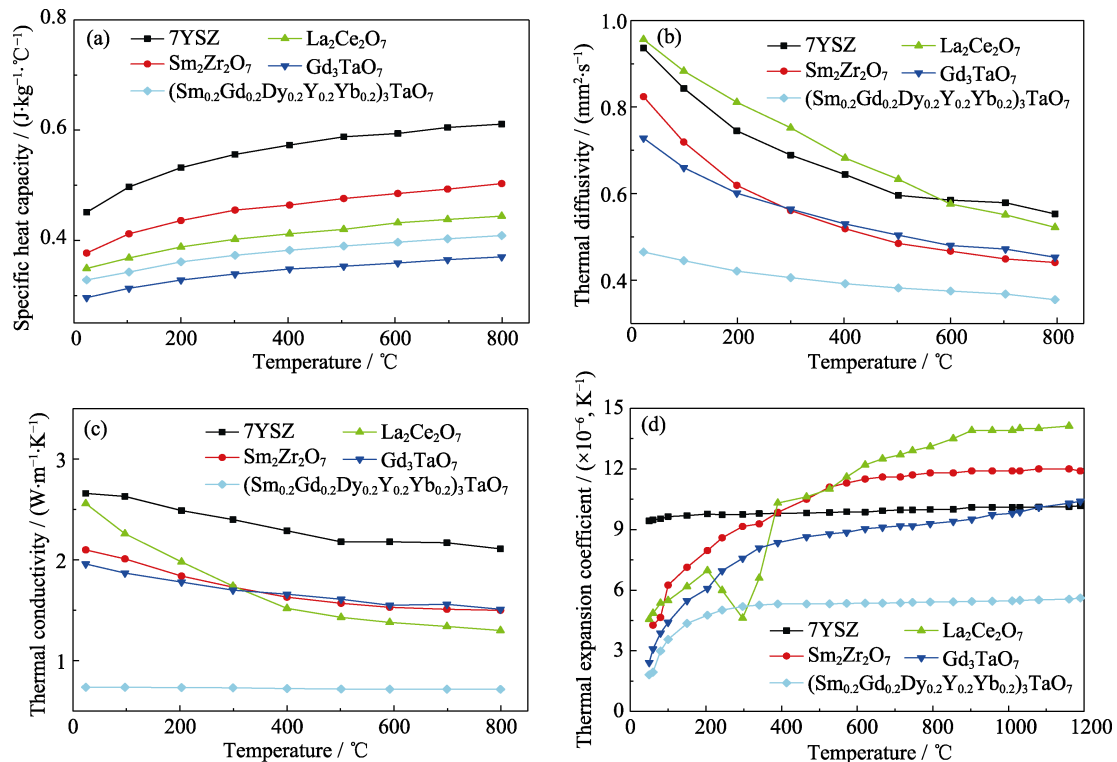
于同温度下 7YSZ、 $\text{Sm}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ 和 $\text{La}_2\text{Ce}_2\text{O}_7$, 却高于同温度下 Gd_3TaO_7 , 原因在于高熵陶瓷原料中的 RE_2O_3 (RE=Sm、Dy、Yb) 比热在同温度下均高于 Gd_2O_3 , 等摩尔比混合制备成高构型熵的高熵陶瓷后, 通过 Neumann-Kopp 定律计算得到比热高于同温度下 Gd_3TaO_7 。由图 6(b, c)可知, 图中五种材料的热扩散系数与热导率均随温度升高而降低, 表现出声子导热机制^[11], 制备的高熵陶瓷的热扩散系数与热导率最低, 且变化趋势平缓, 对温度的敏感度与依赖性降低, 尤其热导率在 25~800 °C 范围内, 基本维持在 0.72~0.74 W/(m·K), 远低于 7YSZ。由公式(4, 5)可知, 声子的散射率同掺入原子与基质原子质量差(ΔM)的平方、离子间距变化(ΔR)的平方、点缺陷浓度(c)成反比^[25]。高熵陶瓷中多组元阳离子在晶体结构中随机分布在晶格点阵中^[19], $(\text{Sm}_{0.2}\text{Gd}_{0.2}\text{Dy}_{0.2}\text{Y}_{0.2}\text{Yb}_{0.2})_3\text{TaO}_7$ 晶格中不同原子质量、不同原子半径的稀土元素相互掺杂, 引起 ΔM 、 ΔR 、 c 的增大, 使晶格的非线性振动增强, 从而减小声子的平均自由程, 进一步加剧声子间的散射作用, 导致热导率较低。

$$\frac{1}{\tau_{\Delta M}(\omega)} = \frac{c\alpha^3\omega^4}{4\pi v^3} \left(\frac{\Delta M}{M}\right)^2 \quad (4)$$

$$\frac{1}{\tau_{\Delta R}(\omega)} = \frac{2c\alpha^3\omega^4}{\pi v^3} J^2 \gamma^2 \left(\frac{\Delta R}{R}\right)^2 \quad (5)$$

其中, τ 是弛豫时间, α^3 是原子体积, v 是横波速度, ω 是声子频率, c 是点缺陷数浓度, J 是常数, γ 为 Grüneisen 常数, M 、 R 分别为平均原子质量和原子半径。

由图 6(d)可知, 50~1200 °C 范围内, 五种陶瓷材料的热膨胀系数随温度升高而增大, 热膨胀系数与原子间距成正比, 这是因为温度升高会增大原子间距, 从而使热膨胀系数随温度升高而增大。其中制备的高熵陶瓷在 1200 °C 的热膨胀系数为 $5.6 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$, 远低于 7YSZ、 $\text{Sm}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ 、 $\text{La}_2\text{Ce}_2\text{O}_7$ 及

图6 $(\text{Sm}_{0.2}\text{Gd}_{0.2}\text{Dy}_{0.2}\text{Y}_{0.2}\text{Yb}_{0.2})_3\text{TaO}_7$ 的热物理性能Fig. 6 Thermophysical properties of $(\text{Sm}_{0.2}\text{Gd}_{0.2}\text{Dy}_{0.2}\text{Y}_{0.2}\text{Yb}_{0.2})_3\text{TaO}_7$

(a) Specific heat capacity; (b) Thermal diffusivity; (c) Thermal conductivity; (d) Thermal expansion coefficient

Gd_3TaO_7 的热膨胀系数。材料的热膨胀系数与晶格能成反比, 制备的高熵陶瓷中阳离子半径较小的 Gd^{3+} 、 Dy^{3+} 、 Y^{3+} 、 Yb^{3+} 对大离子半径 Sm^{3+} 的掺杂, 使陶瓷材料的离子间距减小, 晶格能增加, 热膨胀系数降低^[9]。同时多主元形成的高构型熵产生的严重晶格畸变阻碍了组成原子的振幅振荡, 在一定程度上抑制了晶格能的降低, 致使制备的高熵陶瓷高温热膨胀系数相对较低^[22]。制备的高熵陶瓷高温下较低的热膨胀系数与热障涂层的超合金基体的热膨胀系数($(14\sim 17)\times 10^{-6}\text{K}^{-1}$)^[26]差距较大, 增加了热障涂层剥落的风险, 但却与环境障涂层的 Si_3N_4 、 SiC_f/SiC 等基体的热膨胀系数($(3.4\sim 5.5)\times 10^{-6}\text{K}^{-1}$)比较接近^[27]。

3 结论

- 1) 采用固相反应法成功合成了具有单一相、元素分布均匀的 $(\text{Sm}_{0.2}\text{Gd}_{0.2}\text{Dy}_{0.2}\text{Y}_{0.2}\text{Yb}_{0.2})_3\text{TaO}_7$ 高熵陶瓷, 高构型熵有利于元素间的相容性、单相的形成与稳定;
- 2) 低温热处理及高温热循环前后, 相结构未发生改变, 始终保持萤石结构, 高温相稳定性优异;
- 3) $(\text{Sm}_{0.2}\text{Gd}_{0.2}\text{Dy}_{0.2}\text{Y}_{0.2}\text{Yb}_{0.2})_3\text{TaO}_7$ 具有更低的热导率($0.72\sim 0.74\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$, $25\sim 800\text{ }^\circ\text{C}$)以及与硅基陶瓷材料接近的热膨胀系数($5.6\times 10^{-6}\text{K}^{-1}$, $1200\text{ }^\circ\text{C}$), 综合热物理性能优异。

参考文献:

- [1] KUMAR V, BALASUBRAMANIAN K. Progress update on failure mechanisms of advanced thermal barrier coatings: a review. *Progress in Organic Coatings*, 2016, **90**: 54–82.
- [2] DAROLIA R. Thermal barrier coatings technology: critical review, progress update, remaining challenges and prospects. *International Materials Reviews*, 2013, **58**(6): 315–348.
- [3] CHENG XIAO-GE, ZHANG HONG-SONG, LIU YAN-XU, *et al.* Thermal properties of $\text{RE}_2\text{AlTaO}_7$ (RE=Gd and Yb) oxide. *Ceramics International*, 2018, **44**(9): 10762–10765.
- [4] LI CHUANG, ZHANG YI, HU DING-YU, *et al.* Effects of thermal barrier ceramic coating materials on diesel engine piston. *Surface Technology*, 2017, **46**(2): 149–153.
- [5] LIU QIAO-MU, HUANG SHUN-ZHOU, HE AI-JIE, *et al.* Composite ceramics thermal barrier coatings of yttria stabilized zirconia for aero-engines. *Journal of Materials Science & Technology*, 2019, **35**(12): 2814–2823.
- [6] LI GUANG-RONG, XIE HUA, YAN GGUAN-JUN, *et al.* A comprehensive sintering mechanism for TBCs- part II: multiscale multipoint interconnection-enhanced initial kinetics. *Journal of the American Ceramic Society*, 2017, **100**(9): 4240–4251.
- [7] ZHANG HONG-SONG, TONG YU-PING, YANG XIAN-FENG, *et al.* Synthesis and thermophysical performances of complex $\text{Ca}_3\text{Ln}_3\text{Ti}_7\text{Ta}_2\text{O}_{26.5}$ (Ln=Dy and Er) oxide. *Ceramics International*, 2020, **46**(3): 2862–2867.
- [8] LIU ZHOU-YANG, YU JIN-XIN, LI QIANG. Finite element simulation of ceramic layer/TGO interfacial crack on thermal barrier coating. *Surface technology*, 2017, **46**(7): 70–76.
- [9] ZHANG HAO-MING, YAN FENG, CHEN XIAO-GE, *et al.* Thermal properties of La_3TaO_7 and $\text{La}_2\text{AlTaO}_7$ oxides. *Ceramics International*, 2017, **43**(1): 755–759.

- [10] WANG SHI-MIN, LI BIN, SUN DE-BING, *et al.* Thermal and mechanical performances of $\text{Nd}_2\text{LaTaO}_7$ oxide. *Ceramics International*, 2019, **45(8)**: 10718–10721.
- [11] CHEN XIAO-GE, TANG AN, ZHANG HONG-SONG, *et al.* Thermal conductivity and expansion coefficient of $\text{Ln}_2\text{LaTaO}_7$ ($\text{Ln}=\text{Er}$ and Yb) oxides for thermal barrier coating applications. *Ceramics International*, 2016, **42(12)**: 13491–13496.
- [12] WU FU-SHUO, WU PENG, CHEN LIN, *et al.* Structure and thermal properties of Al_2O_3 -doped Gd_3TaO_7 as potential thermal barrier coating. *Journal of the European Ceramic Society*, 2019, **39(6)**: 2210–2214.
- [13] CHEN LIN, WU PENG, SONG PENG, *et al.* Synthesis, crystal structure and thermophysical properties of $(\text{La}_{1-x}\text{Eu}_x)_3\text{TaO}_7$ ceramics. *Ceramics International*, 2018, **44(14)**: 16273–16281.
- [14] CHEN LIN, WU PENG, FENG JING. Optimization thermophysical properties of TiO_2 alloying Sm_3TaO_7 ceramics as promising thermal barrier coatings. *International Journal of Applied Ceramic Technology*, 2019, **16(1)**: 230–242.
- [15] ROST C M, SACHET E, BORMAN T, *et al.* Entropy-stabilized oxides. *Nature Communications*, 2015, **6(1)**: 8485–8485.
- [16] YEH JIEN-WEI, CHANG SHOU-YI, HONG YU-DER, *et al.* Anomalous decrease in X-ray diffraction intensities of Cu-Ni-Al-Co-Cr-Fe-Si alloy systems with multi-principal elements. *Materials Chemistry and Physics*, 2007, **103(1)**: 41–46.
- [17] ZHAO ZI-FAN, XIANG HUI-MIN, PENG ZHI-JIAN, *et al.* $(\text{La}_{0.2}\text{Ce}_{0.2}\text{Nd}_{0.2}\text{Sm}_{0.2}\text{Eu}_{0.2})_2\text{Zr}_2\text{O}_7$: a novel high-entropy ceramic with low thermal conductivity and sluggish grain growth rate. *Journal of Materials Science & Technology*, 2019, **35(11)**: 2647–2651.
- [18] ZHAO ZI-FAN, XIANG HUI-MIN, DAI FU-ZHI, *et al.* $(\text{La}_{0.2}\text{Ce}_{0.2}\text{Nd}_{0.2}\text{Sm}_{0.2}\text{Eu}_{0.2})_2\text{PO}_4$: a high entropy rare-earth phosphate monazite ceramic with low thermal conductivity and good compatibility with Al_2O_3 . *Journal of Materials Science & Technology*, 2019, **35(12)**: 2892–2896.
- [19] LI FEI, ZHOU LIN, LIU JI-XUAN, *et al.* High-entropy pyrochlores with low thermal conductivity for thermal barrier coating materials. *Journal of Advanced Ceramics*, 2019, **8(4)**: 576–582.
- [20] REN XIAO-MIN, TIAN ZHI-LIN, ZHANG JIE, *et al.* Equiatomic quaternary $(\text{Y}_{1/4}\text{Ho}_{1/4}\text{Er}_{1/4}\text{Yb}_{1/4})_2\text{SiO}_5$ silicate: a perspective multifunctional thermal and environmental barrier coating material. *Scripta Materialia*, 2019, **168(15)**: 47–50.
- [21] REN KE, WANG QIAN-KUN, SHAO GANG, *et al.* Multicomponent high-entropy zirconates with comprehensive properties for advanced thermal barrier coating. *Scripta Materialia*, 2020, **178(15)**: 382–386.
- [22] ZHAO ZI-FAN, CHEN HENG, XIANG HUI-MIN, *et al.* High entropy defective fluorite structured rare-earth niobates and tantalates for thermal barrier applications. *Journal of Advanced Ceramics*, 2020, **9(3)**: 303–311.
- [23] WANG CHANG-AN, LU HAO-RAN, HUANGZE-YA, *et al.* Enhanced anti-deliquestent property and ultralow thermal conductivity of magnetoplumbite-type $\text{LnMeAl}_{11}\text{O}_{19}$ materials for thermal barrier coating. *Journal of the American Ceramic Society*, 2018, **101(3)**: 1095–1104.
- [24] GU JUN-FENG, ZOU JI, ZHANG FAN, *et al.* Research progress in high entropy ceramic materials. *Materials China*, 2019, **38(9)**: 855–865, 886.
- [25] WU JIE, WEI XUE-ZHENG, PADTURE N P, *et al.* Low-thermal conductivity rare earth zirconates for potential thermal barrier coating applications. *Journal of the American Ceramic Society*, 2002, **85(12)**: 3031–3035.
- [26] SANG WEI-WEI, YANG SHU-SEN, KANG YU, *et al.* Numerical simulation of thermal shock stress of $\text{Sm}_2\text{Ce}_2\text{O}_7$ thermal barrier coatings with different matrix materials. *China Ceramics*, 2020, **56(2)**: 45–51.
- [27] ARAI Y, INOUE R. Detection of small delamination in mullite/Si/SiC model EBC system by pulse thermography. *Journal of Advanced Ceramics*, 2019, **8(3)**: 438–447.