

## Ti<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub>-64vol%SiC 复相陶瓷高温氧化机理研究

唐会毅, 朱德贵, 刘 博, 孙红亮

(西南交通大学材料先进技术教育部重点实验室, 成都 610031)

**摘要:** 采用热等静压原位合成了高致密的 Ti<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub>-64vol%SiC 复相陶瓷。通过热重实验研究其在 1100~1450℃ 中空气气氛的高温氧化行为和机理。研究显示, 复相陶瓷的等温动力学曲线遵循抛物线型氧化或抛物线型-直线型氧化规律。SiC (64vol%) 的引入显著提高了 Ti<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub>-SiC 材料的抗氧化能力。XRD 及 SEM-EDS 分析显示, 氧化膜由外层金红石型 TiO<sub>2</sub> 和非晶态 SiO<sub>2</sub> 组成, 过渡层为 TiO<sub>2</sub> 与 SiO<sub>2</sub> 混合物。高温下 (1400℃), 非晶态 SiO<sub>2</sub> 的形成改变了 TiO<sub>2</sub> 膜的生长形态, 形成致密 TiO<sub>2</sub> 膜, 有效阻碍了氧的扩散。长时间氧化其抛物线速率常数比在 1200℃ 下氧化低一个数量级。材料在 1400℃ 下的抗氧化性能明显优于在 1200℃ 下的抗氧化性能。

**关键词:** Ti<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub>-64vol%SiC 复相陶瓷; 氧化机制; 扩散机理; 热等静压

**中图分类号:** TB332; TB383

**文献标识码:** A

## High Temperature Oxidation Mechanism of Ti<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub>-64vol%SiC Ceramics

TANG Hui-Yi, ZHU De-Gui, LIU Bo, SUN Hong-Liang

(Key Laboratory of Advanced Technologies of Materials, Ministry of Education, Southwest Jiaotong University, Chengdu 610031, China)

**Abstract:** Full dense Ti<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub>-64vol%SiC ceramics were successfully fabricated by *in situ* synthesis under hot isostatic pressing (HIP). The high temperature oxidation behaviors and mechanisms of the ceramics were studied by thermogravimetry tests (TG) at 1100-1450℃ in air. Testing results indicate the curves of isothermal kinetics of the ceramics obey parabolic oxidized law or parabolic-linear oxidized law. The addition of SiC (64vol%) efficiently improves the oxidation resistance of Ti<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub>-SiC ceramics. According to XRD and SEM-EDS results, the oxidized layers are composed of an outer layer of TiO<sub>2</sub> (rutile) and SiO<sub>2</sub> (glass), and a transition layer of mixture of TiO<sub>2</sub> and SiO<sub>2</sub>. At high temperature (1400℃), the growth morphology of TiO<sub>2</sub> layer can be influenced by the formation of glassy SiO<sub>2</sub>. The continuous and dense TiO<sub>2</sub> films which can efficiently prevent the diffusion of oxygen are formed. The parabolic rate constants decrease about one order of being oxidized at 1400℃ for long time compared with that oxidized at 1200℃. The oxidation resistance of Ti<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub>-64vol%SiC ceramics at 1400℃ is better than that oxidized at 1200℃.

**Key words:** Ti<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub>-64vol%SiC ceramics; oxidation mechanism; diffusion-control mechanism; hot isostatic pressing (HIP)

作为一种重要的高温结构材料, 三元层状 Ti<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub> 陶瓷由于兼具金属和陶瓷的综合性能而引起了广泛的研究。它具有良好的电导和导热性能、室温下具有高的弹性模量和剪切模量、好的机械加工性能等, 并且具有高屈服强度、耐磨性、优异的抗热震性及抗氧化能力等陶瓷特性<sup>[1-2]</sup>。众多研究显示<sup>[3-5]</sup>, 在低于 1200℃ 下, 材料具有优异的抗氧化性能, 但是在更

高温下, 其性能明显下降。

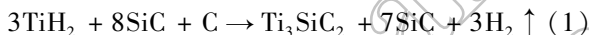
SiC 具有高温强度高、硬度高、热膨胀系数小、良好的抗氧化、耐磨损等性能, 作为增强相引入到 Ti<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub> 中可以获得 Ti<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub>-SiC 复相陶瓷从而提高其综合性能<sup>[6]</sup>。众多研究显示, SiC 相引入到 Ti<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub> 基体中能显著提高材料的抗氧化性能, Li 等<sup>[7]</sup>研究了 Ti<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub>-14.2vol%SiC 复合材料在 1200℃ 下空气气氛中氧化

21h,氧化增重仅为 $7.9\text{mg}/\text{cm}^2$ ,然而,单相 $\text{Ti}_3\text{SiC}_2$ 陶瓷氧化增重到达了 $30\text{mg}/\text{cm}^2$ . Zhang等<sup>[8]</sup>研究了 $\text{Ti}_3\text{SiC}_2/(0\sim 40\text{vol}\%)$  SiC复合材料在 $1000\sim 1400^\circ\text{C}$ 空气气氛中,氧化时间为 $0\sim 36\text{h}$ ,复合材料的氧化增重随着SiC含量的增加而减少. Zhu等<sup>[9-10]</sup>研究发现 $\text{Ti}_3\text{SiC}_2$ -SiC在空气中长时间氧化,抗氧化性能在 $1400^\circ\text{C}$ 下明显优于 $1200^\circ\text{C}$ ,但是氧化机理不详.但是,由于制备工艺的限制,绝大多数研究涉及的SiC相的引入量基本不高于 $40\text{vol}\%$ ,而对高SiC含量的复相陶瓷的氧化机理研究不够清楚.

前期工作中,通过原位热等静压技术合成了高致密度和综合性能优良的 $\text{Ti}_3\text{SiC}_2$ -64vol% SiC复相陶瓷<sup>[10]</sup>.本工作中,通过在 $1100\sim 1450^\circ\text{C}$ 温度范围内,长时间及短时间下通过模拟空气气氛进行等温氧化实验,分析氧化膜的形成过程及完整性等相关因素对基体的保护作用,研究 $\text{Ti}_3\text{SiC}_2$ -64vol% SiC复相陶瓷的高温氧化行为及氧化机理.

## 1 实验

$\text{Ti}_3\text{SiC}_2$ -64vol% SiC复相陶瓷采用原位热等静压技术制备.原料为:氢化钛( $\text{TiH}_2$ ) (纯度为 $>99\%$ ,平均粒径 $<50\mu\text{m}$ );石墨(纯度为 $>99.85\%$ ,平均粒径 $<30\mu\text{m}$ );碳化硅(SiC) (纯度为 $>99.1\%$ ,平均粒径 $<7\mu\text{m}$ ).实际配比按化学计量反应式进行.



原料经球磨混合均匀后,热等静压(ABB, QIH-15型)烧结而成.烧结工艺为在Ar气保护气体中升温至 $1500^\circ\text{C}$ ,在压力为 $100.2\text{MPa}$ 下保压4h.复合材料的理论密度根据复合材料的复合规则计算<sup>[11]</sup>:

$$\rho_{\text{理}} = \sum \rho_i V_i \quad (2)$$

其中 $\rho_{\text{理}}$ 为复合材料的理论密度, $\rho_i$ 为复合材料各组分理论密度, $V_i$ 为复合材料中各组分的体积分数.

用排水法测得材料的实际密度 $\rho_{\text{实}}$ ,根据相对密度计算公式:

$$\gamma = \rho_{\text{实}}/\rho_{\text{理}} \quad (3)$$

定量金相分析得到:复相陶瓷中含有 $\text{Ti}_3\text{SiC}_2$ 相、SiC相和少量的TiC相,其含量分别为 $29.0\text{vol}\%$ 、 $64.0\text{vol}\%$ 和 $7.0\text{vol}\%$ .所测材料相对密度 $\gamma$ 为 $99.81\%$ .

氧化性实验样品经电火花加工成 $5\text{mm} \times 5\text{mm} \times 3\text{mm}$ 尺寸,表面经磨平及抛光后超声清洗.对样品进行热重实验(NETZSCH-STA 449C分析仪),升温速率为 $10\text{K}/\text{min}$ ,在不同温度制度及时间下通过模拟空气气氛进行恒温氧化.通过XRD(X'Pert Pro-MPD型衍射仪)分析氧化膜的晶体结构和组成,SEM-EDS

(Quanta200 ESEM 环境扫描电子显微镜)分析氧化表面层及剖面层的形貌、成分,探讨氧化机理.

## 2 实验结果及讨论

### 2.1 氧化动力学

$\text{Ti}_3\text{SiC}_2$ -64vol% SiC复相陶瓷的等温氧化实验在温度范围为 $1100\sim 1450^\circ\text{C}$ 下通过模拟空气进行.图1显示了高温下材料的氧化增重曲线,经曲线拟合处理发现等温动力学曲线遵循抛物线型氧化或抛物线-直线型氧化规律,初期氧化迅速并形成氧化膜,氧化膜形成后,对继续氧化起到阻挡作用.通过比较较低温度( $1200^\circ\text{C}$ )和较高温度( $1400^\circ\text{C}$ )下40h的氧化增重, $1400^\circ\text{C}$ 下40h氧化后单位面积增重量约为 $3.9\text{mg}/\text{cm}^2$ ,低于 $1200^\circ\text{C}$ 下的增重量( $5.5\text{mg}/\text{cm}^2$ ).观察图1发现,在保温初期:氧化温度越高,氧化增重速率越大,但随着保温时间延长, $1400^\circ\text{C}$ 下氧化增重速率下降非常明显,表明氧化反应的速率明显降低,推测 $1400^\circ\text{C}$ 下材料表面能形成较致密的氧化膜,阻碍氧原子的扩散,从而能更有效地保护基体.

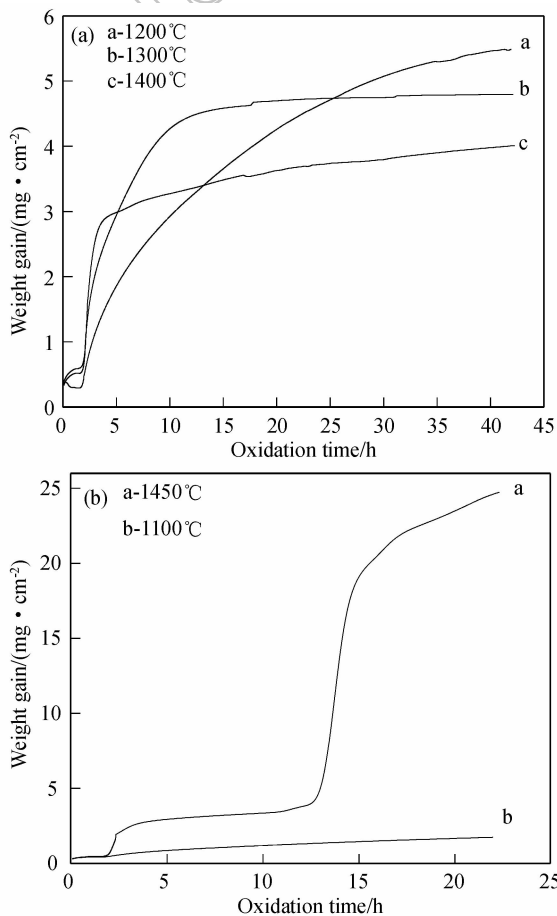


图1  $\text{Ti}_3\text{SiC}_2$ -64vol% SiC复相陶瓷氧化40h增重曲线

Fig. 1 Weight gain per unit area for  $\text{Ti}_3\text{SiC}_2$ -64vol% SiC ceramics oxidized for 40h

而当温度达到 1450℃,增重曲线呈复杂变化,氧化保温一定时间后,增重量明显增大(图 1(b)曲线 a 所示). 显微观察发现:样品氧化膜出现鼓包现象,氧化层不致密(图 2 所示),因为该温度下氧化加剧,导致较多的 CO 气体来不及通过扩散溢出氧化层,从而使氧化层的完整性被破坏,氧化速率增大.

图 3 为材料在 1400℃ 短时间下的氧化增重曲线. 可以看到,从 0 到 1.8h 的升温阶段,氧化增重量很低;而从 1.8 到 3.0h 的初期等温阶段,材料的氧化增重量急剧增大,说明氧化加快,同时致密氧化膜快速形成. 材料在 1400℃ 下保温 3h 后,增重曲线由陡变缓,推断出此时致密的氧化层已经形成.

为了证实在高温下(1400℃)形成致密氧化层具备良好的抗氧化作用,研究了温度制度的影响. 图 4 为先在 1400℃ 下保温 3h,后降温到 1200℃ 保温 40h 的氧化增重曲线. 当温度下降到 1200℃ 后继续暴露在空气气氛中,氧化增重值很小,曲线几乎呈一条水平直线,40h 保温后单位面积氧化增重约为

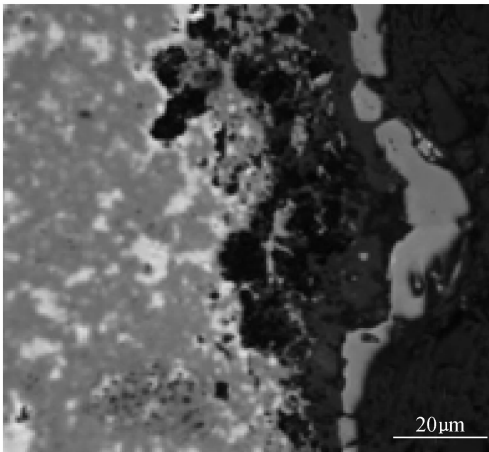


图 2 样品在 1450℃ 氧化后的剖面照片  
Fig.2 Cross-sectional morphology of the sample oxidized at 1450℃

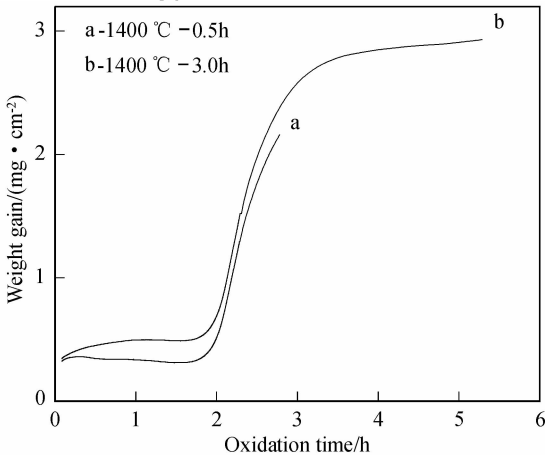


图 3 样品在 1400℃ 短时间氧化增重曲线  
Fig.3 Weight gain per unit area for the samples oxidized at 1400℃ for short time

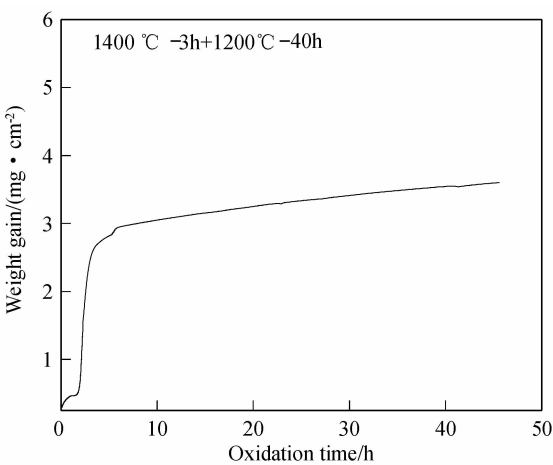


图 4 样品先 1400℃ 等温 3h 后,降温到 1200℃ 保温 40h 的氧化增重曲线

Fig.4 Weight gain per unit area for the samples oxidized at 1400℃ for 3h and at 1200℃ for 40h

3.6mg/cm<sup>2</sup>,进一步证实了材料在高温(1400℃)下氧化初期即能形成较完整和致密的氧化膜,使材料具有良好的抗氧化性能.

图 5 为材料在不同温度下氧化 40h 的氧化增重平方曲线. 1300 和 1400℃ 下材料大致体现为较明显的两个氧化阶段,材料表面氧化增重与时间的关系可用公式(4)来描述<sup>[10]</sup>:

$$(\Delta W/A)^2 = K_p t \tag{4}$$

其中,ΔW/A 为氧化试样的单位面积增重,K<sub>p</sub> 为氧化抛物线速率常数,t 为氧化时间. 各温度下材料的氧化抛物线速率常数(K<sub>p</sub>)值列于表 1. 在氧化初期,1400℃ 下 K<sub>p</sub> 约为 1.6 × 10<sup>-7</sup> kg<sup>2</sup>/(m<sup>4</sup> · s),此阶段氧化急剧反应,能较快生成氧化膜. 而在第二阶段的稳定等温阶段,K<sub>p</sub> 值仅为 4.0 × 10<sup>-9</sup> kg/(m<sup>4</sup> · s),说明生成的氧化膜起到了保护膜作用,减缓或阻碍氧化反应进行. 而在 1200℃ 下,K<sub>p</sub> 为 1.9 × 10<sup>-8</sup>,

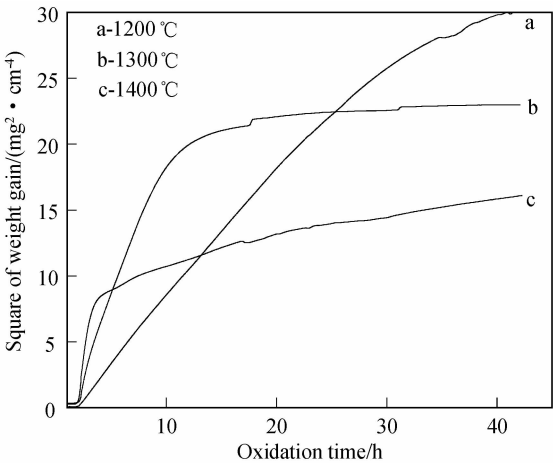


图 5 样品在不同温度恒温氧化 40h 的平方增重曲线  
Fig.5 Square of weight gain per unit area for the samples oxidized at different isothermal temperatures for 40h

表 1 不同温度下氧化 40h 的氧化抛物线速率常数  
Table 1 The parabolic rate constants for oxidation at different temperatures for 40h

Temperatures /℃	The parabolic rate constants $K_p/(kg^2 \cdot m^{-4} \cdot s^{-1})$
1200	$2.8 \times 10^{-8}$ , $1.9 \times 10^{-8}$
1300	$6.6 \times 10^{-8}$ , $2.7 \times 10^{-9}$
1400	$1.6 \times 10^{-7}$ , $4.0 \times 10^{-9}$
1200 *	$1.7 \times 10^{-7}$ , $2.8 \times 10^{-9}$

\* Oxidized at 1400℃ for 3h, then at 1200℃ for 40h

明显高于在 1400℃ 等温阶段下的  $4.0 \times 10^{-9}$ , 相比下其生成的氧化膜保护作用不显著。

2.2 氧化层相及组成分析

图 6 给出了材料在不同温度下氧化 40h 和 1400℃ 下短时间氧化后的 XRD 谱图。根据 XRD 结果显示, 谱图中大多数峰显示为 TiO<sub>2</sub> 峰(金红石型, 四方晶体), 同时还包括少量的 SiO<sub>2</sub> 和 SiC 峰(图 6(a) 所示), 原因可能有两个方面: 一是晶相的 SiO<sub>2</sub> (方石英相) 含量较少以至检测峰强度不强而检测的峰数量少; 二是 TiO<sub>2</sub> 相厚度较厚, 使 SiO<sub>2</sub> 相的峰值降低。XRD 谱图中没有检测出 Ti<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub> 相, 说明外层的 Ti<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub> 相已经完全被氧化成 TiO<sub>2</sub> 和 SiO<sub>2</sub> 产物, 生成较厚的氧化层, 从而起到了保护基体的作用。1400℃ 短时间氧化的 XRD 谱图中, 能检测到 SiC 峰, 说明 Ti<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub> 和 TiC 快速氧化成膜, SiC 虽然被氧化, 但氧化膜较薄。表明足量 SiC 相能很好地保护基体。

另外从图 6(a) 的 TiO<sub>2</sub> 峰强分布可以看出: 1400℃ 氧化 40h 后的峰强分布与粉末的 PDS 卡片接近((110) 峰为第一强峰)。而 1200℃ 的 TiO<sub>2</sub> 衍射峰中, (211) 晶面衍射强度明显增强, 成为第一强峰, 表明氧化膜存在择优取向(即 TiO<sub>2</sub> 择优生长)。1300℃ 时, 仍然存在 TiO<sub>2</sub> 薄膜择优取向倾向, 但比 1200℃ 要弱一些。在相对低温下, TiO<sub>2</sub> 晶粒生长与成核的速度较慢, TiO<sub>2</sub> 在外面生长, 不受内层晶相 SiO<sub>2</sub> 的影响, 形成晶体择优生长。1400℃ 短时间氧化后的 TiO<sub>2</sub> 同样存在择优取向(图 6(b)), 当氧化时间延长, SiC 氧化形成的表面非晶 SiO<sub>2</sub> 数量增多, 并将影响 TiO<sub>2</sub> 薄膜的生长和形态, 使这种择优取向逐渐减弱。

2.3 微观形貌与成分分析

图 7 为材料氧化后的 SEM 图像。在 1200℃ 下氧化的形貌(图 7(a)), 晶粒轮廓清晰、棱角分明、晶粒间的空隙较大, 形成相对疏松的 TiO<sub>2</sub> 膜。晶粒的晶界和空隙形成氧原子的扩散通道, 材料快速被氧化。随着温度的升高, 晶界轮廓开始变得平滑, 观察到的形貌与先前完全不同, 晶粒间的空隙显著减少, 特别在 1400℃ 下, 等温初期阶段即能生成致密而完整的氧化

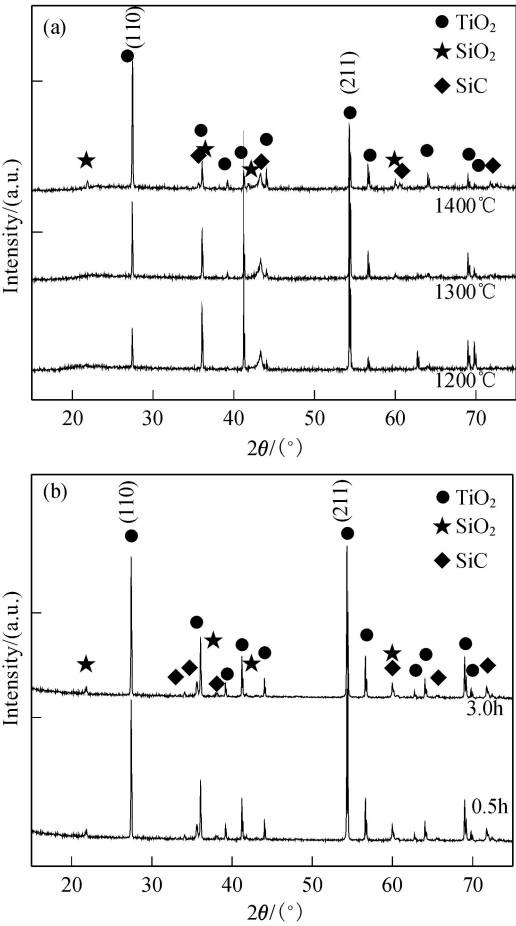


图 6 样品表面氧化物的 XRD 图谱  
Fig. 6 XRD patterns of the oxide surfaces on the samples  
Oxidation at (a) different temperatures for 40h, (b) 1400℃ for different times

层(图 7(e)、(f))。由于 SiC 的氧化, 非晶 SiO<sub>2</sub> 的生成强烈影响 TiO<sub>2</sub> 晶粒的生长形态。

图 7(d) 显示材料在 1400℃ 下氧化后放大的 SEM 图像。可以清晰地看到, 晶界轮廓十分平滑, 基本无尖锐棱角, TiO<sub>2</sub> 晶粒之间基本无空隙, 氧化层几乎完全致密, 大大减少了氧原子的直接扩散通道, 从而有效阻挡氧的进入。

因此, 外层由致密而完整的金红石型 TiO<sub>2</sub> 层组成, 它与混合的 SiO<sub>2</sub> 和 TiO<sub>2</sub> 晶相组成的过渡层一起, 起到一个“栅栏”的作用, 减缓或阻碍氧原子向内扩散, 从而很好地保护基体。所以氧化增重趋于平缓, 体现出比 1200℃ 更优异的抗氧化性能。

EDS 图(图 8) 显示, 对应的图 7 中大晶粒成分主要包含 Ti、O 及极少量的 Si(图 8(b)), 细小晶粒区域及孔洞区域主要包含 Si、O 及少量的 Ti 原子(图 8(a)、(c)), 证实了外层的氧化膜主要含有大颗粒的 TiO<sub>2</sub> 晶粒, 这与 XRD 分析结果相符合, 检测到非常弱的 SiO<sub>2</sub> 峰及少量其他相的峰, 在高温下, 尤其是 1400℃ 下, 非晶相和晶相混合的 SiO<sub>2</sub> 及过渡层中的 TiO<sub>2</sub> 相共存于氧化层中。

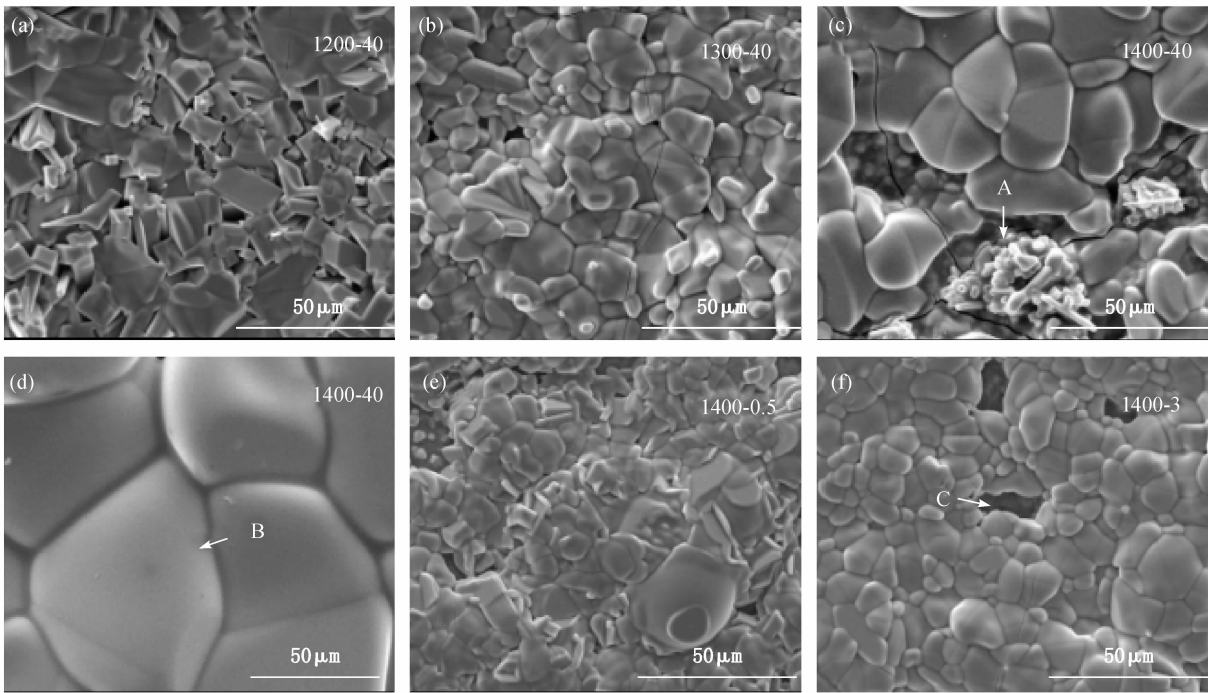


图 7 样品在空气中氧化后的表面形貌图

Fig. 7 Surface morphologies of the samples oxidized in air

(a) 1200°C-40h; (b) 1300°C-40h; (c) 1400°C-40h,1000 × ; (d) 1400°C-40h,3000 × ;  
(e) 1400°C-0.5h; (f) 1400°C-3h

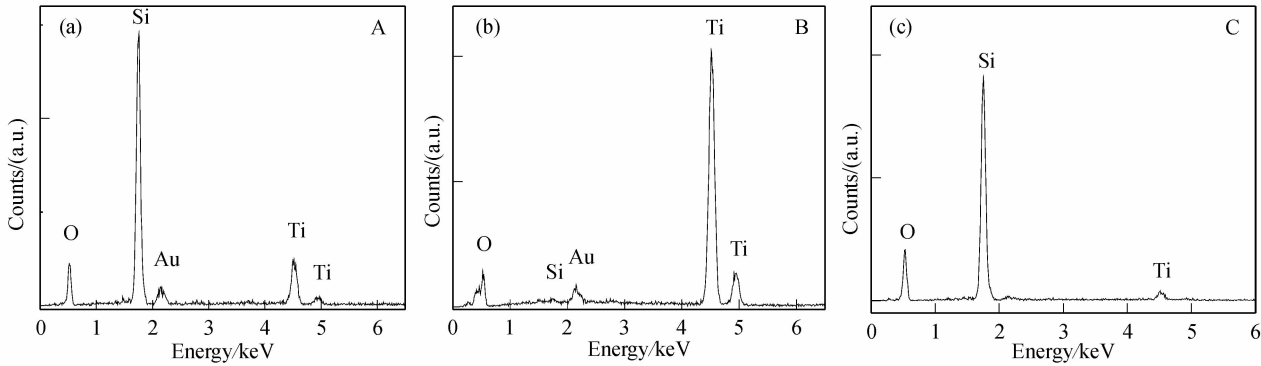


图 8 对应图 7 中相关区域的 EDS 谱图

Fig. 8 EDS spectra of the corresponding zones in Fig. 7

(a) A zone in Fig. 7(c); (b) B zone in Fig. 7(d); (c) C zone in Fig. 7(f)

2.4 氧化机理分析

Ti<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub>-64vol% SiC 复相陶瓷氧化动力学为原子扩散控制,其高温氧化机制属于扩散控制机理. SiC 因其表面极易形成致密的非晶氧化硅保护膜,在高温下具有很低的氧化速率. 因此,复相材料中首先强烈被氧化的是三元相 Ti<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub>. 氧化初期,O 原子被吸附于材料表面与 Ti<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub> 反应形成氧化膜,且迅速覆盖材料表面. Ti<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub> 三元相中的 Ti 原子和 C 原子向外层扩散,与 O 原子优先反应生成 TiO<sub>2</sub> 和 CO,气体通过扩散,从晶粒晶界逸出材料表面. 这样,首先形成一个氧化外层. 由于 Si 原子亚结构稳定而保持不动,

O 原子由于内外层气体的内分压减小而向内层扩散<sup>[5,12-13]</sup>,材料氧化通过 O 向内扩散,同时 Ti 原子和 C 原子向外扩散,氧化进一步进行,生成了氧化物 TiO<sub>2</sub> 及 SiO<sub>2</sub>,氧化膜有效地阻滞材料与环境之间的原子扩散迁移. 进一步氧化反应,形成一个由 TiO<sub>2</sub> 和 SiO<sub>2</sub> 混合组成的氧化过渡层. 所以,两层氧化膜形成:外层是相对较纯的 TiO<sub>2</sub> 层,过渡层是混合的 TiO<sub>2</sub> 和 SiO<sub>2</sub> 层.

氧化过程中,由于原子迁移、气体逸出、晶型转变导致体积变化、局部热应力不同导致微裂纹产生以及晶粒生长趋势和形貌的差异,提供原子扩散通道. 在

1200℃下,  $\text{TiO}_2$  因为能够保持规则外形, 但是  $\text{TiO}_2$  层不能形成致密结构. 当温度升高时, 特别是 1400℃下,  $\text{SiC}$  氧化速率明显提高, 而且其氧化产物多为非晶态的  $\text{SiO}_2$ . 外层  $\text{SiC}$  氧化形成的非晶态  $\text{SiO}_2$  和  $\text{Ti}_3\text{SiC}_2$  氧化形成的  $\text{TiO}_2$  相遇, 并影响外层  $\text{TiO}_2$  薄膜的生长形态, 形成更为致密的氧化膜, 从而阻碍氧的扩散, 起到良好的抗氧化作用.

### 3 结论

$\text{Ti}_3\text{SiC}_2$ -64vol%  $\text{SiC}$  复相陶瓷在高温下具有优异的抗氧化能力, 氧化机制属于扩散控制机制.  $\text{SiC}$  (64vol%) 能有效阻滞基体被氧化, 提高  $\text{Ti}_3\text{SiC}_2$ - $\text{SiC}$  材料的抗氧化能力. 高温下, 尤其 1400℃下, 非晶  $\text{SiO}_2$  的生成影响  $\text{TiO}_2$  晶体的生长形态, 减少氧原子快速扩散通道的形成. 连续和致密的外层  $\text{TiO}_2$  膜和过渡层中混合的  $\text{SiO}_2$  和  $\text{TiO}_2$  晶体能有效阻碍氧的扩散. 长时间等温氧化下, 其氧化抛物线速率常数比在 1200℃氧化下低近一个数量级.  $\text{Ti}_3\text{SiC}_2$ -64.0vol%  $\text{SiC}$  在 1400℃的抗氧化能力明显高于在 1200℃.

### 参考文献:

[1] Zhen T, Barsoum M W, Kalidindi S R, *et al.* *Acta Materialia*,

2005, **53**(20): 4963-4973.

[2] Wang L J, Jiang W, Chao Q, *et al.* *Mater. Sci. & Eng. A*, 2006, **425**(1/2): 219-224.

[3] Yang S L, Sun Z M, Hashimoto H, *et al.* *Oxid. Met.*, 2003, **59**(1/2): 155-165.

[4] Sun Z, Zhou Y, Li M. *Acta Materialia*, 2001, **49**(20): 4347-4353.

[5] 刘光明, 李美栓, 周延春, 等. 材料研究学报, 2002, **16**(3): 263-267.

[6] 张建峰, 施璐, 王连军, 等 (ZHANG Jian-Feng, *et al.*). 无机材料学报 (Journal of Inorganic Materials), 2008, **23**(6): 1147-1150.

[7] Li S B, Xie J X, Zhang L T, *et al.* *Materials Letters*, 2003, **57**(20): 3048-3056.

[8] Zhang J F, Wang L J, Jiang W, *et al.* *Composites Sci. & Tech.*, 2008, **68**(6): 1531-1538.

[9] Zhu D G, Wang Z G. *Materials Science Forum*, 2007, **561-565**(1): 687-691.

[10] 王志钢, 朱德贵. 硅酸盐通报, 2006, **25**(4): 6-10.

[11] 闻荻江. 复合材料原理. 武汉: 武汉工业大学出版社, 1998: 6-12.

[12] Low I M, Wren E, Prince K E, *et al.* *Mater. Sci. Eng. A*, 2007, **466**(1/2): 140-147.

[13] Oo Z, Low I M, Connor B H O. *Physica B*, 2006, **385-386**(1): 499-501.