

含有石墨烯阵列的 SiC 基陶瓷材料的制备与力学性能

孙 川¹, 何鹏飞¹, 胡振峰¹, 王 荣¹, 邢 悦¹, 张志彬¹,
李竞龙¹, 万春磊², 梁秀兵¹

(1. 军事科学院 国防科技创新研究院, 北京 100071; 2. 清华大学 新型陶瓷与精细工艺国家重点实验室, 北京 100084)

摘 要: 碳化硅陶瓷是一种重要工程材料, 但具有一定的脆性, 这限制了其进一步应用。二维石墨烯具有诸多优良特性, 可以作为第二相对碳化硅陶瓷材料进行性能改善。然而石墨烯在陶瓷基体中存在分散性较差等问题, 难以发挥其对陶瓷基体的改性作用。为解决以上问题, 本工作以陶瓷有机前驱体聚碳硅烷和工业可膨胀石墨为原料, 通过前驱体-纳米插层技术制备了少层石墨烯纳米片(GNPs)的体积分数分别为 1%、3% 和 5% 的 SiC/GNPs 陶瓷基复合材料。GNPs 在 SiC 陶瓷基体中呈阵列态平行排布, 显示出极高的取向性; 随着 GNPs 含量增加, 阵列中 GNPs 的间距依次递减, 表现出一定的微观组织拓扑可调节性; 加入 GNPs 显著提高了 SiC 陶瓷的断裂韧性, 当 GNPs 含量为 3% 时, 样品的相对密度为 98.5%, 抗弯强度为 445 MPa, 断裂韧性达到最高值 $5.67 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$, 相比纯 SiC 陶瓷提高了 40%, 由 GNPs 引发的裂纹偏转与桥连是主要的增韧机制。而进一步提高 GNPs 含量, 断裂韧性下降至 $4.37 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ 。这种含有石墨烯阵列的复合材料可以用于新型“结构-功能一体化”SiC 基陶瓷器件的设计与开发。

关 键 词: 碳化硅; 石墨烯; 微观组织; 断裂韧性; 陶瓷增韧

中图分类号: TQ174 文献标志码: A 文章编号: 1000-324X(2024)03-0267-07

SiC-based Ceramic Materials Incorporating GNPs Array: Preparation and Mechanical Characterization

SUN Chuan¹, HE Pengfei¹, HU Zhenfeng¹, WANG Rong¹, XING Yue¹, ZHANG Zhibin¹,
LI Jinglong¹, WAN Chunlei², LIANG Xiubing¹

(1. National Innovation Institute of Defense Technology, Academy of Military Sciences of the People's Liberation Army of China, Beijing 100071, China; 2. State Key Laboratory of New Ceramics and Fine Processing, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

Abstract: Silicon carbide ceramics are important engineering materials, but their application is limited by the inherent brittleness. Two-dimensional graphene, with its excellent properties, can be used as a second phase to improve the performance of silicon carbide ceramics. However, due to poor dispersion of graphene in the ceramic matrix, it is a challenge to fully exploit the modifying effect of graphene in composite materials. To address these challenges, SiC-based ceramic materials incorporating graphene nanosheets (GNPs) were synthesized using ceramic organic

收稿日期: 2023-06-02; 收到修改稿日期: 2023-07-28; 网络出版日期: 2023-08-31

基金项目: 国家自然科学基金(51975582); 北京市科技计划课题 (Z211100002421003)

National Natural Science Foundation of China (51975582); Beijing Municipal Science and Technology Project (Z211100002421003)

作者简介: 孙 川(1986-), 男, 博士. E-mail: sunchuanyeah@163.com

SUN Chuan (1986-), male, PhD. E-mail: sunchuanyeah@163.com

通信作者: 梁秀兵, 研究员. E-mail: liangxb_d@163.com

LIANG Xiubing, professor. E-mail: liangxb_d@163.com

precursor polycarbosilane and industrial expandable graphite as starting materials. The precursor intercalation technique was employed to fabricate SiC/GNPs ceramic composites with GNPs volume fraction of 1%, 3%, and 5%. The GNPs were uniformly arranged in an array-like parallel fashion in the SiC ceramic matrix, showing excellent orientation. With the GNPs content increasing, the spacing between GNPs within the array decreased, indicating tunable microstructural topology. The addition of GNPs greatly enhanced the fracture toughness of SiC ceramics. When the GNPs content was 3%, the relative density of the samples reached 98.5%, the bending strength reached 445 MPa, and the fracture toughness (K_{IC} value) peaked at $5.67 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$, surpassing pure SiC ceramics by 40%, which was primarily attributed to crack deflection and bridging induced by the GNPs. However, further increase in GNPs content led to a decrease in fracture toughness to $4.37 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$. These SiC-based ceramic composites with a graphene array have potential application in design and development of novel “structure-function integration” SiC-based ceramic devices.

Key words: silicon carbide; graphene; microstructure; fracture toughness; ceramic toughening

碳化硅陶瓷具有低密度、高模量、高强度、抗热冲击等诸多优良性能,作为一种典型的高温结构材料,被广泛应用于航空航天、核能等高科技领域,可用作空间反射镜、核燃料包壳管和防护装甲等^[1-3]。相较于传统的由粉体直接烧结制备陶瓷材料的工艺技术,采用聚合物前驱体裂解技术制备碳化硅陶瓷,可以在纳米尺度上实现材料结构设计与组分调控,尤其适合制备纤维、薄膜、涂层等低维材料^[4-5]。但对于块体陶瓷材料,前驱体制备技术的优势却无法凸显^[6],这是由于前驱体在无机化转变的过程中,有机结构会发生坍塌收缩,释放出大量小分子气体,使陶瓷内部产生许多孔隙与裂纹,严重影响块体陶瓷材料的机械性能^[7]。因此,必须发展能够有效制备少缺陷、高致密度、高断裂韧性碳化硅陶瓷材料的工艺技术,并将其应用拓展到更多尖端技术领域。

石墨烯——由碳原子按六边形周期排列而形成的纳米二维材料,是三维碳材料的基本结构单元,厚度只有 0.3354 nm ,具有独特的单原子层结构。石墨烯具有诸多优异的性能,例如:热导率高达 $5300 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ ^[8];禁带宽度几乎为零;载流子迁移率达 $2\times 10^5 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ ^[9],是世界上电阻率最小($\sim 10^{-6} \Omega\cdot\text{cm}$)的材料;比表面积理论值为 $2630 \text{ m}^2/\text{g}$ ^[10];断裂强度达 125 GPa ,比钢材还要高 200 倍^[11];杨氏模量约为 1100 GPa ^[12];拉伸幅度能达到自身尺寸的 20%^[13]。此外,石墨烯还具有分数量子霍尔效应、量子霍尔铁磁性和零载流子浓度极限下的最小量子电导率等一系列独特性质^[14-15],使其在信息、微电子、能源以及空间技术等领域具有重大的应用前景,其中一个重要的应用方向,就是将石墨烯作为增强相或改性相加入到陶瓷材料中,进而获得具有特殊性能的复合材料^[16-26]。其中, Yu 等^[16]以聚乙烯基硅

氮烷和氧化石墨烯(rGO)为前驱体发生交联反应,经冷等静压成型和热处理制备了致密度高、断面光滑的 SiCN-rGO 复合材料。Lee 等^[17]发现加入石墨烯对 Al_2O_3 陶瓷的晶粒细化和硬度提高具有积极作用。Sun 等^[18]研究发现,少层石墨烯不仅可以作为强化相,大幅度提高多种氧化物陶瓷基复合材料的断裂韧性,而且可以作润滑相,将复合材料的摩擦系数降至 0.1 以下。SiC 陶瓷本身具有一定的脆性,传统增韧效果存在一定局限性,而石墨烯与 SiC 的相容性较好,因此石墨烯增韧 SiC 陶瓷也成为该领域的研究热点。其中, Yang 等^[22]通过振荡压力烧结法制备了石墨烯体积分数约 1.5% 的 SiC 基陶瓷材料,相比纯 SiC 陶瓷断裂韧性提高了 26%。Hanzel 等^[23]制备了石墨烯质量分数 15% 的层状 SiC 基复合材料,其电导率得到了大幅提高,但抗弯强度却下降了 20% 以上。黄毅华等^[24]通过热压烧结法制备了掺入不同量还原-氧化石墨烯(rGO)的 SiC 复合材料,其中加入质量分数 6% rGO 的样品断裂韧性达到了 $4.56 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$,然而抗弯强度亦有所下降。Razmjoo 等^[25]采用无压烧结技术制备了石墨烯质量分数为 3% 的 SiC 基复相陶瓷,通过石墨烯和纳米 β -SiC 相的协同增韧作用,使断裂韧性比纯 SiC 陶瓷提高了 30% 以上。

虽然近年来石墨烯/陶瓷复合材料的制备和性能调控研究取得了一定的进展,然而石墨烯的制备和石墨烯/陶瓷复合材料的研究还存在一些问题^[27-30]。例如,石墨烯在与陶瓷粉体混合的过程中易发生团聚或结构破坏,在陶瓷基体中排列混乱无序,弱化了石墨烯对陶瓷材料的增韧作用,不利于进一步提升陶瓷基复合材料的性能;在部分情况下复合材料的断裂韧性和抗弯强度仍然难以同时得到提升;另

外石墨烯的高昂制备成本也限制了石墨烯/陶瓷复合材料的应用^[31]。本工作针对以上问题,以相对廉价的可膨胀石墨为碳源,通过前驱体纳米插层技术,使石墨烯第二相均匀地分散在陶瓷基体中,得到了具有石墨烯阵列的 SiC 基复合材料。复合材料的断裂韧性和抗弯强度均优于纯 SiC 陶瓷材料,有望拓展 SiC 基复合材料在航空航天、国防等领域的应用。

1 样品制备与表征

1.1 制备过程

样品的制备过程如图 1 所示: (1)用工业级可膨胀石墨(麦克林, 100 μm(150 目))作为石墨烯制备原料,首先在家用微波炉中加热可膨胀石墨 20 s,使石墨层间的官能团逸出,并将以范德瓦尔斯力结合在一起的石墨片层“撑开”,得到如图 2 所示的膨胀石墨; (2)配制前驱体混合液,将聚碳硅烷(上海卜微,纯度 99.95%)溶于无水乙醇,同时加入质量分数 5% 的偶联剂 KH550; (3)将陶瓷前驱体完全浸润膨胀石墨,在超声清洗机中超声处理 40 min,使膨胀石墨进一步剥离; (4)将混合体系置于干燥箱中干燥 24 h,再在真空管式炉中进行 900 ℃/2 h 的低温热处理,得到混合均匀的 SiC/GNPs 混合粉体; (5)对混合粉体进行热压烧结(上海晨华, ZT-40-21Y),全程保持真空,室温升至 1100 ℃后对粉料缓慢加压至 30 MPa,继续升温到 1950 ℃后保温 15 min,停炉冷却,制备得到 SiC/GNPs 复合材料,表面研磨抛光后进行测试表征。在制备过程中,可通过改变膨胀石墨的加入量,获得不同 GNPs 含量的 SiC/GNPs 复合材料,各样品编号与 GNPs 含量等信息如表 1 所示。

1.2 表征与测试

采用阿基米德排水法测量 SiC/GNPs 复合材料的密度,相对密度为测试密度和理论密度的比值。采用 ZEISS New Vision40 扫描电子显微镜观察复合材料喷铂后的断面形貌,采用 Talos F200 型透射电镜观察微观形貌,通过 D8 Advance 型 X 射线衍射仪(Cu 靶, λ=0.154 nm, 40 kV, 40 mA)测试复合材料的物相,采用 Olympus OLS41 共焦显微拉曼光谱测试系统测量复合材料断面的 GNPs 特征带(λ=532 nm,

1000~3500 cm⁻¹),通过图像分析软件(Image Pro Plus 8)在 SEM 照片上获取石墨烯纳米片间距的统计信息。采用单边 V 形切口梁法(SEVNB),依据标准 ASTM C-1421,在万能试验机(吉林冠腾, WDW-100)上测试 SiC/GNPs 复合材料的断裂韧性 K_{IC} ,样品尺寸 4 mm×2 mm×22 mm,压头加载速率 0.05 mm/min,跨距 15 mm;采用三点弯曲法依据标准 ASTM C-1161,在万能试验机上测试样品的抗弯强度,样品尺寸为 3 mm×4 mm×22 mm,加载速率为 0.5 mm/min。力学性能测试每组测试 5 根样品, K_{IC} 由公式(1, 2)计算,抗弯强度由公式(3)计算:

$$K_{IC} = \frac{PS}{BW^2} f\left(\frac{a}{W}\right) \tag{1}$$

$$f\left(\frac{a}{W}\right) = \frac{3\left(\frac{a}{W}\right)^{\frac{1}{2}} \left[1.99 - \left(\frac{a}{W}\right) \left(1 - \frac{a}{W}\right) \left(2.15 - 3.93 \frac{a}{W} + 2.7 \left(\frac{a}{W}\right)^2 \right) \right]}{2 \left(1 + \frac{2a}{W} \right) \left(1 - \frac{a}{W} \right)^{\frac{3}{2}}} \tag{2}$$

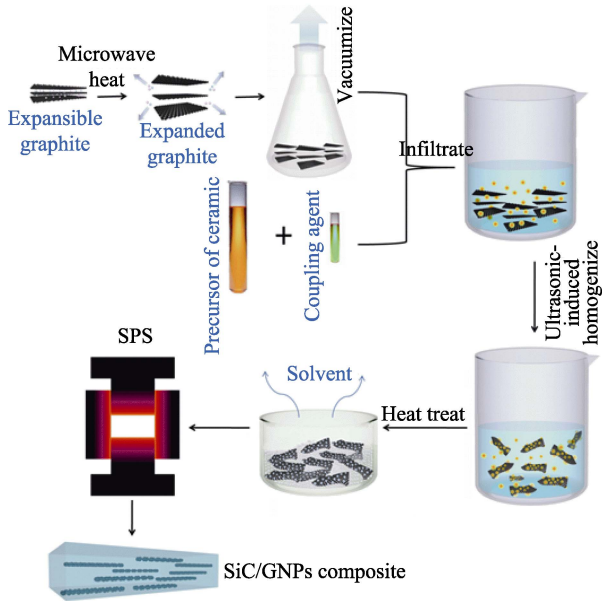


图 1 SiC/GNPs 复合材料的制备过程示意图
Fig. 1 Facile route to synthesize the SiC/GNPs composite

表 1 SiC/GNPs 复合材料的基本物性

Table 1 Basic physical properties of SiC/GNPs composites

No.	GNPs content/(%, in vol)	Relative density/%	GNPs average layer spacing/μm	$K_{IC}/(\text{MPa} \cdot \text{m}^{1/2})$	Bending strength/MPa
G0	0	99.2	—	4.05	395
G1	~1	99.0	7.5	5.18	410
G3	~3	98.5	5.2	5.67	445
G5	~5	97.4	3.4	4.37	370

$$\sigma = \frac{3FL}{2BH^2} \tag{3}$$

公式(1, 2)中, P 为试样断裂时的临界载荷, B 为试样的宽度, W 为试样的厚度, L 为测试时试样的跨距, a 为切口深度, $f(a/W)$ 为几何因子; 公式(3)中, F 为样品的断裂载荷(N), H 为样品高度(mm)。

2 结果与讨论

图 2 为微波加热后的膨胀石墨 SEM 照片, 可以看出加热过程使可膨胀石墨沿着垂直方向发生体积膨胀, 使原本通过范德瓦尔斯力聚集在一起的石墨片层彼此分开、产生间隙。将膨胀石墨与 SiC 前驱体通过进一步制备工艺得到如图 3 所示的 SiC/GNPs 混合粉体(样品 G3), 可见 SiC 陶瓷颗粒细小而均匀, 石墨烯纳米片呈半透明状, 保有较大的横向尺寸, 部分纳米片发生弯曲, 但边缘和中心位置并未发生明显的机械破坏, 没有出现团聚, 以上现象说明通过该制备方法能够获得 SiC 与 GNP 的均匀混合粉体。

本研究分别制备了石墨烯纳米片体积分数为 0、1%、3%和 5%的 SiC/GNPs 复合材料, 表 1 展示了样品的基本物性。不含 GNPs 的 SiC 陶瓷的相对

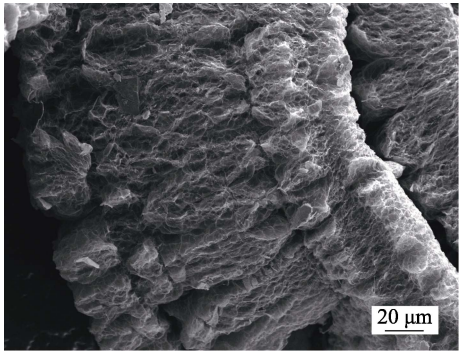


图 2 微波加热后得到的膨胀石墨的 SEM 照片
Fig. 2 SEM image of the expanded graphite prepared after the microwave management

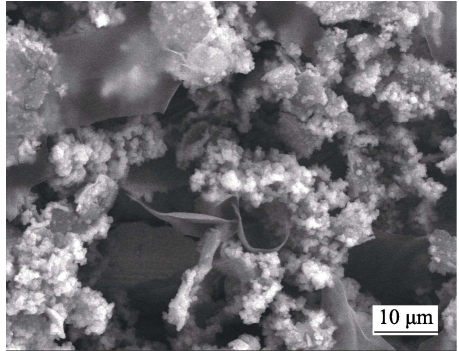


图 3 SiC/GNPs 混合粉体 SEM 照片
Fig. 3 SEM image of the SiC/GNPs mixed powder

密度可达 99.2%, 与文献报道结果一致^[32-33]。随着 GNPs 的加入, 样品的相对密度呈下降趋势, 这是由于石墨层间共价键强、烧结活性低, 烧结过程难以致密化; 并且 GNPs 的横向尺寸较大, 在制备过程中不可避免地会发生卷曲与堆叠, 使样品出现疏松的孔洞, 造成烧结体相对密度下降。当石墨烯纳米片含量较低时, 该现象并不明显(图 4(a, b)); 当石墨烯纳米片含量达到 5%时, 样品中则出现明显的 GNPs 团聚, 如图 4(c)所示。

图 5 为不同 GNPs 含量烧成的 SiC 陶瓷基复合材料以及 SiC/GNPs 混合粉体的 XRD 图谱。可以看出, SiC/GNPs 混合粉体由石墨和 β -SiC 两种物相组成, 烧结样品中则出现了 α -SiC, 这是由于高温烧结使部分 β -SiC 发生相变而转化为 α -SiC, 与文献^[34-35]报道结果一致。GNPs 的石墨衍射峰出现在 $2\theta=26^\circ$ 附近, 相比 SiC 的衍射峰, 石墨衍射峰的峰强相对较弱, 这是由于石墨烯纳米片的厚度非常小, X 射

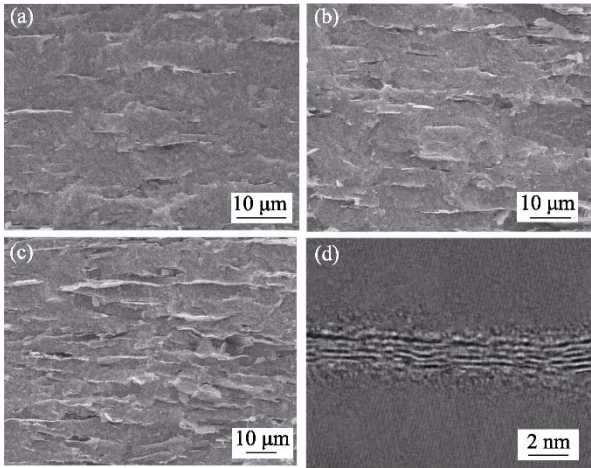


图 4 SiC/GNPs 复合材料的显微组织形貌
Fig. 4 SEM and TEM images of the fractured surface of SiC/GNPs bulks
(a) SEM image of sample G1; (b) SEM image of sample G3; (c) SEM image of sample G5; (d) TEM image of GNP in SiC matrix

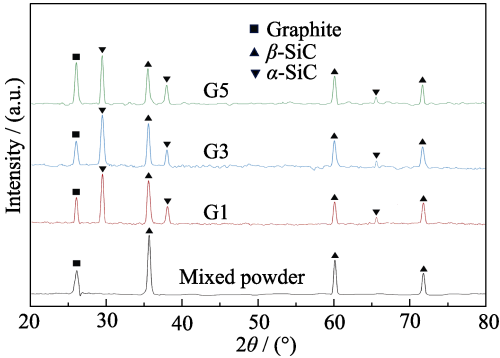


图 5 SiC/GNPs 混合粉体和烧结体的 XRD 图谱
Fig. 5 XRD patterns of SiC/GNPs mixed powder and bulks

线容易透过^[36]。当 GNP 的体积分数达到 5% 时, 石墨衍射峰强度明显增加, 这是由于石墨烯纳米片发生了折叠与团聚, 使片层厚度增加, 这与 SEM 观察结果一致(图 4(c))。

图 6 为样品 G3 粉体与烧结体的拉曼光谱图, 显示出与 GNP 相关的石墨种类的特征带, 分别为 D 峰(1348 cm^{-1})、G 峰(1583 cm^{-1})和 2D 峰(2716 cm^{-1})。特征峰表明, 热压烧结后, 石墨烯纳米片较好地保留了纳米片层结构^[37]。通常, 以 D 和 G 带之间的强度比(I_D/I_G)来估算石墨烯类材料的还原程度^[38]和晶格畸变程度^[39]。如图 6 所示, 烧结后 SiC/GNP 样品的 I_D/I_G 值大幅提高, 说明 GNP 在烧结过程中发生了还原再结晶, 同时晶格畸变程度增加, 有研究表明石墨烯第二相与陶瓷基体之间的键合会导致石墨烯发生大量的晶格畸变^[34]。G 峰强度相对较低, 可能是由石墨烯纳米片的偏转和褶皱所致^[40]。

烧结后 SiC/GNP 样品的显微结构如图 4 所示, 由 SEM 照片(图 4(a~c))可以明显看出, 石墨烯纳米片以平行阵列的形式均匀分布在陶瓷基体中, 同时纳米片阵列的状态有一定可调节性。由图 4 可以看出, 随着 GNP 加入量的增加, 样品中 GNP 阵列的层间距显著递减。通过图像分析软件对照片中石墨烯层间距进行统计分析, 发现 G1、G2 和 G3 样品的层间距分别为 7.5 、 5.2 和 $3.4\text{ }\mu\text{m}$ (表 1), 这表明石墨烯的分布状态具有一定的可控特征。可以通过调整石墨烯纳米片的加入量, 结合本文所提出的“前驱体-纳米插层”技术, 实现对石墨烯阵列间距的拓扑调控, 继而制备得到具有不同微观组织结构的 SiC/GNP 复合材料。观察还可以发现, 石墨烯纳米片的横向尺寸较大, 大多在 $10\sim 20\text{ }\mu\text{m}$ 之间。通过 TEM 进一步表征发现, 石墨烯纳米片厚度仅为 2 nm , 由 6 层单层石墨烯组成(图 4(d)), 在石墨烯与陶瓷基体的边界处存在大量的晶格畸变, 与拉曼光谱的分析结果一致, 同时表明石墨烯与陶瓷基体之

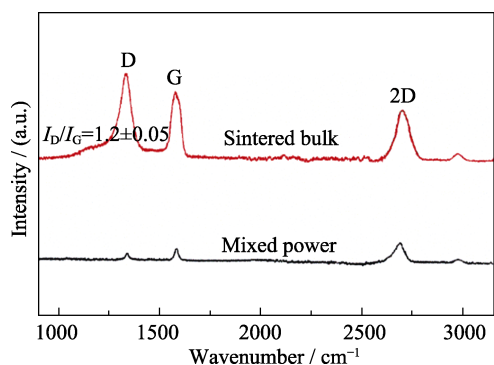


图 6 G3 样品混合粉体与烧结块体的拉曼光谱图

Fig. 6 Raman spectra of G3 mixed powder and bulk

间的结合较为紧密。这种阵列状、高纵横比、紧密结合的显微形态对改善陶瓷材料的力学性能发挥着至关重要的作用。

图 7 展示了 SiC/GNP 复合材料的力学性能。如图 7(a)所示: 纯 SiC 陶瓷的断裂韧性(K_{IC})仅为 $4.05\text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$; 当 GNP 加入量为 1% 时, K_{IC} 提高至 $5.18\text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$; 当 GNP 加入量为 3% 时, K_{IC} 达到最高值 $5.67\text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$, 相比纯 SiC 陶瓷提高了 40%; 当继续提高 GNP 含量, 断裂韧性却迅速下降。图 7(b, c)为样品 G3 中观察到的裂纹照片, 从图中可以观察多种增韧机制。首先, 裂纹不是以通常状态下的直线形态扩展, 而是发生了显著偏转。石墨烯纳米片虽然与基体紧密结合, 但是纳米片内部的单层石墨烯之间仍然以范德瓦耳斯力结合在一起。根

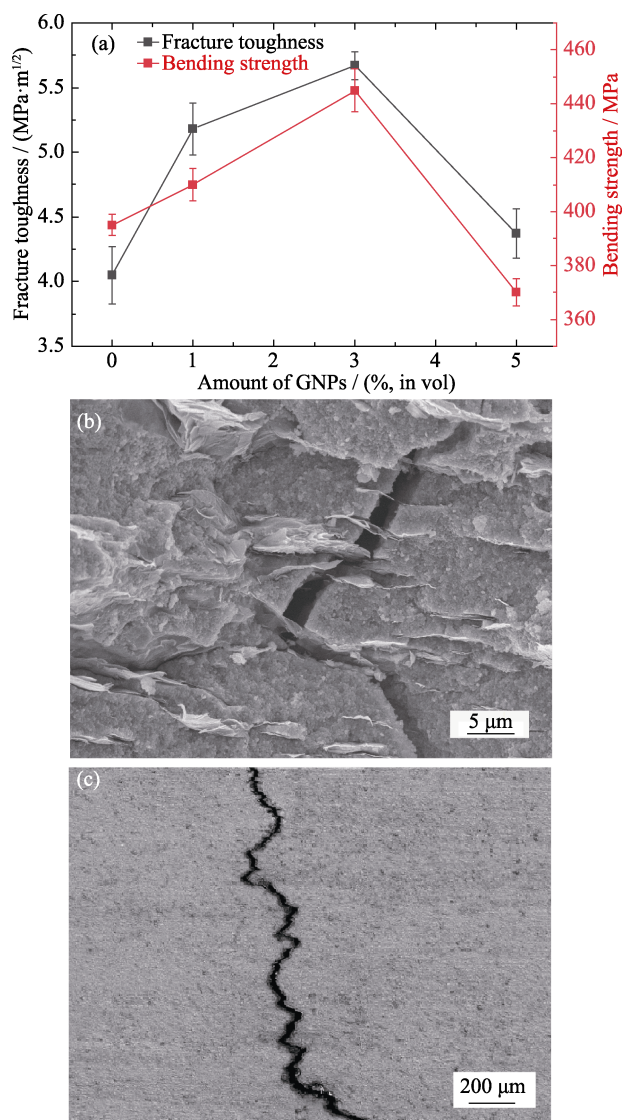


图 7 SiC/GNP 复合材料的断裂性能

Fig. 7 Fracture properties of SiC/GNP sample

(a) Changing curves of fracture toughness and bending strength of SiC/GNP with GNP content; (b) SEM image of sample showing crack bridging; (c) SEM image of sample showing crack deflection

据 Cook-Gordon 断裂模型,当含有弱结合面(GNPs)的致密基体(SiC)发生断裂时,抵达弱结合面的裂纹会沿着结合面方向发生偏转,形成如图 7(c)所示的“Z”字形偏转形态。其次,大量的 GNPs 桥连能够在一定程度上缓解应力集中。以上说明石墨烯纳米片阵列有效地承载了垂直方向的断裂载荷,通过多种机制耗散裂纹扩展能量,延长裂纹扩展路径,缓解裂纹前端的应力集中,从而有效提高陶瓷材料抵御裂纹扩展的能力。然而,进一步增加 GNPs 的加入量, K_{IC} 值却明显下降。这是限于目前的制备工艺水平,当 GNPs 的加入量较大时,复合材料中石墨烯纳米片会出现疏松团聚,形成缺陷孔洞(图 4(c)),进而影响材料抵御裂纹扩展的能力。如表 1 和图 7(a)所示,纯 SiC 陶瓷的抗弯强度为 395 MPa,加入 GNPs 后,抗弯强度迅速提高,当 GNPs 含量为 3%时,抗弯强度达到最高值 445 MPa,继续提高 GNPs 含量,抗弯强度又下降至 370 MPa,抗弯强度与断裂韧性的变化趋势基本一致。石墨烯片层相比 SiC 陶瓷基体具有更高的弹性模量,因此加入 GNPs 阵列有助于提高复合材料的抗弯强度。而当 GNPs 含量较高时,样品的相对密度有所降低,又导致抗弯强度下降。

3 结论

本研究以陶瓷的有机前驱体聚碳硅烷和可膨胀石墨为原料,采用前驱体-纳米插层技术制备了 GNPs 含量为 1%、3%和 5%的 SiC/GNPs 复合材料,得到下列结论:

1) 具有极大横纵比的 GNPs 在 SiC 陶瓷基体中以阵列状态平行分布,显示出极高的取向性;

2) 随着 GNPs 含量的增加,GNPs 阵列的层间距依次递减,微观结构表现出明显的拓扑可调节性;

3) SiC/GNPs 复合材料特殊的微观组织结构显著提高了 SiC 陶瓷抵御裂纹扩展的能力,当 GNPs 含量为 3%时, K_{IC} 达到最高值 $5.67 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$,相比纯 SiC 陶瓷提高了 40%,与此同时抗弯强度也达到最高值 445 MPa。由 GNPs 引发的裂纹偏转与桥连是 SiC/GNPs 复合材料主要的增韧机制;

4) 进一步提高 GNPs 含量,由于石墨烯出现了疏松团聚,对力学性能产生不利影响,断裂韧性则下降至 $4.37 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$,抗弯强度下降至 370 MPa。

石墨烯阵列独特的显微组织结构不仅有助于增韧,预计对陶瓷基复合材料的其它性能也会有积极作用,例如摩擦学和电磁学性能。利用石墨烯阵列有望设计开发出新型的“结构-功能一体化”SiC 基高温

结构陶瓷材料。

参考文献:

- [1] ZABELINA A A, SHCHERBAKOVA G I, FAIKOV P P, *et al.* SiC composites containing carbon nanotubes and oxide additives based on organoelementoxanes. Preparation by spark plasma sintering. *Ceramics International*, 2020, **46**(3): 2786.
- [2] OUYANG Q, WANG Y F, XU J, *et al.* Research progress of SiC fiber reinforced SiC composites for nuclear application. *Journal of Inorganic Materials*, 2022, **37**(8): 821.
- [3] KOYANAGI T, KATOH Y, NOZAWA T, *et al.* Recent progress in the development of SiC composites for nuclear fusion applications. *Journal of Nuclear Materials*, 2018, **511**(1): 544.
- [4] YAO X Y, LI K Z, REN J J, *et al.* Microstructure and fatigue behavior of high texture three-dimensional C/C composites prepared by mixed precursors. *Journal of Inorganic Materials*, 2020, **35**(5): 589.
- [5] 李辰冉, 谢志鹏, 赵林. 碳化硅陶瓷材料烧结技术的研究与应用进展. *陶瓷学报*, 2020, **41**(2): 13.
- [6] LIAO L, CHEN Z, XU X H, *et al.* Effects of oxidation curing and sintering temperature on the microstructure formation and heat transfer performance of freestanding polymer-derived SiC films for high-power LEDs. *Ceramics International*, 2018, **44**(6): 6072.
- [7] 乔玉林, 薛胤昌, 刘军, 等. 聚合物先驱体材料体系的陶瓷化研究进展与展望. *材料导报*, 2016, **30**(11): 6.
- [8] BALANDIN A A, GHOSH S, BAO W, *et al.* Superior thermal conductivity of single-layer graphene. *Nano Letters*, 2008, **8**(3): 902.
- [9] BOLOTIN K I, SIKES K J, JIANG Z, *et al.* Ultrahigh electron mobility in suspended graphene. *Solid State Communications*, 2008, **146**(9/10): 351.
- [10] CHAE H K, SIBERIO-PÉREZ D Y, KIM J, *et al.* A route to high surface area, porosity and inclusion of large molecules in crystals. *Nature*, 2004, **427**(6974): 523.
- [11] MULLER S E, SANTHAPURAM R R, NAIR A K. Failure mechanisms in pre-cracked Ni-graphene nanocomposites. *Computational Materials Science*, 2018, **152**: 341.
- [12] LEE C, WEI X, KYSTAR J W, *et al.* Measurement of the elastic properties and intrinsic strength of monolayer graphene. *Science*, 2008, **321**(5887): 385.
- [13] WANG Y, HUANG Y, SONG Y, *et al.* Room-temperature ferromagnetism of graphene. *Nano Letters*, 2009, **9**(1): 220.
- [14] HAN T, HE P, WANG J, *et al.* The effect of vacancy defects on the tensile mechanical properties of single graphene sheets. *Journal of Tongji University (Natural Science)*, 2010, **38**(8): 1210.
- [15] ZHANG B, HOU C Y, WANG H P, *et al.* Preparation and performance of reduced graphene oxide functionalized flexible and multicolor electrothermal chromatic films. *Journal of Inorganic Materials*, 2018, **33**(11): 1232.
- [16] YU Y, XIA F, HUANG Q, *et al.* Electrical conductivity of silicon carbonitride-reduced graphene oxide composites. *Journal of the American Ceramic Society*, 2017, **100**(11): 5113.
- [17] LEE B, KOO M Y, JIN S H, *et al.* Simultaneous strengthening and toughening of reduced graphene oxide/alumina composites fabricated by molecular-level mixing process. *Carbon*, 2014, **78**: 212.
- [18] SUN C, HUANG Y, SHEN Q, *et al.* Embedding two-dimensional graphene array in ceramic matrix. *Science Advances*, 2020, **6**(39): eabb1338.
- [19] FAN Y, WANG L, LI J, *et al.* Preparation and electrical properties of graphene nanosheet/ Al_2O_3 composites. *Materials Science*, 2010, **48**(6): 1743.

- [20] FAN Y, SONG Y, TUFAIL, *et al.* Liquid-phase assisted engineering of highly strong SiC composite reinforced by multiwalled carbon nanotubes. *Advanced Science*, 2020, **7(21)**: 2002225.
- [21] GAO J, DING Q, YAN P, *et al.* Highly improved microwave absorbing and mechanical properties in cold sintered ZnO by incorporating graphene oxide. *Journal of the European Ceramic Society*, 2022, **42(3)**: 993.
- [22] YANG Y F, ZHU T B, DAN J N, *et al.* Mechanical and tribological properties of SiC-GNPs composites prepared by oscillatory pressure sintering. *Ceramics International*, 2022, **48(23)**: 34769.
- [23] HANZEL O, TATARKO P. Preparation and properties of layered SiC-graphene composites for EDM. *Materials*, 2021, **14(11)**: 2916.
- [24] HUANG Y H, JIANG D L, CHEN Z M, *et al.* Fabrication and property of rGO/SiC composite. *Journal of Inorganic Materials*, 2018, **33(11)**: 1147.
- [25] RAZMJOO A, BAHARVANDI H R, EHSANI N. α SiC- β SiC-graphene composites. *Scientific Reports*, 2023, **13**: 4306.
- [26] FAN Y C, WANG L J, JIANG W. Graphene based oxide ceramic composites with high mechanical and functional performance: from preparation to property. *Journal of Inorganic Materials*, 2018, **33(2)**: 138.
- [27] TANG J, LIU M, WEI Y, *et al.* An efficient and low-cost liquid silicon infiltration method to prepare SiC-coated carbon short fiber for fiber protection of C_f/SiC ceramic matrix composites. *Ceramics International*, 2021, **47(9)**: 13235.
- [28] LIN B, WEI J, SUI T, *et al.* Effects of the surface processing on the tribological performance of C/SiCs under dry friction. *Scientific Reports*, 2020, **10**: 5990.
- [29] HU X, HUANG M, KONG N, *et al.* Enhancing the electrical insulation of highly thermally conductive carbon fiber powders by SiC ceramic coating for efficient thermal interface materials. *Composites Part B Engineering*, 2021, **227(2)**: 109398.
- [30] WANG X, SONG Z, CHENG Z, *et al.* Tensile creep properties and damage mechanisms of 2D-SiC_f/SiC composites reinforced with low-oxygen high-carbon type SiC fiber. *Journal of the European Ceramic Society*, 2020, **40(14)**: 4872.
- [31] 邓卫斌, 李铁虎, 李昊, 等. 石墨烯/陶瓷复合材料的研究进展. *固体火箭技术*, 2022, **45(1)**: 13.
- [32] 侯保江, 水涌涛, 孙向春, 等. 碳化硅陶瓷超声波辅助磨削表面完整性研究. *兵器装备工程学报*, 2019(7): 3.
- [33] 徐广平, 何江荣, 刘鹏程, 等. 振荡压力烧结技术制备高性能碳化硅陶瓷. *中国陶瓷*, 2022(3): 58.
- [34] YIN Z, ZHANG X, HUANG Z, *et al.* Paraffin/expanded graphite phase change composites with enhanced thermal conductivity prepared by implanted β -SiC nanowires with chemical vapor deposition method. *Materials Research Express*, 2018, **5(2)**: 25503.
- [35] 贺国旭, 曹测祥, 韩永军, 等. 反应烧结制备碳化硅陶瓷及其性能研究. *耐火材料*, 2022(2): 056.
- [36] 李红伟, 王瑶琪, 高莹, 等. 工业级石墨烯纳米片对碳化硅陶瓷摩擦磨损性能影响的研究. *中国陶瓷*, 2021, **57(5)**: 7.
- [37] PAPAGEORGIOU D G, KINLOCH I A, YOUNG R J. Mechanical properties of graphene and graphene-based nanocomposites. *Progress in Materials science*. 2017, **90(10)**: 75.
- [38] RAMIRE Z, VEGA-DIAZ S M, MORELOS-GÓMEZ, A, , *et al.* Synthesis of conducting graphene/Si₃N₄ composites by spark plasma sintering. *Carbon*, 2013, **57**: 425.
- [39] COLEMAN J N, LOTYA M, O'NEILL A, *et al.* Two-dimensional nanosheets produced by liquid exfoliation of layered materials. *Science*, 2011, **331(6017)**: 568.
- [40] TAN Y, LUO H, ZHANG H, *et al.* Lightweight graphene nanoplatelet/boron carbide composite with high EMI shielding effectiveness. *AIP Advances*, 2016, **6(3)**: 35208.