

TiO₂ 掺杂 SmTaO₄ 陶瓷热物理性能研究

周颖^{1,2}, 石兴华¹, 甘国友¹, 葛振华¹, 冯晶¹

(1. 昆明理工大学 材料科学与工程学院, 云南 昆明 650093)

(2. 云南省科学技术院, 云南 昆明 650000)

摘要: 热障涂层是燃气轮机高温部件保护的重要材料之一, SmTaO₄ 陶瓷具有优异的高温相稳定性和力学性能, 有望成为新型热障涂层材料。本研究采用固相法制备 TiO₂ 掺杂 SmTaO₄ 陶瓷, 结果表明: 掺杂 TiO₂ 未改变 SmTaO₄ 陶瓷晶体结构, 样品均为单斜相, 掺杂 2mol% TiO₂ 的 SmTaO₄ 陶瓷烧结过程中出现的第二相为 Sm_{0.33}TaO₃; 随着 TiO₂ 含量增加, SmTaO₄ 陶瓷的热导率先下降后上升, 当 TiO₂ 掺杂含量为 2mol% 时, 热导率最低为 1.42 W·m⁻¹·K⁻¹, 低于 SmTaO₄ (1.59 W·m⁻¹·K⁻¹, 900 °C), 与 7-8YSZ 相比 (2.1~2.7 W·m⁻¹·K⁻¹, 100~900 °C) 下降了近 30%。掺杂 2mol%TiO₂ 的 SmTaO₄ 陶瓷热膨胀系数最大值为 10.8×10⁻⁶ K⁻¹, 大于 YSZ (~10.0×10⁻⁶ K⁻¹) 和 SmTaO₄ (9.62×10⁻⁶ K⁻¹, 1200 °C), 与纯 SmTaO₄ 相比, TiO₂ 掺杂提高了 SmTaO₄ 陶瓷的热膨胀系数。因此, TiO₂ 掺杂 SmTaO₄ 陶瓷有望作为新型热障涂层材料使用。

关键词: TiO₂-SmTaO₄ 陶瓷; 热障涂层材料; 热物理性能; 热导率

中图分类号: TQ174.75⁺8.16

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2022)02-0545-07

热障涂层是高效燃气轮机稳定工作的重要材料之一, 不仅能抗腐蚀、提高工作温度, 还可以减少燃油消耗, 延长发动机使用寿命^[1,2]。热障涂层材料要具备高熔点、高温相稳定、热导率低、耐腐蚀、高温韧性优异等特点^[3,4], 还能与基体材料具有较好的相容性而不发生反应。陶瓷热障涂层与粘结层、合金基体之间的热失配是导致陶瓷热障涂层剥落失效的主要原因。氧化钇稳定氧化锆(YSZ)是目前广泛使用的热障涂层材料, YSZ 在高温下 (>1200 °C), 会转变为四方相 (t) 和立方相 (c) 的混合物, 冷却过程中四方相又转变为单斜相 (m), 仅能在低于 1200 °C 以下使用, 不能满足未来高推重比燃气轮机的发展^[5,6]; 此外, 在相对于更好地保护基体、更高的使用温度下, YSZ 热导率偏高, 找到满足相关要求的新型热障涂层材料势在必行^[7]。

当前广泛研究的新型热障涂层材料主要包括绿石榴石结构 RE₂Zr₂O₇^[8], 萤石结构 La₂Ti₂O₇^[9,10], 独居石结构 LaPO₄^[4], RE₂SiO₅^[11], 磁铅石结构 LaMgAl₁₁O₁₉ (LHA)^[12-14], 石榴石结构 Y₃Al_xFe_{5-x}O₁₂^[15], RETaO₄、RE₃TaO₇ 和 RETa₃O₉^[16]等。稀土钽酸盐具有高温 (1600 °C) 相稳定性及力学性能优异, 相变前后体积变化小等优点^[17,18]。RE₃TaO₇ 和 RETa₃O₉ 的研究, 主要集中在晶体结构、磁性和发光性能方面, Yckogawa 等^[19]

对 RE₃TaO₇ 中有序-无序相变进行了研究; Zhang 等^[20,21]对 Sm₂YTaO₇ 和 Sm₂YbTaO₇ 的热物理性能进行了研究; L. Chen^[22-25]利用固相法制备致密的块体 RETa₃O₉、RE₃TaO₇ (RE=Nd, Sm, Eu, Gd, Dy, Er) 陶瓷, 对其晶体结构、微观结构、热学和力学性质进行了研究。关于 RETaO₄ 作为热障涂层的研究, 主要集中在以下报道中: 文献[26-28]的研究表明, YTaO₄ 使用温度可以达到 1600 °C, 热导率较 YSZ 大幅下降, 具有较明显的优势; J. Feng 等^[27]利用第一性原理对 YTaO₄ 高温相变进行了研究, 并对作为热障涂层的可能性进行探究; S. Shian 等^[29]对氧化锆掺杂 YTaO₄ 相变影响和性能进行了研究; J. Wang 等^[30,31]通过固相法制备得到致密 RETaO₄ 陶瓷, 对 SmNb_{1-x}Ta_xO₄ 陶瓷^[32]热物理性能进行了研究; 前期研究发现^[33-35], 稀土钽酸盐 (RETaO₄) 体系中 SmTaO₄ 具有相对较低的热导率。M. Zhao 等^[36]利用 TiO₂ 掺杂 YSZ 制备得到具有更低热导率 YSZ 陶瓷; C. L. Wan 等^[37]利用 Ti 取代 RE₂Zr₂O₇ 陶瓷中的 Zr 从而获得性能更佳的热障涂层材料; 部分研究人员^[38,39]对 13%TiO₂-Al₂O₃ 陶瓷涂层的形貌、微观结构和显微硬度进行研究。以上分析可推断, 通过掺杂 TiO₂ 能进一步提高 SmTaO₄ 陶瓷的热学性能。

本研究采用固相法制备 TiO₂ 掺杂 SmTaO₄ 陶瓷, 主要研究 TiO₂ 掺杂对 SmTaO₄ 陶瓷热物理性能(热熔、

收稿日期: 2021-05-10

基金项目: 国家自然科学基金 (51762028); 云南省基础研究面上项目 (2019FB068)

作者简介: 周颖, 男, 1982 年生, 博士, 昆明理工大学材料科学与工程学院, 云南 昆明 650093, E-mail: zhouying602@126.com

热扩散系数、热导率)的影响,探讨 TiO₂ 掺杂 SmTaO₄ 陶瓷作为热障涂层材料应用的可能性。

1 实验

采用固相烧结合成 TiO₂ 掺杂 SmTaO₄ 陶瓷,按摩尔比例 1:1 称取 Sm₂O₃ 和 Ta₂O₅,然后按掺杂比例称取 (0、2%、4%、6%、8%、10%,摩尔分数) TiO₂,放入球磨罐中,添加适量的无水乙醇混合,置于行星式球磨机中球磨(转速 300~500 r/min,球磨时间 600~720 min),将球磨好的混合溶液放入电热鼓风干燥箱中干燥(干燥温度 60~80 °C,干燥时间为 10~24 h)。干燥后的粉体过 50 μm (300 目)筛,放入玛瑙研钵中进行研磨,研磨后的粉体装入模具中,压制成形(压力 6~8 MPa,时间为 2 min);将压制好的圆片(直径 15 mm×厚度 3 mm)放入高温炉中,在 1600 °C 下烧结 10 h,随炉冷却至室温,得到 TiO₂ 掺杂 SmTaO₄ 陶瓷样品。

对样品进行 X 射线衍射(XRD)物相表征;采用超声反射法测得试样纵向和横向声速,利用 DIL-402PC (Netzsch)热机械分析仪测试实验样品的热膨胀系数;将样品制成直径 6 mm×厚度(1~2) mm 的圆片,利用德国耐驰公司生产的 LFA-427 激光导热仪来测定实验样品的热扩散系数,热导率由式(1)计算:

$$k = \alpha \rho C_p \quad (1)$$

式中, k 是热导率, α 是热扩散系数, C_p 是比热容。

样品的摩尔热容 C_p 通过 Kopp-Neumann rule 计算:

$$C_p = a + bT + cT^{-2} \quad (2)$$

式中 a 、 b 、 c 为经验参数,通过查热力学手册得到, T 为温度常数。

样品在烧结过程中,气孔对陶瓷热导率产生重要影响,可以通过修正公式,对测试的热导率进行修正,实际热导率和理论热导率换算关系如式(3):

$$\frac{k'}{k} = 1 - \frac{4}{3}\phi \quad (3)$$

式中, ϕ 是样品的孔隙率,可通过下式计算:

$$\phi = 1 - \frac{\rho}{\rho_0} \quad (4)$$

式中, ρ 为样品实际密度,采用阿基米德排水法测得; ρ_0 为样品理论密度,通过查询标准 JCPDS 获得。

2 结果与讨论

2.1 物相及微观形貌分析

TiO₂ 掺杂 SmTaO₄ 陶瓷的 XRD 图谱如图 1 所示,将它与 SmTaO₄ 标准卡片 (24-1010) 对比,发现掺杂 2% TiO₂ 的样品在 $2\theta=24^\circ$ 附近出现了第二相衍射峰。当掺杂量大于 2%时,第二相衍射消失,样品为单斜相,说明掺杂后 Ti 离子进入了 SmTaO₄ 陶瓷晶格中,掺杂不同含量 TiO₂ 并未对其晶体结构类型产生影响。根据相关文献研究^[40],当 RTaO₄ 陶瓷烧结温度在 1500~1600 °C 时,陶瓷中出现了微量的第二相 ($R_{0.33}TaO_3$ 和 R_3TaO_7),1700 °C 退火后,RTaO₄ 陶瓷为单斜相,不存在第二相。将 $2\theta=24^\circ$ 附近出现的第二相衍射峰与标准卡片 (18-1479) 对比,得知第二相为 $Sm_{0.33}TaO_3$,说明 TiO₂ 掺杂量大于 2%将对第二相的生成有抑制作用。

Z. X. Qu 等^[41]通过测定 O 1s 的 XPS 谱图确定了 Mg²⁺ 离子在 Sm₂Zr₂O₇ 中的化学状态。采用相同方法,对 TiO₂ 掺杂 SmTaO₄ 陶瓷 O 1s 的 XPS 测定,用 2 个 Gaussian 函数 L1 和 L2 对 O 1s 电子 XPS 峰进行拟合,结果如图 2 所示。随着 TiO₂ 掺杂量增加,除了掺杂 2% TiO₂ 的 SmTaO₄ 陶瓷外,其他样品 O 1s 电子结合能没有发生改变,这表明 TiO₂ 掺杂并未对 O 元素周围的电负性造成大改变,与 XRD 分析结果一致。因此,掺杂 2% TiO₂ 的样品,由于第二相 $Sm_{0.33}TaO_3$ 的出现,对 O 元素周围的电负性造成较大改变,导致 O 1s 电子结合能发生变化。

TiO₂ 掺杂 SmTaO₄ 陶瓷 SEM 照片如图 3 所示,陶瓷的晶粒形状不规则,晶界清晰可见,晶粒尺寸在 2~15 μm 之间。SEM 图像显示,陶瓷表面较为致密,无明显裂纹和较大的气孔,与纯 SmTaO₄ 相比,掺杂

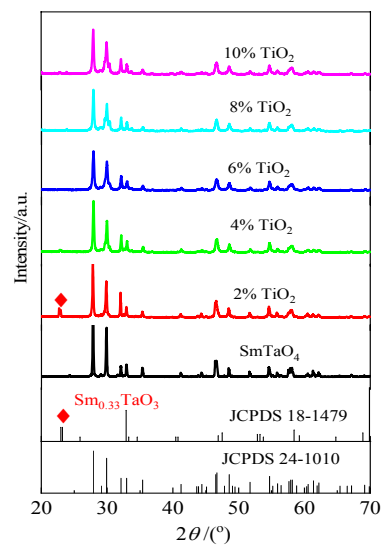


图 1 TiO₂ 掺杂 SmTaO₄ 陶瓷的 XRD 图谱

Fig.1 XRD patterns of TiO₂-SmTaO₄ ceramics

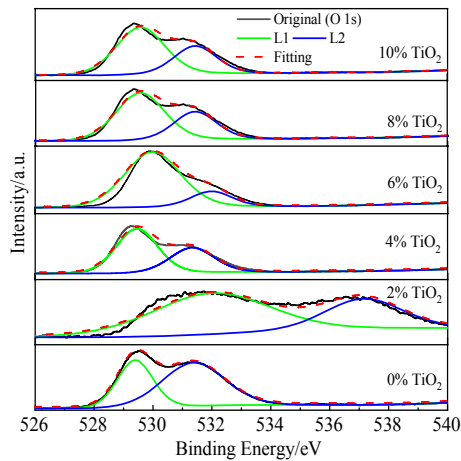


图 2 TiO₂ 掺杂 SmTaO₄ 陶瓷 XPS 图谱及高斯函数拟合

Fig.2 O 1s XPS spectra and the Gaussian functional fitted curves of TiO₂-SmTaO₄ ceramics

TiO₂ 使样品的晶粒尺寸变小, 说明 TiO₂ 掺杂能够有效促进晶粒细化, 晶粒细化可以提高热障涂层材料的强度。

2.2 热物理性能分析

根据 Neumann-Kopp 规则计算得到 TiO₂ 掺杂 SmTaO₄ 陶瓷随温度变化的比热容如图 4a 所示, 随着 TiO₂ 掺杂含量增加, 比热容缓慢上升。TiO₂ 掺杂 SmTaO₄ 陶瓷热扩散系数如图 4b 所示, 热扩散系数随着温度的升高而减小(0.42~1.19 mm²/s, 100~900 °C), 热扩散系数具有明显的 $\alpha \propto T^{-1}$ 关系; 随着 TiO₂ 含量增加, 样品的热扩散系数先下降后上升, TiO₂ 掺杂含量为 2% 时, 样品热扩散系数最低(0.42 mm²/s, 900 °C)。

热导率由热容, 热扩散系数和密度计算得到, 通过气孔率修正得到热导率曲线如图 4c 所示, 热导率与热扩散系数的变化规律相似, 与工业应用热障涂层材料 7-8YSZ 相比, 掺杂 2% TiO₂ 的样品最低热导率为 1.42 W·m⁻¹·K⁻¹, 比 YSZ (2.1~2.7 W·m⁻¹·K⁻¹, 100~900 °C) 下降了近 30%, 也低于 SmTaO₄(1.59 m⁻¹·K⁻¹, 900 °C)。

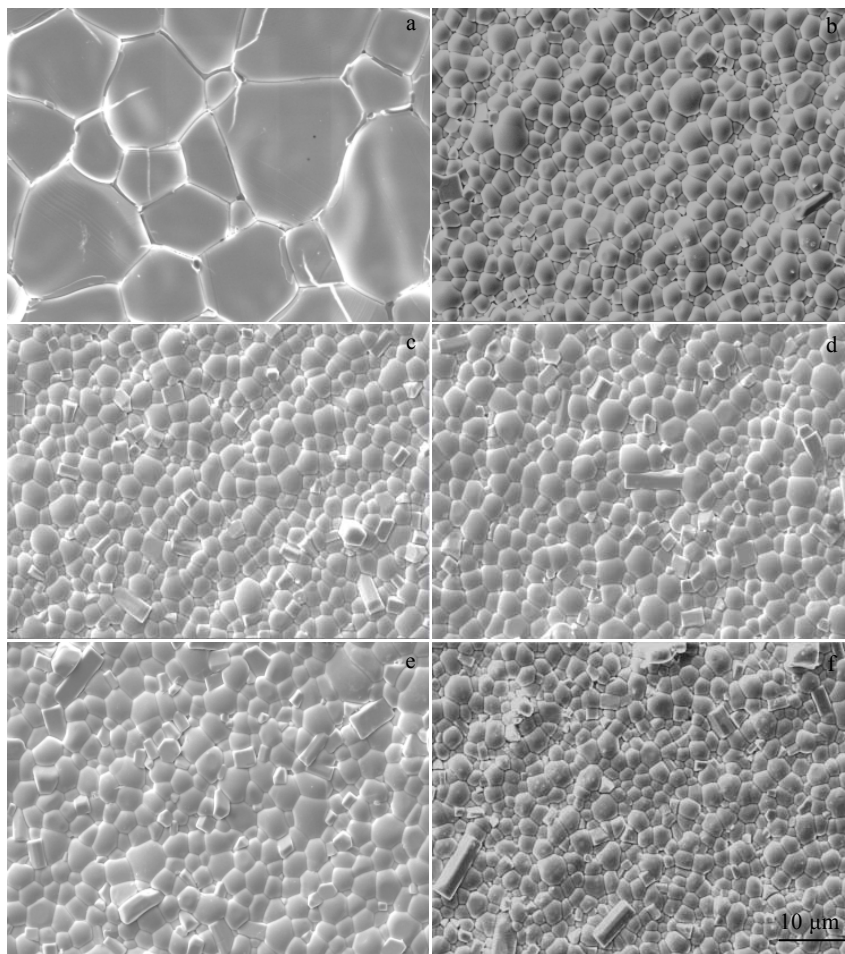


图 3 TiO₂ 掺杂 SmTaO₄ 陶瓷的 SEM 照片

Fig.3 SEM images of TiO₂-SmTaO₄ ceramics with different TiO₂ contents: (a) 0%, (b) 2%, (c) 4%, (d) 6%, (e) 8%, and (f) 10%

利用超声反射法测得 TiO₂ 掺杂 SmTaO₄ 陶瓷的纵向和横向声速 v_L 和 v_T ，平均声子传播速度 v_m 由式 (5) 计算，声子平均自由程由式 (6) 计算：

$$v_m = \left[\frac{1}{3} \left(\frac{1}{v_L^3} + \frac{1}{v_T^3} \right) \right]^{-\frac{1}{3}} \quad (5)$$

$$l = 3 \frac{\alpha}{v_m} \quad (6)$$

式 (6) 中， α 为热扩散系数，计算结果如图 4d 所示。随着温度升高样品的声子平均自由程不断减小，声子平均自由程随 TiO₂ 掺杂量变化趋势与热扩散系数和热导率的变化趋势类似。掺杂 2% TiO₂ 的 SmTaO₄ 陶瓷具有较低热导率，其原因是具有较小的声子平均自由程；对于绝缘固体陶瓷材料来说，热量传导主要通过晶格振动来完成，声子就是量子化的晶格振动，式 (7) 为热导率微观表达式^[42,43]：

$$k = \frac{1}{3} \int_0^{\omega_m} c(\omega) v l(\omega, T) d\omega \quad (7)$$

式 (7) 中， $c(\omega)$ ， $l(\omega, T)$ 和 v 分别为单位体积热容，声子平均自由程，平均声速。热导率主要由声子平均自由程决定，陶瓷的声子平均自由程随温度升高

而降低。

材料热导率较低可以通过声子导热、空位、缺陷来解释。声子晶格缺陷发生相互作用时，将引起声子散射，这些晶格缺陷包括空位、位错、晶界以及具有不同质量的原子或其它声子，引入晶格畸变也能加剧声子的散射过程，这些晶格缺陷的作用可通过它们对声子平均自由程的影响定量表示如下^[44]：

$$\frac{l}{l(\omega, T)} = \frac{l}{l_{i(\omega, T)}} + \frac{l}{l_{p(\omega)}} + \frac{l}{l_{(b)}} \quad (8)$$

式 (8) 中， $l_{i(\omega, T)}$ ， $l_{p(\omega)}$ ， $l_{(b)}$ 分别是本征电导率、点缺陷散射、晶界散射对平均自由程的影响。掺杂 2% TiO₂ 的样品烧结过程中产生了第二相 Sm_{0.33}TaO₃，第二相是最强的声子散射中心，能有效减小声子平均自由程；同时，第二相作为间隙原子的存在，使晶体结构发生畸变，增强声子散射，从而降低了材料的热导率。因此，掺杂 2% TiO₂ 的样品热导率最低。

为了进一步研究 TiO₂ 掺杂对 SmTaO₄ 陶瓷热导率的影响，对陶瓷热导率的实验值和理论值进行了分析。根据相应参考文献，在热传输理论中，多晶材料的声子平均自由程可以被定义为^[45]：

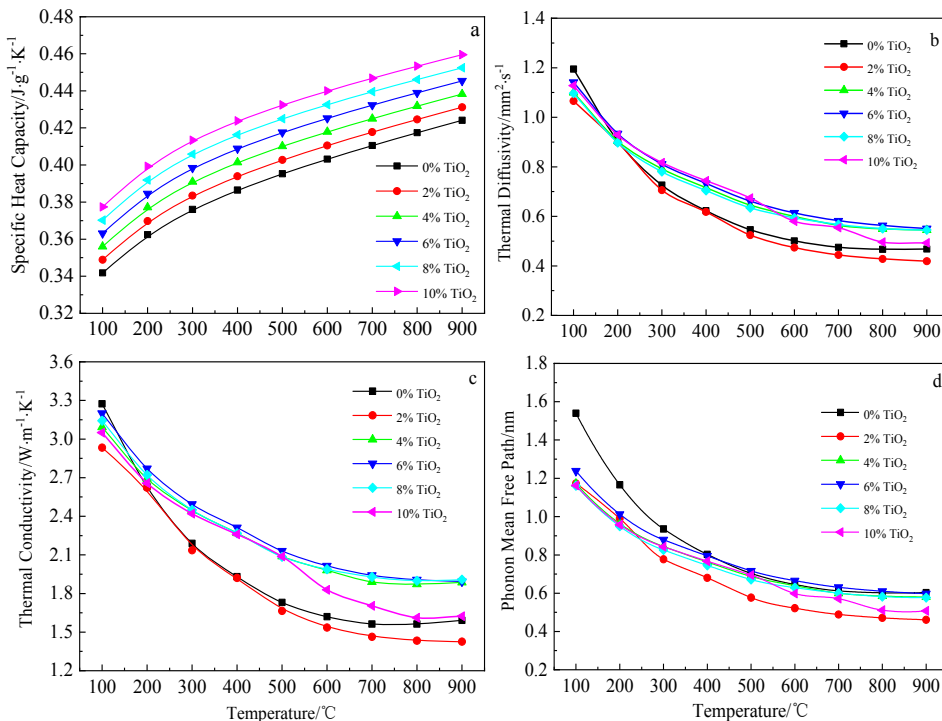


图 4 TiO₂ 掺杂 SmTaO₄ 陶瓷热物理性能

Fig.4 Thermophysical properties of TiO₂-SmTaO₄ ceramics: (a) specific heat capacity, (b) thermal diffusivity, (c) thermal conductivity, and (d) phonon mean free path

$$l = \frac{1}{2} l_0 \left[\exp \left(\frac{\Theta_D}{bTn^{1/3}} \right) \right] \quad (9)$$

式 (9) 中 Θ_D , n 和 T 分别表示德拜温度, 原胞中原子个数和绝对温度, 其中 $b \approx 2$ 。在高温下 ($T > \Theta_D/bn^{1/3}$), 声子平均自由程可以表达为^[46]:

$$\frac{1}{l} \approx \left[\frac{C}{\exp \left(\frac{\Theta_D}{bTn^{1/3}} \right) - 1} \right] + D = \left(\frac{bCn^{1/3}}{\Theta_D} \right) T + \left(D - \frac{1}{2} C \right) \quad (10)$$

结合公式 (8) ~ (10), 热扩散系数 α 与温度的关系可以近似表达为:

$$\frac{1}{\alpha} \approx \frac{1}{\Lambda} \approx \left(\frac{bCn^{1/3}}{\Theta_D} \right) T + \left(D - \frac{1}{2} C \right) \quad (11)$$

根据图 4b 中的数据, TiO₂ 掺杂 SmTaO₄ 陶瓷热扩散系数的倒数 ($1/\alpha$) 与温度关系如图 5 所示。为了更直观地观察 $1/\alpha$ 是否与温度呈现线性关系, 对 $1/\alpha$ 进行一次函数拟合 (如图 5 中虚线所示), 从线性拟合的斜率和截距值, 可计算出参数 C 和 D (如表 1 所示)。从图 5 可以看出, TiO₂ 掺杂 SmTaO₄ 陶瓷的热导率与 $1/T$ 成正比关系, 这说明声子间的散射是造成热导率降低的主要机制, 但是在 900 °C 时偏离线性关系, 这是由于在高温时热辐射增大造成的。

根据公式 (11) 和表 1 中的数据, 计算 TiO₂ 掺杂 SmTaO₄ 陶瓷理论热导率, 与实验值比较结果如图 6 所示。图 6a 为 100 和 900 °C 下, 掺杂不同含量 TiO₂ 样品的热导率实验值和理论值。在 TiO₂ 含量较低时, 理论计算和实验值符合较好, 随着 TiO₂ 掺杂增大, 实验值和理论值出现了偏离, 在 TiO₂ 掺杂量 $\geq 10\%$ 时, 实验值低于理论值, 偏离超过 14%, 主要原因是由于掺杂量增大, Ti⁴⁺ 与 Sm³⁺ 离子之间巨大原子质量差与离子半径差增大, 增强声子散射降低了热导率。

掺杂 2% TiO₂ 样品的理论热导率, 与实验值比较结果如图 6b 所示, 从图中可以看出实验热导率随温度的变化与理论值相似, 呈现 $k \propto 1/T$ 的规律, 随温度升高, 实验值与理论值趋于接近; 在 300~800 °C, 热导率实验值高于计算值, 主要原因是在高温时热辐射增大。

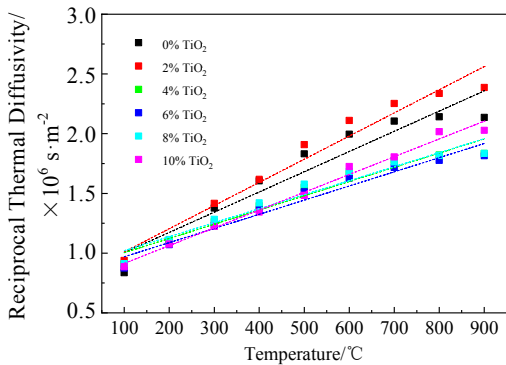


图 5 TiO₂ 掺杂 SmTaO₄ 陶瓷热扩散系数的倒数拟合

Fig.5 Inverse thermal diffusivities of TiO₂-SmTaO₄ ceramics

表 1 TiO₂-SmTaO₄ 陶瓷拟合参数 C 和 D

Table 1 Fitting parameters C and D of TiO₂-SmTaO₄ ceramics

TiO ₂ content/mol%	α^{-1} experiment	C	D
0	1693T+835407	86627	878720
2	1938T+817348	116242	875469
4	1191T+884951	73753	921827
6	1185T+851473	72465	887705
8	1171T+903811	73174	940397
10	1488T+765760	95315	813417

图 7a 显示 TiO₂ 掺杂 SmTaO₄ 陶瓷形变量随着温度的升高而增大, TiO₂ 掺杂能够有效增大形变量; 图 7b 显示 TiO₂ 掺杂 SmTaO₄ 陶瓷的热膨胀系数随着温度升高而增大, 在 1200 °C 时最大值为 $10.8 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ (2 mol%), 大于 YSZ ($10.0 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$, 1200 °C) 和 SmTaO₄ ($9.62 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$, 1200 °C)。TiO₂ 掺杂 SmTaO₄ 陶瓷的热膨胀系数随着掺杂量增大先升高后下降, 与纯 SmTaO₄ 相比, TiO₂ 掺杂提高了样品的热膨胀系数。高的热膨胀系数能够减少合金基体与热障涂层之间的热失配, 延长其使用寿命。此外, 通过热膨胀率 (dL/L_0) 以及热膨胀系数 (TEC) 随着温度的变化规律可以看出 TiO₂ 掺杂 SmTaO₄ 陶瓷具有良好的高温相稳定性。

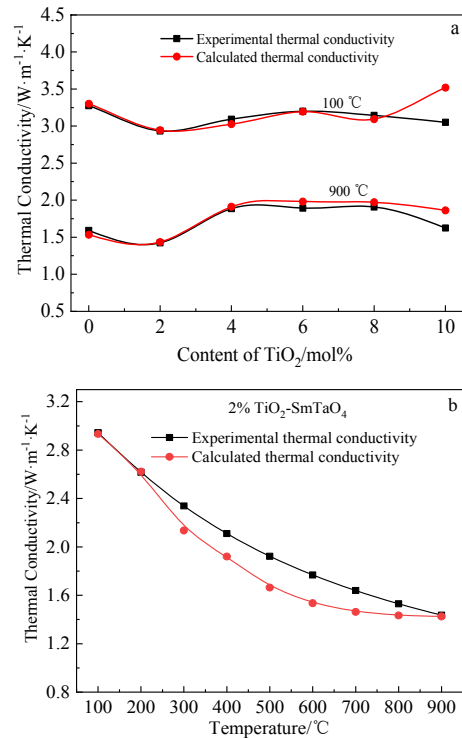


图 6 TiO₂ 掺杂 SmTaO₄ 陶瓷热导率实验值和理论值

Fig.6 Predicted and experimental thermal conductivity of TiO₂-SmTaO₄ ceramics with different TiO₂ contents at 100 °C and 900 °C (a) with 2mol% TiO₂ at different temperatures (b)

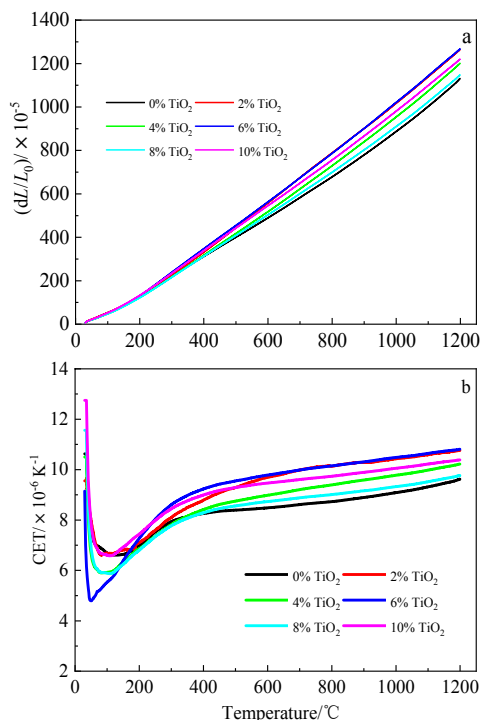


图 7 TiO₂ 掺杂 SmTaO₄ 陶瓷的热膨胀变形量及热膨胀系数

Fig.7 Thermal expansion rate (a) and thermal expansion coefficients (b) of TiO₂-SmTaO₄ ceramics

3 结 论

1) TiO₂ 掺杂 SmTaO₄ 陶瓷未改变 SmTaO₄ 陶瓷晶体结构, 样品均为单斜相; 掺杂 2mol% TiO₂ 的样品出现了第二相 Sm_{0.33}TaO₃。

2) 掺杂 2% TiO₂ 的样品最低热导率为 1.42 W·m⁻¹·K⁻¹, 比 7-8YSZ (2.1~2.7 W·m⁻¹·K⁻¹, 100~900 °C) 下降了近 30%, 低于 SmTaO₄ (1.59 W·m⁻¹·K⁻¹, 900 °C), 主要原因是烧结过程中产生了第二相 Sm_{0.33}TaO₃, 第二相是最强的声子散射中心, 能有效减小声子平均自由程, 降低了热导率。

3) 当 TiO₂ 掺杂量为 2% 时, 热膨胀系数最大值为 10.8×10⁻⁶ K⁻¹, 大于 YSZ (10.0×10⁻⁶ K⁻¹, 1200 °C) 和 SmTaO₄ (9.62×10⁻⁶ K⁻¹, 1200 °C), 与纯 SmTaO₄ 相比, TiO₂ 掺杂提高了样品的热膨胀系数。高的热膨胀系数能减少合金基体与热障涂层之间的热失配, 延长其使用寿命。

参考文献 Reference

[1] Racek O, Berndt C, Berndt C *et al. Surface & Coatings Technology*[J], 2007, 202(2): 362
 [2] Li Dachuan(李大川), Zhao Huayu(赵华玉), Zhong Xinghua(种

兴华) *et al. Journal of Inorganic Materials(无机材料学报)*[J], 2017, 32(6): 571
 [3] Evans A G, Mumm D R, Hutchinson J W *et al. Progress in Materials Science*[J], 2001, 46(5): 505
 [4] Cao X Q, Vassen R, Stoeber D. *Journal of the European Ceramic Society*[J], 2004, 24(1): 1
 [5] Clarke D R, Levi C G. *Annual Review of Materials Research*[J], 2003, 33(1): 383
 [6] Schulz U, Leyens C, Fritscher K *et al. Aerospace Science and Technology*[J], 2003, 7(1): 73
 [7] Clarke D R. *Surface and Coatings Technology*[J], 2003, 163-164: 67
 [8] Vaßen R, Cao X Q, Tietz F *et al. Journal of the American Ceramic Society*[J], 2004, 83(8): 2023
 [9] Cao X Q, Vassen R, Fischer W *et al. Advanced Materials*[J], 2003, 15(17): 1438
 [10] Yang Bin(杨斌), Li Linyan(李林艳), Fan Minguang(范闽光) *et al. Journal of Inorganic Materials(无机材料学报)*[J], 2014, 29(12):1301
 [11] Tian Z, Zheng L. *Journal of the European Ceramic Society*[J], 2016, 36(1): 189
 [12] Friedrich, Gadow R, Schirmer T. *Journal of Thermal Spray Technology*[J], 2001, 10(4): 592
 [13] Friedrich, Gadow R, Lischka M H. *Ceramic Engineering and Science Proceedings*[J], 2001, 22(4): 375
 [14] Gadow R, Lischka M. *Surface and Coatings Technology*[J], 2002, 151-152: 392
 [15] Nitin P P, Klemens P G. *Journal of the American Ceramic Society*[J], 1977, 80(4): 1018
 [16] Pitek F M, Levi C G. *Surface and Coatings Technology*[J], 2007, 201(12): 6044
 [17] Feng J, Xiao B, Zhou R *et al. Acta Materialia*[J], 2013, 61(19): 7364
 [18] Feng J, Xiao B, Zhou R *et al. Scripta Materialia*[J], 2013, 69(5): 401
 [19] Yokogawa Y, Yoshimura M, Sōmiya S. *Solid State Ionics*[J], 1988, 28-30(3): 1250
 [20] Zhang H, Yu H P. *Ceramics International*[J], 2016, 13(42): 14695
 [21] Yu Jianhua(于建华), Zhao Huayu(赵华玉), Zhou Xiaming(周霞明). *Journal of Inorganic Materials(无机材料学报)*[J], 2011, 26(7): 696
 [22] Chen L, Wu P, Song P *et al. Journal of the American Ceramic Society*[J], 2018, 101: 4503
 [23] Chen L, Jiang Y, Chong X *et al. Journal of the American*

- Ceramic Society*[J], 2018, 101: 1266
- [24] Chen L, Wu P, Feng J. *International Journal of Applied Ceramic Technology*[J], 2019, 16: 230
- [25] Chen L, Song P, Feng J. *Scripta Materialia*[J], 2018, 152: 117
- [26] Shian S, Sarin P, Gurak M *et al.* *Acta Materialia*[J], 2014, 69(5): 196
- [27] Feng J, Shian S, Xiao B *et al.* *Physical Review B*[J], 2014, 90(9): 094 102
- [28] Pitek F M, Levi C G. *Surface & Coatings Technology*[J], 2007, 201(12): 6044
- [29] Shian S, Sarin P, Clarke D R *et al.* *Acta Materialia*[J], 2014, 69(5): 196
- [30] Wang J, Zhou R, Feng J *et al.* *Ceramics International*[J], 2016, 42: 13 876
- [31] Wang J, Chong X Y, Feng J. *Scripta Materialia*[J], 2017, 126: 24
- [32] Luo Y Y, Song P, Feng J *et al.* *Ceramics International*[J], 2018, 44: 13 999
- [33] Zhou Y, Gan G Y, Ge Z H *et al.* *Materials Research Express*[J], 2020, 7: 015 204
- [34] Zhou Y, Gan G Y, Ge Z H *et al.* *Journal of Materials Research*[J], 2020, 35: 242
- [35] Zhou Y, Gan G Y, Ge Z H *et al.* *Materials Today Communications*[J], 2021, 26: 101 927
- [36] Zhao M, Pan W. *Acta Materialia*[J], 2013, 61(14): 5496
- [37] Wan C L, Qu Z X, Du A B *et al.* *Acta Materialia*[J], 2009, 57(16): 4782
- [38] Wang Dongsheng(王东生), Tian Zongjun(田宗军), Shen Lida(沈理达) *et al.* *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2009, 38(9): 1542
- [39] Tian Zongjun(田宗军), Wang Dongsheng(王东生). *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2009, 38(10): 1740
- [40] Wang J, Zhou Y, Chong X Y *et al.* *Ceramics International*[J], 2016, 42: 13 876
- [41] Qu Z X, Wan C L, Pan W. *Chemistry of Materials*[J], 2007, 19: 4913
- [42] Berman R. *Thermal Conduction in Solids*[M]. Oxford: Clarendon Press, 1976: 1
- [43] Klemens P G. *Theory of the Thermal Conductivity of Solids, in Thermal Conductivity*[M]. London and New York: Tye R P Academic Press, 1969: 2
- [44] Chevalier J, Gremillard L, Virkar A V *et al.* *Journal of the American Ceramic Society*[J], 2009, 92(9): 1901
- [45] Bruls R J, Hintzen H T, Metselaar R. *Journal of the European Ceramic Society*[J], 2005, 25: 767
- [46] Tian Z L, Sun L C, Wang J M *et al.* *Journal of the European Ceramic Society*[J], 2015, 35: 1923

Thermophysical Properties of TiO₂ Doped SmTaO₄ Ceramics

Zhou Ying^{1,2}, Shi Xinghua¹, Gan Guoyou¹, Ge Zhenhua¹, Feng Jing¹

(1. Faculty of Materials Science and Engineering, Kunming University of Science and Technology, Kunming 650093, China)

(2. Yunnan Provincial Institute of Science and Technology, Kunming 650000, China)

Abstract: Thermal barrier coatings are one of the most important materials in gas turbine to protect the high temperature components. The SmTaO₄ ceramics have excellent high-temperature phase stability and mechanical properties and show great potential for use as next-generation thermal barrier coating materials. In this research, the TiO₂-SmTaO₄ ceramics were prepared via high temperature solid-state reaction. The results show that TiO₂ doped SmTaO₄ do not change the crystal structure of the SmTaO₄ itself and its phase structure is still a single monoclinic phase. The TiO₂-SmTaO₄ ceramics doped with 2mol% TiO₂ have a second phase, which is inferred as Sm_{0.33}TaO₃. The TiO₂-SmTaO₄ ceramics have a lower thermal conductivity (1.42 W·m⁻¹·K⁻¹ at 900 °C) than 7-8YSZ (2.1~2.7 W·m⁻¹·K⁻¹, 100~900 °C) and SmTaO₄ (1.59 W·m⁻¹·K⁻¹, 900 °C), with a minimum nearly 30% lower than YSZ. The highest thermal expansion coefficient is detected in 2% TiO₂-doped SmTaO₄ ceramics (10.8×10⁻⁶ K⁻¹), which is much higher than those of YSZ (10.0×10⁻⁶ K⁻¹) and SmTaO₄ (9.62×10⁻⁶ K⁻¹). Compared with pure SmTaO₄, TiO₂ doping increases the thermal expansion coefficient of TiO₂-SmTaO₄ ceramics. This indicates that TiO₂-SmTaO₄ ceramics have the potential to be employed as thermal barrier coatings.

Key words: TiO₂-SmTaO₄ ceramics; thermal barrier coating materials; thermo-physical properties; thermal conductivity

Corresponding author: Gan Guoyou, Ph. D., Professor, Faculty of Materials Science and Engineering, Kunming University of Science and Technology, Kunming 650093, P. R. China, E-mail: ganguoyou@sina.com