

# 致密 SiC 涂层在水蒸气及与空气混合气氛中的氧化行为

杨 辉, 周 平, 张凯红, 李自强, 刘小雪, 赵宏生

(清华大学 核能与新能源技术研究院, 北京 100084)

**摘 要:** 本实验主要针对在球形燃料元件基体石墨样品上用流化床化学气相沉积工艺所制备的致密 SiC 抗氧化涂层, 于 1400 °C 下, 对其在水蒸气及与空气混合气氛中的氧化行为进行研究与机理分析。结果表明, 气氛对氧化层厚度有显著影响。单一水蒸气情况下, 所得氧化层的厚度均比混合气氛的氧化层厚度薄。单一水蒸气氧化后的样品比混合气氛氧化的样品具有更平整的表面、更轻微的点状开裂和更小的线性裂纹。致密 SiC 涂层氧化均发生在表面, 没有破坏致密层的结构。氧化机理分析表明, 致密 SiC 涂层的表面形貌变化、裂纹的产生以及厚度变化等均与氧化竞争反应和氧化中间产物有关。致密 SiC 涂层在空气和水蒸气等不同环境的氧化过程中, 均能在表面形成一定厚度的 SiO<sub>2</sub> 自愈层, 且 10 h 的氧化后, 涂层的氧化深度仅在表层的 3.5 μm 以内, 没有破坏致密层结构。

**关键词:** 高温气冷堆; SiC; 抗氧化; 机理

**中图分类号:** TQ174.75<sup>+</sup>8.16

**文献标识码:** A

**文章编号:** 1002-185X(2020)02-0526-07

石墨具有高温强度高、导热性好、惰性气氛下高温稳定性好以及优良的核性能, 是高温气冷堆 (HTR) 中重要的材料之一, 是反应堆结构材料、屏蔽层材料、慢化材料的理想选择<sup>[1]</sup>。但是, 氧化性环境中石墨在 500 °C 以上极易受到氧化性介质的氧化侵蚀而失效。因而, 苛刻的应用环境是石墨优良性能得以发挥的前提条件。

在正常运行工况下, HTR 所采用的高纯 He 气中存在的水蒸气 (H<sub>2</sub>O)、氧气 (O<sub>2</sub>)、二氧化碳 (CO<sub>2</sub>) 等氧化性介质会造成石墨的缓慢氧化。此外, 在极端事故条件下, 当反应堆一回路发生破口事故时, 空气、水蒸气等氧化性介质会不同程度地进入堆芯, 形成复杂的高温、强辐照氧化性环境, 石墨会直接暴露在空气中<sup>[2]</sup>。因此, 为了提高 HTR 的安全性, 必须提高 HTR 石墨的抗氧化性。

在提高石墨的抗氧化性能方法中, 表面涂层是应用比较广泛的技术。目前已经有多种抗氧化涂层体系, 如 SiC/SiO<sub>2</sub><sup>[3]</sup>、SiC/ZrC<sup>[4]</sup>、SiC/MoSi<sub>2</sub><sup>[5]</sup>等。其中, SiC 涂层以其优异的抗氧化和耐辐照性能成为石墨抗氧化涂层的候选材料体系之一, 它在氧化环境下可以在涂层表面形成致密的非晶 SiO<sub>2</sub> 层, 阻挡氧化性气体向石墨的侵蚀。许多研究小组通过各种方法在石墨上制备了

SiC 涂层, 并显著提高了石墨在空气中的抗氧化性<sup>[6-8]</sup>。

目前, 人们对 SiC 材料在多种气氛中的氧化行为进行了比较深入的研究, 发现 SiC 的氧化模式分为 2 种: 在低温、高氧分压条件下, SiC 表面能够形成一层致密的 SiO<sub>2</sub> 层, 显著减缓 SiC 的氧化速率, 从而使 SiC 可以保持长期稳定, 这种氧化方式称为 SiC 的钝性氧化; 但在高温、低氧分压条件下, SiC 氧化时不是在其表面形成致密的 SiO<sub>2</sub> 层, 而是产生挥发性的 SiO, 从而使 SiC 快速氧化, 这种氧化方式称为 SiC 的活性氧化<sup>[9-12]</sup>。但是在模拟实际工况条件下, 对高温堆进水进气环境下的氧化行为研究比较少。

在本实验中, 利用喷动流化床化学气相沉积技术 (FB-CVD) 在石墨球表面制备了一层致密的 SiC 涂层, 模拟实际工况, 研究了 SiC 涂层在水蒸气及与空气混合气体中的氧化行为, 并对其氧化机理进行了探究。

## 1 实 验

所用的基体材料是直径为 15 mm 的石墨球, 其性质见参考文献<sup>[13]</sup>。SiC 涂层由 FB-CVD 制备, 以甲基三氯硅烷 (CH<sub>3</sub>SiCl<sub>3</sub>, MTS) 为前驱体, H<sub>2</sub> 和 Ar 为流化气体, 其他的制备工艺参数如表 1 所示。

收稿日期: 2019-02-18

基金项目: 国家重大科技专项 (ZX06901); 国家自然科学基金 (21671116)

作者简介: 杨 辉, 女, 1990 年生, 博士生, 清华大学核能与新能源技术研究院, 北京 100084, 电话: 010-89796090, E-mail: yanghui17@mails.tsinghua.edu.cn

表 1 SiC 涂层样品制备参数

Table 1 Preparation parameters of SiC coating

Deposition temperature/°C	Ratio of H <sub>2</sub> /Ar	Deposition time/h
1600	9:1	1.0

涂层样品置于 ZrO<sub>2</sub> 坩埚内, 放置于管式炉恒温区中间位置, 在 Ar 气中升温至 1400 °C。随后, 按照表 2 所示实验参数将反应气体通入管式炉内, 实验时间达到 10 h 后, 再次切换为 Ar 气, 程序降温至室温。在氧化过程开始和结束的前 15 min 和后 15 min 内, 迅速对气体进行切换。

氧化后的样品表面及断面的微观结构采用高倍体式显微镜 (ZEISS Stemi 2000-C) 和 FEI Quanta 200 FEG 场发射扫描电子显微镜进行观察和分析。采用 Thermo Scientific Escalab 250Xi 型光电子能谱仪 (X-ray photoelectron spectroscopy, XPS) 对表面化合

表 2 氧化实验参数及氧化层厚度

Table 2 Experimental parameters of oxidation process and the thickness of oxide layer

Sample No.	H <sub>2</sub> O vapour concentration/g·m <sup>-3</sup>	Carrier flow/L·min <sup>-1</sup>	Thickness μm
1	5	Air 1.8	1.7~1.9
2	10	Air 1.8	2.9~3.1
3	50	Air 1.8	1.6~1.8
4	100	Air 1.8	3.0~3.2
5	10	He 1.8	0.8~1.0

物构成进行检测与分析。

## 2 结果与讨论

### 2.1 涂层氧化前后微观结构与形貌分析

由 FB-CVD 制备的 SiC 涂层的表面形貌如图 1a 所示。可以看出 SiC 晶粒完整, 晶界清晰, 且没有出现其他杂质附着现象。涂层表面出现了明显的晶粒生长和孔洞, 如图 1b 所示。图 1c 显示的是表面凸起的 SiC 晶粒位置; 图 1d 为凹陷位置的 SiC 晶粒分布。致密 SiC 涂层断面形貌如图 2 所示。从图中可以看出, SiC 涂层厚度为 30 μm 左右, 涂层内部呈现出晶粒致密堆积结构, 没有贯穿性的裂纹和孔隙出现, 涂层完整性好。

SiC 涂层样品在不同水蒸气含量的空气中氧化 10 h 后的表面微观形貌如图 3 所示。可以看出, 空气携带不同含量水蒸气氧化的过程中, 样品表面均出现了 SiC 涂层被氧化而导致的微观形貌改变。从图 3 中可以看出, 原始 SiC 涂层的表面晶粒在不同气氛中氧化后, 涂层表面仍然有凸起颗粒与凹陷区域 2 种特征形貌, 但是 SiC 表面已经由图 1 中所示的完整的晶粒和清晰的晶界转变为一种凸起与凹陷分布的模糊表面。图 3 中已经不能看出图 1 中 SiC 晶粒的规则表面, 而是呈现出一种非均匀表面。同时, 表面呈现出一种类似于液相覆盖后凝固的状态, 凸起位置附近有明显的孔洞, 凸起位置四周呈现出一种相对平整的状态。对比涂层氧化后的表面形貌可以发现, 当空气中水蒸气

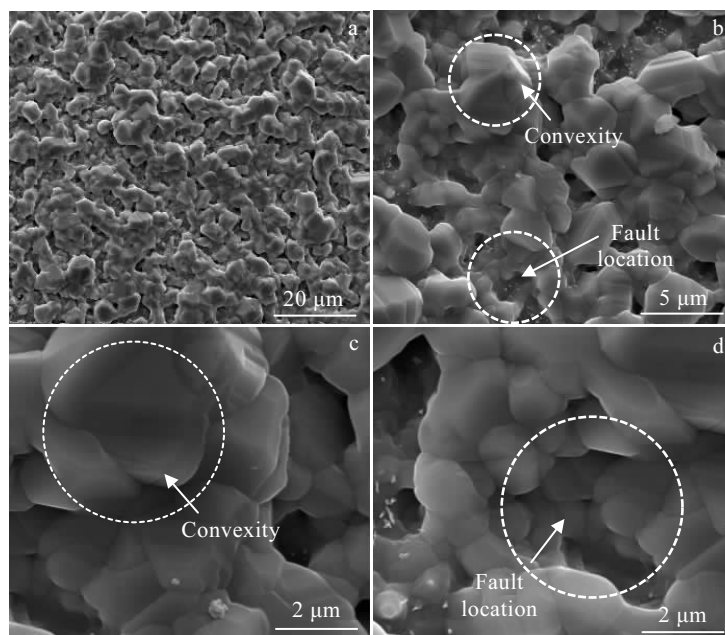


图 1 SiC 涂层表面微观形貌

Fig.1 Morphologies of SiC coating

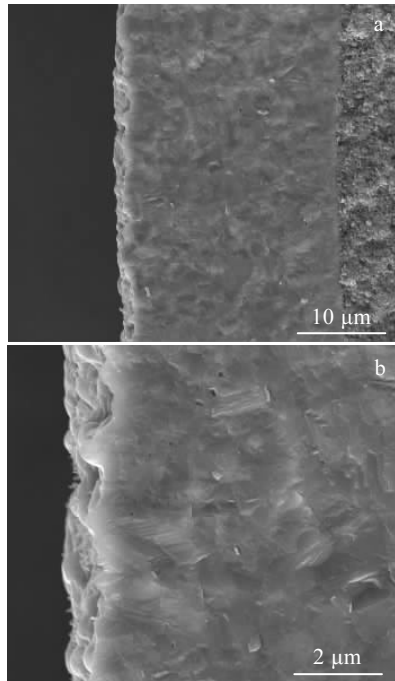


图 2 SiC 涂层断面微观形貌

Fig.2 Morphologies of section of SiC coating

含量达到  $10 \text{ g/m}^3$  时 (图 3c、3d), 涂层表面氧化后的平整度相对更好, 裂纹和孔洞均比较少。空气中水蒸气含量为  $50 \text{ g/m}^3$  (图 3e、3f) 时, 涂层表面的开裂和孔洞更明显, 且裂纹更宽。

当水蒸气含量相同而不含空气时, 即表 2 中实验条件 5 的情况下, 涂层的氧化形貌如图 4 所示。水蒸气含量为  $10 \text{ g/m}^3$ , 分别采用空气和高纯 He 气载带, 氧化后表面和特征区域微观形貌如图 3c、3d 和图 4a、4b 所示。可以发现, 在水蒸气含量相同的条件下, He 气环境中纯水蒸气氧化的样品比空气环境中氧化后的表面更加平整和致密, 特征区域的点状开裂和线性裂纹均更小。

图 5 显示了 SiC 涂层样品在不同水蒸气含量的空气中氧化 10 h 后的断面微观形貌。可以发现, 在水蒸气含量从  $5 \text{ g/m}^3$  增大到  $10 \text{ g/m}^3$  时, 氧化层厚度增大; 而从  $10 \text{ g/m}^3$  增大到  $50 \text{ g/m}^3$  时, 氧化层的厚度减小; 当水蒸气含量达到  $100 \text{ g/m}^3$  时, 氧化层再次增大, 且氧化层更粗糙多孔。

图 6 是 SiC 涂层样品在纯水蒸气环境下的氧化形貌。对比图 5c、5d 与图 6a、6b 可以发现, 单一的水蒸气氧化相比于水蒸气和空气混合氧化, 氧化层厚度也有明显变薄现象。不同条件下, 氧化层厚度见表 2, 由表 2 可见, 所有的氧化层厚度均小于  $3.5 \mu\text{m}$ 。

综上所述,  $1400 \text{ }^\circ\text{C}$  高温下, 致密 SiC 涂层在不同的空气和水蒸气的氧化介质中, 会出现氧化损耗现象。SiC 晶粒氧化生成  $\text{SiO}_2$  相, 所以致密 SiC 涂层涂覆样品在氧化后测试均表现为增重。由于 SiC 的氧化仅发生在表面, 不会破坏涂层的致密结构, 所以涂层内基体不会与氧化性介质接触, 涂层的抗氧化性能优异。

### 2.2 涂层氧化前后物相构成分析

致密 SiC 涂层样品氧化前的 XRD 和 Raman 分析

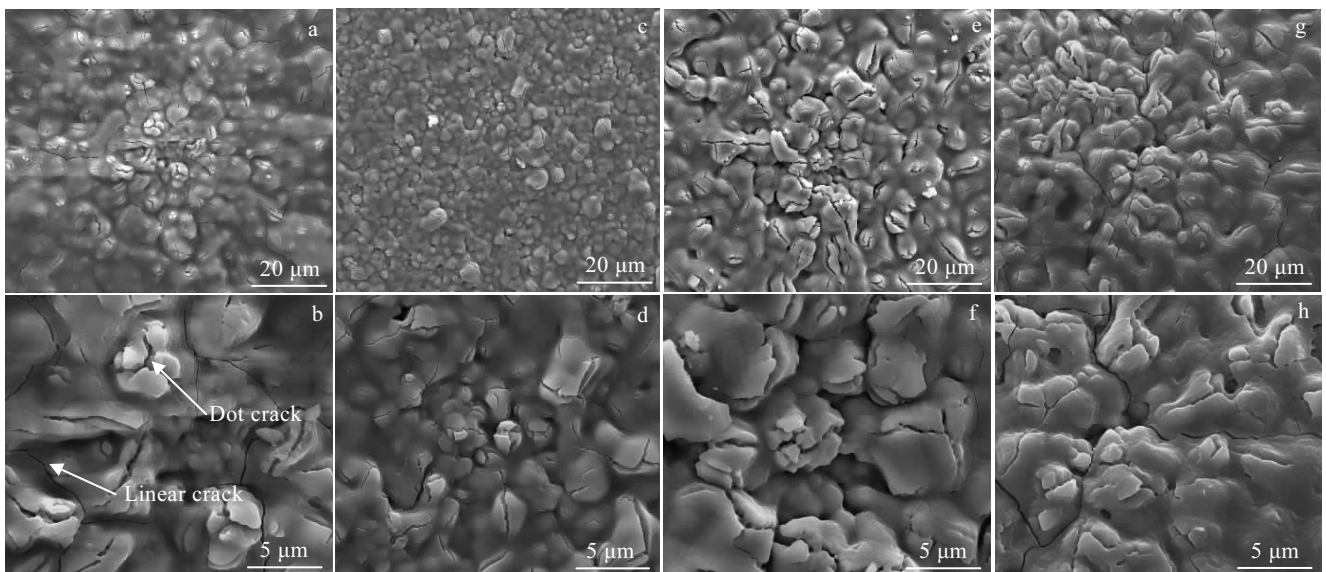


图 3 SiC 涂层在  $1400 \text{ }^\circ\text{C}$  不同水蒸气含量的空气中氧化 10 h 后的表面微观形貌

Fig.3 Morphologies of surface of SiC coating after oxidation at  $1400 \text{ }^\circ\text{C}$  for 10 h in wet air with different water vapour contents:

(a, b)  $5 \text{ g/m}^3$ ; (c, d)  $10 \text{ g/m}^3$ ; (e, f)  $50 \text{ g/m}^3$ ; (g, h)  $100 \text{ g/m}^3$

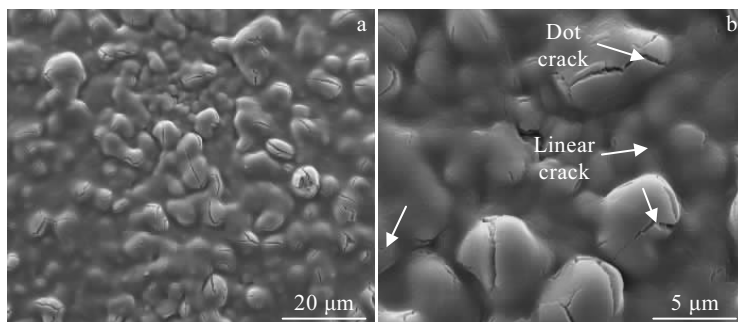


图 4 SiC 涂层在 1400 °C 水蒸气含量为 10 g/m<sup>3</sup> 的 He 气中氧化 10 h 后的微观形貌

Fig.4 Morphologies of SiC coating after oxidation at 1400 °C for 10 h in wet He with 10 g/m<sup>3</sup> water vapour

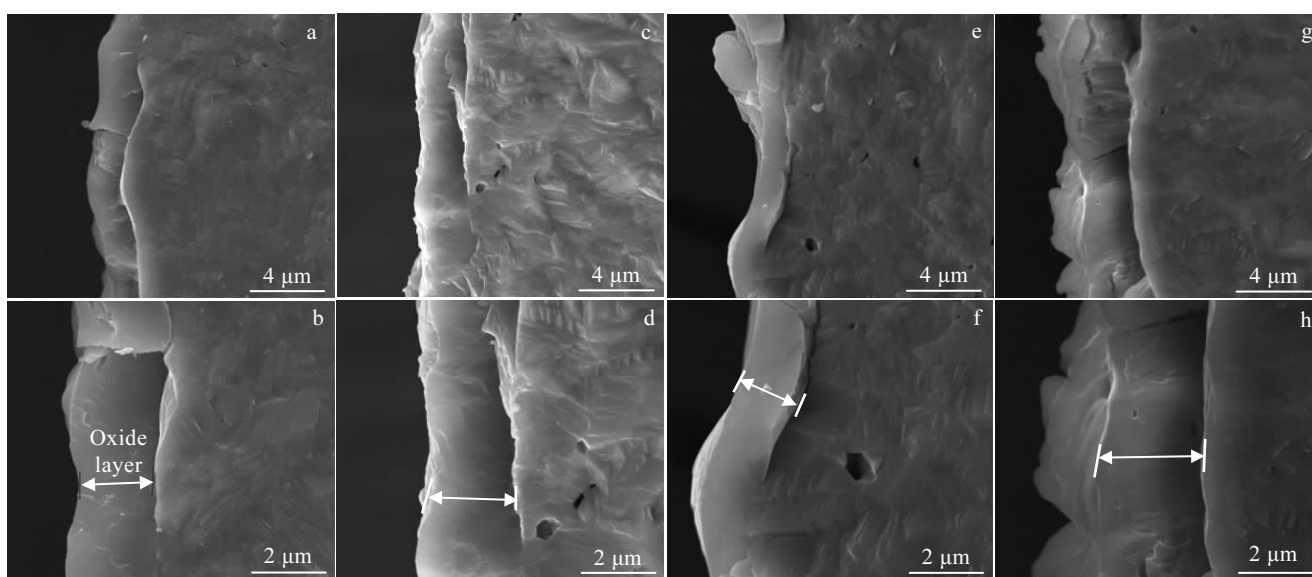


图 5 SiC 涂层在 1400 °C 不同水蒸气含量的空气中氧化 10 h 后的断面微观形貌

Fig.5 Morphologies of section of SiC coating after oxidation at 1400 °C for 10 h in wet air with different water vapour contents: (a, b) 5 g/m<sup>3</sup>; (c, d) 10 g/m<sup>3</sup>; (e, f) 50 g/m<sup>3</sup>; (g, h) 100 g/m<sup>3</sup>

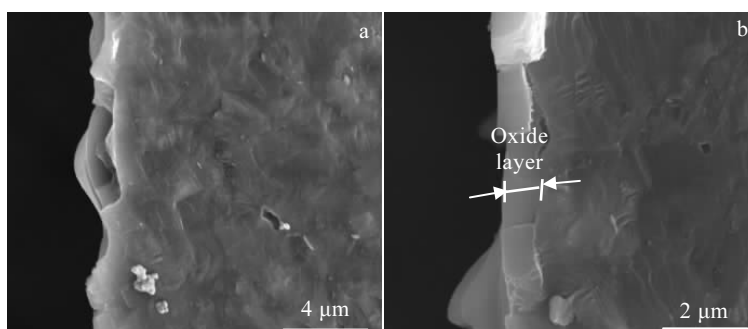


图 6 SiC 涂层在 1400 °C 水蒸气含量为 10 g/m<sup>3</sup> 的 He 气中氧化 10 h 后的断面微观形貌

Fig.6 Morphologies of section of SiC coating after oxidation at 1400 °C for 10 h in wet He with 10 g/m<sup>3</sup> water vapour

结果如图 7 所示。可以发现，SiC 涂层样品的 XRD 图谱中主要衍射峰为  $\beta$ -SiC 的(111)、(200)、(220)、(311)和(222)特征晶面衍射；而 Raman 图谱中主要为  $\beta$ -SiC 的 TO、LO 和二级散射吸收峰。因而，致密 SiC 涂层样品主要由纯净的立方 SiC 相构成。

致密 SiC 涂层样品，在空气分别载带 5、10、50 和 100 g/m<sup>3</sup> 水蒸气含量的混合气体中氧化后的 XRD 和 Raman 谱图如图 8 所示。空气中氧化后，样品的主要物相除了  $\beta$ -SiC 外还有明显的 SiO<sub>2</sub> 吸收峰，如图 8 所示。在空气载带水蒸气含量不同的情况下，氧化后涂层的主要物相仍然以  $\beta$ -SiC 和 SiO<sub>2</sub> 为主，没有出现其余的杂质物相。

图 9 是 SiC 涂层样品在含有 10 g/m<sup>3</sup> 水蒸气的 He 气中氧化后的 XRD 和拉曼光谱。如图所示，在单一水蒸气氧化的条件下，氧化后生成了  $\beta$ -SiC 和 SiO<sub>2</sub> 相。其氧化后的物相变化与空气/水蒸气混合氧化的情况并没有大的区别，涂层氧化后的主要物相也完全相同。

综上所述，相同温度和时间下，在不同含量的水蒸气/空气混合气氛和纯水蒸气情况下氧化后，致密 SiC 涂层的主要物相均由纯净的  $\beta$ -SiC 转变为  $\beta$ -SiC 和 SiO<sub>2</sub>，涂层表面氧化层的主要物相均为 SiO<sub>2</sub>。也就是说，该实验中氧化气氛中氧化介质的不同对氧化最终产物构成没有明显的影响。

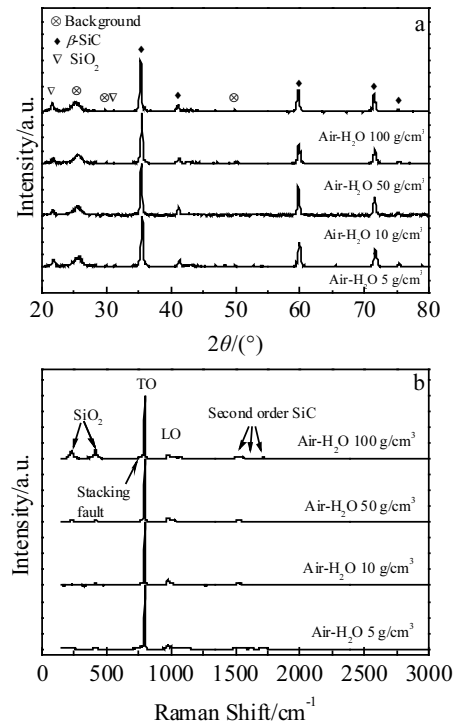


图 8 SiC 涂层在 1400 °C 不同水蒸气含量的空气中氧化 10 h 后的 XRD 和 Raman 谱图

Fig.8 XRD patterns (a) and Raman spectra (b) of the surface of SiC coating after oxidation at 1400 °C for 10 h in wet air with different water vapour content

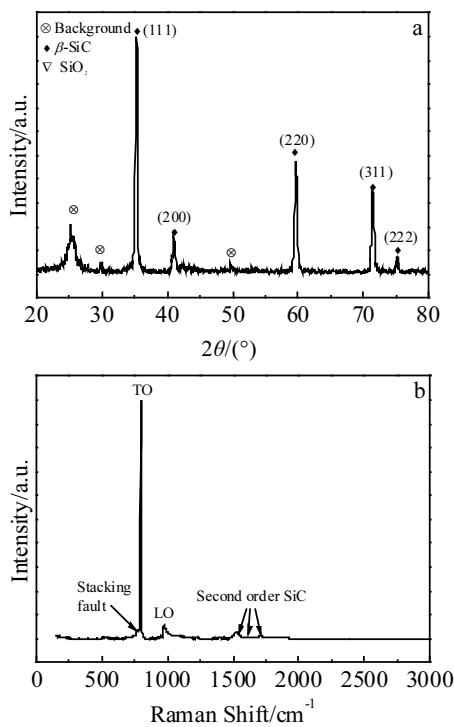
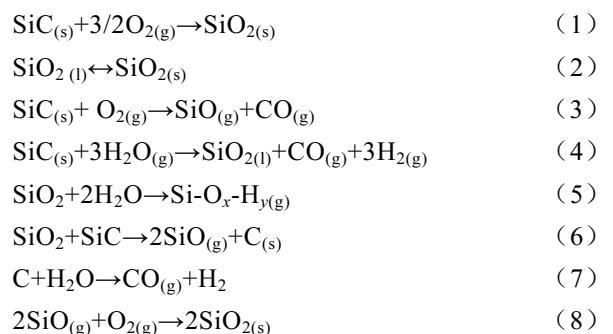


图 7 原始 SiC 涂层的 XRD 和 Raman 谱图

Fig.7 XRD pattern (a) and Raman spectrum (b) of the surface of original SiC coating

### 2.3 机理分析与讨论

SiC 氧化过程中的主要氧化反应如式 (1) 至 (8) 所示：



在氧化初期，反应 (1) 和反应 (4) 首先占据了主导作用。此时，SiC 晶粒氧化形成的 SiO<sub>2</sub> 流动相在反应 (2) 作用下将表层 SiC 覆盖<sup>[14-18]</sup>。此时，SiO<sub>2</sub> 层与 SiC 晶粒间残留的少量 O<sub>2</sub> 会在反应 (3) 中被消耗。反应 (3) 中，生成的气相产物 SiO 在 SiO<sub>2</sub> 层中会被扩散进入 SiO<sub>2</sub> 的部分 O<sub>2</sub> 继续氧化成 SiO<sub>2</sub>，如反应 (8) 所示，因而在 SiO<sub>2</sub> 层中会出现气孔。

随着氧化时间延长，表面 SiO<sub>2</sub> 流动相覆盖达到一定的厚度时，由于 H<sub>2</sub>O 在 SiO<sub>2</sub> 中的扩散系数比 O<sub>2</sub> 的

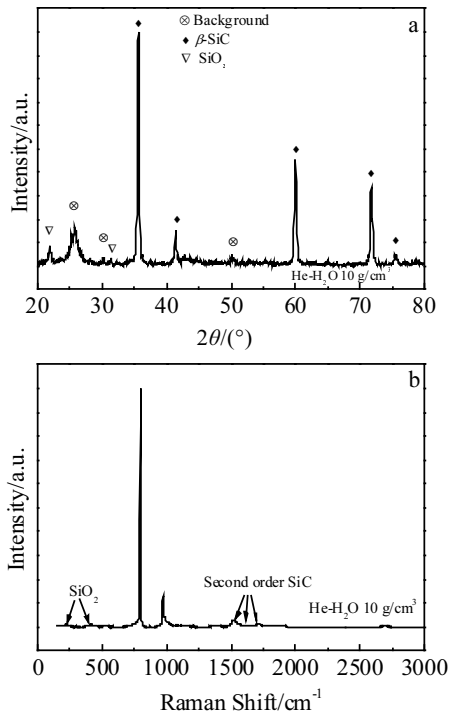


图 9 SiC 涂层在 1400 °C 水蒸气含量为 10 g/m<sup>3</sup> 的 He 气中氧化 10 h 后的 XRD 和 Raman 光谱

Fig.9 XRD pattern (a) and Raman spectrum (b) of SiC coating after oxidation at 1400 °C for 10 h in wet He with 10 g/m<sup>3</sup> water vapour

扩散系数更低, 所以 H<sub>2</sub>O 不能与 SiC 充分接触。此时, 反应 (1) 开始占据主导作用, 反应 (5) 和 (6) 也分布在 SiO<sub>2</sub> 内外表面同步发生。SiO<sub>2</sub> 层在反应过程中开始被消耗, 同时形成气相产物 SiO 和 Si-O<sub>x</sub>-H<sub>y</sub><sup>[19-21]</sup>。

所以, 在 H<sub>2</sub>O 含量为 10 g/m<sup>3</sup> 条件下, 氧化反应开始进行到一定的时间后, 上述氧化和损耗反应均开始发生。反应 (1) 造成的氧化层 SiO<sub>2</sub> 厚度增加速率比反应 (5) 和 (6) 造成的 SiO<sub>2</sub> 层消耗速率更快, 因而, 表现为 SiO<sub>2</sub> 氧化层比 H<sub>2</sub>O 含量为 5 g/m<sup>3</sup> 时厚度增加。H<sub>2</sub>O 含量为 50 g/m<sup>3</sup> 时, 氧化反应 (1) 和 (4) 形成的 SiO<sub>2</sub> 层逐渐增加到一定的厚度时, 反应 (5) 造成的 H<sub>2</sub>O 对 SiO<sub>2</sub> 的侵蚀速率在该水蒸气浓度下相对反应 (1) 造成的 SiO<sub>2</sub> 氧化层增长速度更快。涂层界面处, 反应 (6) 也同时发生, 使得 SiO<sub>2</sub> 层内外同时被侵蚀。所以, 空气中水蒸气含量增大到 50 g/m<sup>3</sup> 时, SiO<sub>2</sub> 层明显变薄。空气中 H<sub>2</sub>O 含量为 100 g/m<sup>3</sup> 时, 氧化反应 (1) 和 (4) 首先会形成一定厚度的 SiO<sub>2</sub> 氧化层。随后, SiC 氧化反应 (1)、(4) 和 SiO<sub>2</sub> 层损耗反应 (5)、(6) 的速率在该水蒸气含量下都得到了明显增加, 涂层处于被消耗形成穿透孔洞后暴露出

SiC 晶粒, 然后再次被氧化形成 SiO<sub>2</sub> 层覆盖的过程。所以, 涂层厚度相对其他条件比较厚。

对于仅有单一空气或者水蒸气氧化的过程, 由于不存在两者的竞争氧化反应, 所以涂层在氧化过程中很容易直接形成 SiO<sub>2</sub> 氧化层。氧化层将表面覆盖后, 会阻止氧化性气氛与 SiC 的接触, 氧化速率由于接触面减小而变慢<sup>[20,22,23]</sup>。当 SiO<sub>2</sub> 氧化层达到一定厚度时, 隔绝效应使氧化反应趋近于停止。因而, 氧化层厚度比较薄但均能形成完整的覆盖。

由于反应 (7) 的发生, 在反应 (6) 中形成的 C 会与气氛中的 H<sub>2</sub>O 发生反应而被消耗。因而, 涂层氧化后没有发现单质碳的存在。而在所有的氧化反应和竞争反应过程中, 几乎所有的反应均有气相产物的产生。气相产物在氧化层内会被缓慢排出和进一步氧化, 但仍然有部分残留在氧化层内以及氧化层与 SiC 界面之间, 所以在氧化层的层中和氧化层与 SiC 层之间位置均出现了气孔分布。同时, 这也是氧化层出现开裂的原因之一<sup>[11]</sup>。

### 3 结 论

1) 空气中水蒸气含量从 5 g/m<sup>3</sup> 增加到 10 g/m<sup>3</sup> 过程中, 氧化层厚度增大; 而从 10 g/m<sup>3</sup> 增加到 50 g/m<sup>3</sup> 过程中, 厚度减小; 从 50 g/m<sup>3</sup> 增加到 100 g/m<sup>3</sup> 过程中, 氧化层不仅厚度增大且微观形貌粗糙多孔。单一水蒸气情况下, 所得氧化层的厚度均比混合气氛的氧化层厚度薄。

2) 单一水蒸气氧化后的样品比混合气氛氧化的样品具有更平整的表面、更轻微的点状开裂和更小的线性裂纹。所有环境下, 致密 SiC 涂层氧化均发生在表面, 没有破坏致密层的结构, 说明致密 SiC 涂层能够有效地发挥物理隔绝氧化性介质的作用。

3) 致密 SiC 涂层的氧化机理分析表明, 其表面形貌变化、裂纹的产生以及厚度变化等均与氧化竞争反应和氧化中间产物有关。

4) 致密 SiC 涂层在空气和水蒸气等不同环境的氧化过程中, 均能在表面形成一定厚度的 SiO<sub>2</sub> 自愈层, 且 10 h 的氧化后, 涂层的氧化深度仅在表层的 3.5 μm 以内, 没有破坏致密层结构。

#### 参考文献 References

- [1] Taiju Shibata, Junya Sumita, Tatsuya Tada *et al.* *Journal of Nuclear Materials*[J], 2008, 381(1-2): 204
- [2] JoJo Lee, Tushar K Ghosh, Sudarshan K Loyalka. *Journal of Nuclear Materials*[J], 2014, 451(1-3): 48
- [3] Xia Kedong, Lu Chunxiang, Yang Yu. *Applied Surface Science*

- [J], 2013, 265: 603
- [4] Wen G, Sui S H, Song L *et al. Corrosion Science*[J], 2010, 52(9): 3018
- [5] Li Hejun, Feng Tao, Fu Qiangang *et al. Carbon*[J], 2010, 48(5): 1636
- [6] Li Lu, Li Hejun, Lin Hongjiao *et al. Surface and Coatings Technology*[J], 2016, 302: 56
- [7] Yang Xin, Huang Qizhong, Su Zhean *et al. Ceramics International*[J], 2013, 39(5): 5053
- [8] Sun Can, Li Hejun, Fu Qiangang *et al. Transactions of Non-ferrous Metals Society of China*[J], 2013, 23(7): 2107
- [9] Zhu Qingshan, Qiu Xueliang, Ma Changwen. *Carbon*[J], 1999, 37(9): 1475
- [10] Jan M Knaup, Peter Deak, Thomas Frauenheim *et al. Physical Review B*[J], 2015, 71(23): 235 321
- [11] Liu Rongzheng, Liu Bing, Zhang Kaihong *et al. Journal of Nuclear Materials*[J], 2014, 453(1-3): 107
- [12] Peter F Tortorelli, Karren L More. *Journal of the American Ceramic Society*[J], 2003, 86(8): 1249
- [13] Zhou Ping, Liu Xiaoxue, Zhao Hongsheng *et al. Journal of the American Ceramic Society*[J], 2016, 99(11): 3525
- [14] Vickridge Ian, Ganem J J, Hoshino Y *et al. Journal of Physics D: Applied Physics*[J], 2016, 40(20): 6254
- [15] Radtke C, Stedile F C, Soares G V *et al. Applied Physics Letters*[J], 2008, 92(25): 252 909
- [16] Mergia K, Lafatzis D, Moutis N *et al. Applied Physics A*[J], 2008, 92(2): 387
- [17] Singhal S C. *Journal of Materials Science*[J], 1976, 11(11): 1246
- [18] Kurt A Terrani, Bruce A Pint, Chad M Parish *et al. Journal of the American Ceramic Society*[J], 2014, 97(8): 2331
- [19] Young-Hag Koh, Oh-Sang Kwon, Seong-Hyeon Hong *et al. Journal of the European Ceramic Society*[J], 2001, 21(13): 2407
- [20] Takayuki Narushima, Takashi Goto, Yasutaka Iguchi *et al. Journal of the American Ceramic Society*[J], 1990, 73(12): 3580
- [21] Hiroshi Hatta, Takuya Aoki, Yasuo Kogo *et al. Composites Part A*[J], 1999, 30(4): 515
- [22] Oh-Sang Kwon, Seong-Hyeon Hong, Hwan Kim. *Journal of the European Ceramic Society*[J], 2003, 23(16): 3119
- [23] Ryan C Breneman, John W Halloran, Pinckney L. *Journal of the American Ceramic Society*[J], 2014, 97(7): 2272

## Oxidation Behavior of Dense SiC Coating in Water Vapor and Its Mixed Atmosphere with Air

Yang Hui, Zhou Ping, Zhang Kaihong, Li Ziqiang, Liu Xiaoxue, Zhao Hongsheng  
(Institute of Nuclear and New Energy Technology, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

**Abstract:** A dense SiC antioxidant coating was prepared on substrate graphite sphere by fluidized bed chemical vapor deposition process. And its oxidation behavior and mechanism at 1400 °C were analyzed. The results show that the atmosphere has a significant effect on the oxide layer thickness. In the case of single steam, the thickness of the oxide layer obtained is thinner than that in the mixed atmosphere. The sample oxidized by single steam has a smoother surface, slighter point cracks and smaller linear cracks than that oxidized by mixed atmosphere. The oxidation of dense SiC coatings occurs on the surface without destroying the structure of the dense layer. The oxidation mechanism analysis shows that the surface morphology, crack formation and thickness change of the dense SiC coating are all related to the oxidation competition reaction and oxidation intermediates. In the oxidation process of dense SiC coatings in different environments such as air and water vapor, a SiO<sub>2</sub> self-healing layer with a certain thickness can form on the surface. After 10 h of oxidation, the oxidation depth of the coating is only within 3.5 μm of the surface, and the structure of the dense layer is not destroyed.

**Key words:** high temperature gas cooled reactor; SiC; antioxidation; mechanism

---

Corresponding author: Zhao Hongsheng, Ph. D., Professor, Institute of Nuclear and New Energy Technology, Tsinghua University, Beijing 100084, P. R. China, Tel: 0086-10-89796090, E-mail: hshzhao@tsinghua.edu.cn