

热障涂层用  $\text{Y}_3\text{NbO}_7\text{-YNbO}_4$  复合陶瓷材料的力学及热物理性能田京维<sup>1</sup>, 王中源<sup>1</sup>, 王乐垚<sup>1</sup>, 张若琦<sup>1</sup>, 王树棋<sup>1</sup>, 陈国梁<sup>1</sup>, 邹永纯<sup>1</sup>, 王亚明<sup>1</sup>, 黄磊<sup>2</sup>, 周玉<sup>1</sup>

(1. 哈尔滨工业大学材料科学与工程学院特种陶瓷研究所, 哈尔滨 150080;

2. 洛阳船舶材料研究所, 海洋腐蚀与防护全国重点实验室, 河南 洛阳 471023)

**摘 要:** 本工作采用原位合成与固相反应法制备了  $\text{Y}_3\text{NbO}_7\text{-YNbO}_4$  复合陶瓷, 研究了  $\text{YNbO}_4$  第二相含量(0~70%, 体积分数)对材料结构、力学及热学性能的影响。结果表明: 两相具有良好的化学相容性, 具有清晰的萤石结构与褐钨铋矿结构衍射峰, 并通过扩散层缓解晶格差异, 促进界面结合。随着  $\text{YNbO}_4$  含量增加, 材料硬度和强度略微下降。当  $\text{YNbO}_4$  含量为 30% 时, 复合陶瓷维持较高的维氏硬度(8.99 GPa)与强度(121.89 MPa), 同时断裂能提升约 13%, 表现出优异的强韧匹配。此外,  $\text{YNbO}_4$  弥散分布于  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  基体中, 阻断热传导通路, 有效防止了热导率的升高; 同时两相界面与折射率差异增强了声子/光子散射, 使材料在 800 °C(2.5~14  $\mu\text{m}$  波段)具备高红外发射率, 有效抑制了热导率上翘问题, 1000 °C 热导率仅为 1.29  $\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ 。该组分复合材料兼具优良力学性能与热光学特性, 在高温热防护领域具有重要应用潜力。

**关键词:** 热障涂层; 复合材料; 缺陷萤石结构; 弯曲强度; 热导率; 高温发射率

中图分类号: V261.933; TG174.4 文献标志码: A 文章编号: 0454-5648(2026)09-3056-10

网络出版时间: 2026-08-19



热障涂层(TBCs)作为航空航天热端部件的核心防护技术, 可通过阻隔热流传递有效降低基体材料的热损伤, 进而显著提升航空发动机的运行稳定性、结构可靠性及服役寿命<sup>[1-2]</sup>。目前, 工程应用最广泛的 YSZ(氧化钇稳定氧化锆)热障涂层材料, 虽具备优异的力学与热学性能, 但在高于 1400 K 以上环境的长期服役过程中易发生相变行为, 进而引发涂层脱落等失效问题<sup>[3-6]</sup>。随着新一代航空发动机(如 CJ-1000A、宽体客机发动机等)对推重比和燃烧效率要求的不断提高, 开发适用于更高服役温度的新型超高温热障涂层材料已成为该领域的研究重点<sup>[7]</sup>。

$\text{RE}_3\text{NbO}_7$  系列稀土铌酸盐材料, 因其具有较低的热导率(1.2~1.5  $\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ , 1273 K)、高熔点特性及良好的高温相稳定性与氧阻隔性能, 被认为是极具应用潜力的下一代 TBCs 候选材料<sup>[8-9]</sup>。然而, 该类材料存在断裂韧性低, 抗裂纹扩展与抗热震性能较差的固有缺陷, 这极大限制了其工程实际应用<sup>[10]</sup>。此外, 在高温环境下, 辐射传热中的光子导

热机制逐渐被激活, 而  $\text{RE}_3\text{NbO}_7$  材料对红外辐射的透明特性, 会引起其高温热导率的异常增加<sup>[11]</sup>。为突破单一材料的性能瓶颈, 复合陶瓷结构设计策略已成为该领域的研究热点。例如, Liu 等通过在  $\text{Gd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$  基体中引入  $\text{GdAlO}_3$  增韧相, 在维持材料硬度的同时实现了断裂韧性的提升, 但材料热导率也随之上升<sup>[12]</sup>。Lawn 等研究发现, YAG/SiC 的弱界面可实现缺陷捕获并耗散裂纹扩展能量<sup>[13]</sup>。Yu 等则利用  $\text{CeZrO}_2\text{-CePO}_4$  弱界面结构提升了材料断裂韧性, 但过量第二相会导致材料整体力学性能下降<sup>[14]</sup>。有研究表明, 掺入  $\text{GdMnO}_3$  纳米颗粒虽能增强红外发射率并抑制辐射导热, 却未能改善材料的断裂韧性<sup>[15]</sup>。可见如何在维持低热导率优势的同时提升其力学性能, 仍是当前该领域面临的关键挑战。

复合陶瓷材料的成分体系较为复杂, 使得材料制备过程中的成分控制至关重要, 同时需兼顾组分间的化学相容性, 因此, 第二相的选择成为复合

收稿日期: 2025-11-01。 修订日期: 2025-12-07。

基金项目: 国家自然科学基金(52572071, 52571039, 52301085, 52571078)。

第一作者: 田京维(2001), 男, 硕士研究生。

通信作者: 王树棋(1994), 男, 博士, 副教授。

Received date: 2025-11-01. Revised date: 2025-12-07.

First author: TIAN Jingwei (2001-), male, Master candidate.

E-mail: 1140077358@qq.com

Correspondent author: WANG Shuqi (1994-), male, Ph.D., Associate Professor.

E-mail: wang-shuqi@hit.edu.cn

体系设计的核心环节。在近期研究中,  $\text{RENbO}_4$  结构铌酸盐材料因其优异的力学性能以及光学性能逐渐受到关注<sup>[16]</sup>。这些材料具有类似 YSZ 的铁弹性特性, 可提供额外的高温增韧机制, 为断裂韧性提升提供了可能<sup>[17]</sup>。然而,  $\text{RENbO}_4$  结构铌酸盐通常表现出相对较高的热导率。在  $\text{RE-Nb-O}$  三元体系中,  $\text{RE}_3\text{NbO}_7$  和  $\text{RENbO}_4$  2 种化合物在相图中相邻分布, 且因二者间存在有限固溶度, 可形成两相共存区域, 这一现象主要取决于稀土原子 RE 与 Nb 元素的原子的比例以及形成温度<sup>[18]</sup>, 这表明  $\text{RE}_3\text{NbO}_7$  与  $\text{RENbO}_4$  材料间良好的化学相容性。基于此, 通过构建  $\text{RE}_3\text{NbO}_7\text{-RENbO}_4$  复合陶瓷体系, 有望实现  $\text{RE}_3\text{NbO}_7$  的超低热导率与  $\text{RENbO}_4$  的铁弹性增韧能力的协同优化, 从而获得综合性能优异的热障陶瓷材料。

基于上述研究背景, 本工作采用原位合成方法制备了一系列成分梯度的  $\text{Y}_3\text{NbO}_7\text{-YNbO}_4$  复合陶瓷材料, 系统研究了第二相掺量对陶瓷组织结构、力学性能以及热物理性能的影响规律, 深入探究具有铁弹性畴的  $\text{YNbO}_4$  相对基体材料的强韧化作用机制, 并通过调控第二相含量以阻断高导热通路。同时, 利用两相界面引起的声子散射与光子散射效应, 抑制高温环境下的辐射导热, 从而实现材料高温综

合性能的提升。

## 1 实验

### 1.1 样品制备

通过固相反应的方法原位合成了  $\text{Y}_3\text{NbO}_7\text{-YNbO}_4$  复合陶瓷材料, 原材料选用纯度  $\geq 99.99\%$  的  $\text{Y}_2\text{O}_3$  和  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  (购自中国上海阿拉丁生化科技有限公司)。首先使用化学计量法分别计算得到了  $(100-x)\%\text{Y}_3\text{NbO}_7/x\%\text{YNbO}_4$  ( $x=0, 30, 50, 70, 100$ ) 5 种物相比比例陶瓷所需的  $\text{Y}_2\text{O}_3$  和  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  的质量配比。使用球磨机以酒精为分散介质, 在 250 r/min 转速下混合 12 h 以实现组分均匀化。将混合后的浆料蒸发干燥, 得到的粉末在 1400 °C 烧结 6 h 完成初步成相。将成相后的粉末进行 2 次球磨细化并采用 50 目筛网过筛处理后, 使用压片机将粉末压制成规定尺寸 ( $\phi 30$  mm, 厚 3 mm) 的预制块体, 再经 200 MPa 冷等静压处理以提升坯体致密度。在最终的烧结工艺选择上, 由于  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  相更高的烧结温度, 对其选用 1700 °C 无压烧结 10 h, 升温速度为 3 °C/min, 以获得更高的致密度。其余样品烧结工艺为 1700 °C 无压烧结 8 h, 升温速度为 5 °C/min, 以使各个样品获得相近致密度从而更好地进行性能比较。 $\text{Y}_3\text{NbO}_7\text{-YNbO}_4$  复合材料具体成分梯度如表 1 所示。

表 1 陶瓷复合材料信息  
Table 1 Information on ceramic composite materials

| Sample                   | $\varphi(\text{YNbO}_4)/\%$ | Measured density/( $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) | Theoretical density/( $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) | Porosity |
|--------------------------|-----------------------------|----------------------------------------------------|-------------------------------------------------------|----------|
| $\text{Y}_3\text{NbO}_4$ | 0                           | 5.3548                                             | 5.4100                                                | 1.02%    |
| C1                       | 30                          | 5.3949                                             | 5.4610                                                | 1.21%    |
| C2                       | 50                          | 5.4433                                             | 5.4950                                                | 0.96%    |
| C3                       | 70                          | 5.4709                                             | 5.5290                                                | 1.05%    |
| $\text{YNbO}_4$          | 100                         | 5.5220                                             | 5.5800                                                | 1.04%    |

$\varphi$ —Volume fraction.

### 1.2 样品表征

采用 X 射线衍射 (XRD, Empyrean, Panalytical, Netherlands), 测定  $\text{Y}_3\text{NbO}_7\text{-YNbO}_4$  复合陶瓷的两相组成, 扫描速率为 3 (°)/min。采用扫描电子显微镜 (SEM, Gemini560, Zeiss, Germany) 和能量色散光谱仪 (EDS, EDAX Inc, Mahwah, NJ) 观察并分析陶瓷试样的显微组织形貌及两相分布。SEM 观察前, 对各试样表面进行抛光和 1550 °C 保温 45 min 的热蚀刻处理。使用粒径分布计算软件 (ImageJ) 统计各个样品的晶粒尺寸, 并对尺寸分布进行 Gauss 分峰拟合。使用显微维氏硬度计 (HVT-1000A) 采用压痕法得到了样品的维氏硬度 ( $H_V$ ) 并预制了压痕与裂纹, 载荷

范围 0.98~9.80 N 保压 15 s, 测量 6 个点。使用电子万能试验机 (AG-X Plus, Shimadzu, Japan) 对复合陶瓷试样进行三点弯曲试验得到应力应变曲线, 试样厚度为 3 mm、宽度为 4 mm、长度为 20 mm, 得到材料的抗弯强度。采用高分辨率透射电子显微镜 (TEM, FEI Talos F200x, USA) 观察样品的进一步微观结构, 包括选择区域电子衍射 (SAED) 图、高分辨率透射电子显微镜 (HRTEM) 和扫描透射电子显微镜 (STEM) 分析。在氩气环境下, 用激光闪烁分析仪 (LFA 457, NETZSCH, Germany) 在 25 ~ 1000 °C 范围内测量了热扩散系数 ( $\alpha$ )。数据采集涉及 3 个 200 °C 间隔的激光脉冲, 随后通过脉冲校正算法进行拟合。

以高温陶瓷 9606 标准样品为对照品,测量了陶瓷的热扩散系数和比热容。采用傅里叶变换红外光谱仪 (FTIR, VERTEX 70, BRUKER, Germany) 对 2.5 ~ 14  $\mu\text{m}$  范围内的红外发射率进行了表征。利用能量比较法进一步研究了 2.5 ~ 14.0  $\mu\text{m}$  范围内随温度变化的发射率。测试样品尺寸为直径 30 mm 的陶瓷圆片,为了尽量减少表面粗糙度和厚度变化带来的影响,所有样品都使用 SiC 砂纸均匀研磨,抛光至镜面光洁度,并标准化至 3 mm 的厚度。

## 2 结果与讨论

### 2.1 $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ – $\text{YNbO}_4$ 复合陶瓷组织结构分析

图 1 为  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ – $\text{YNbO}_4$  复合陶瓷粉体不同烧结

工艺下的 XRD 谱及 400  $^{\circ}\text{C}$  保温 6 h 工艺制备的粉体 SEM 照片。由图 1a 可见,在 1000  $^{\circ}\text{C}$  保温 6 h 的煅烧工艺下,XRD 谱仅呈现出单一的  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  相萤石结构特征衍射峰,当煅烧温度提升至 1200  $^{\circ}\text{C}$  保温 6 h 及以上时,可见  $\text{YNbO}_4$  相褐钨铌矿结构特征衍射峰逐渐形成,且随温度升高其特征峰强度逐渐增强。当煅烧工艺为 1400  $^{\circ}\text{C}$  保温 6 h 时,两相结构峰均清晰可见且峰形尖锐,表明已成功合成具有稳定两相结构的复合陶瓷粉体。由图 1b 可见, $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ – $\text{YNbO}_4$  复合陶瓷粉体颗粒形态较为规整,无明显团聚现象,粉体粒径分布相对均匀,主要集中在 3~6  $\mu\text{m}$  范围内,此粒径范围有利于后续块体材料的压制与烧结致密化。

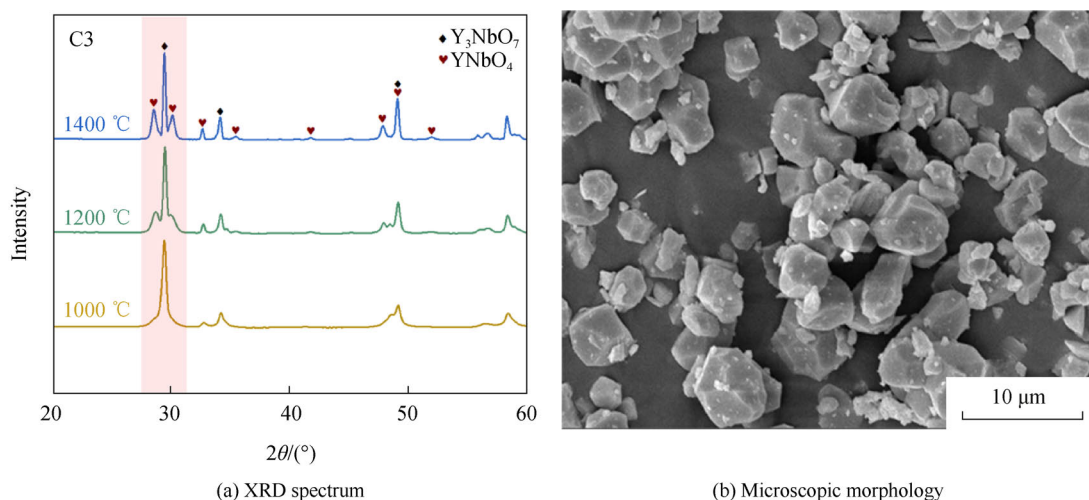


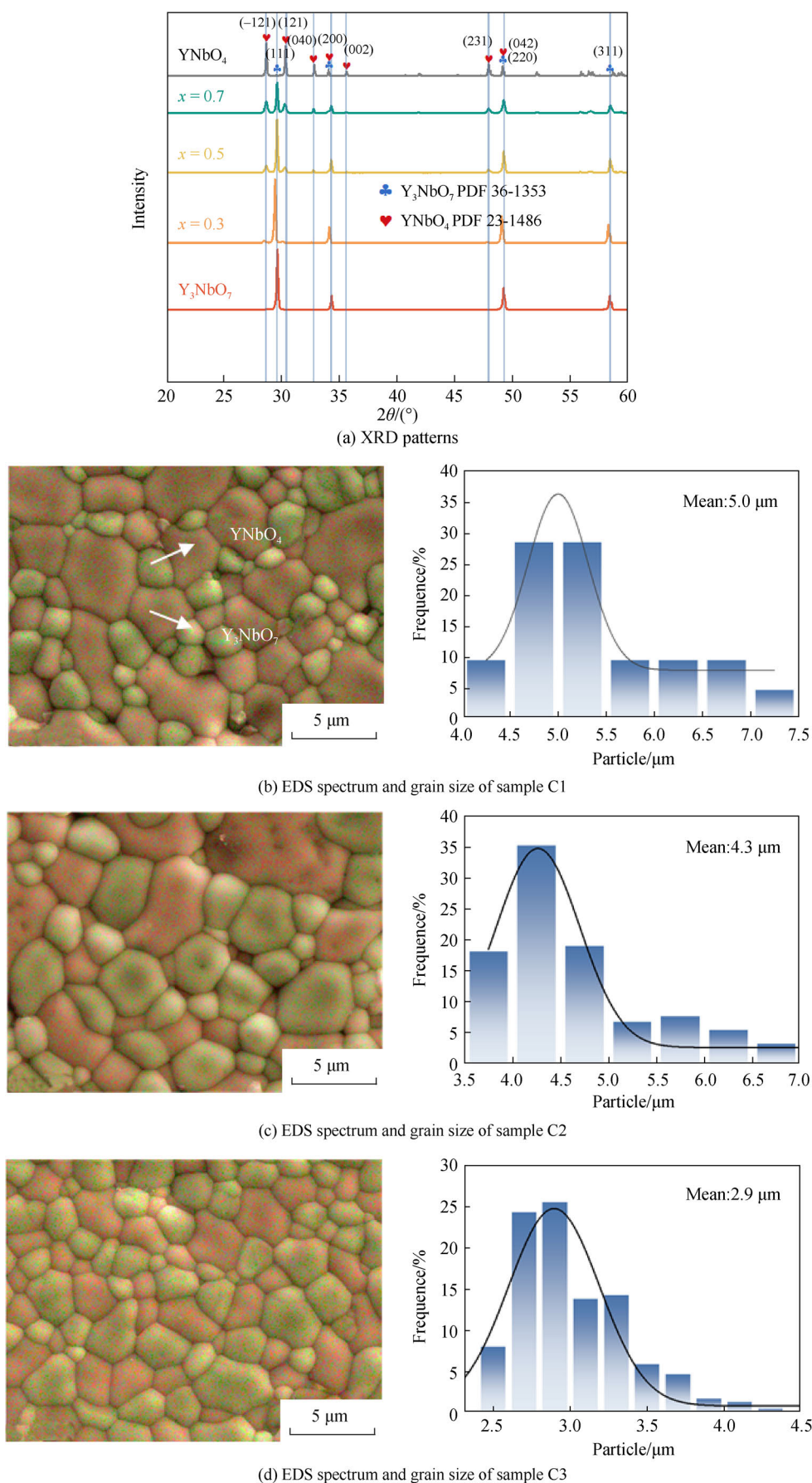
图 1  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ – $\text{YNbO}_4$  复合陶瓷粉体的物相和微观形貌

Fig. 1 Phase and microstructure of  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ – $\text{YNbO}_4$  composite ceramic powder

图 2 为  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ – $\text{YNbO}_4$  复合陶瓷的 XRD 谱、组织结构以及晶粒尺寸分布。由图 2a 可见,随着  $\text{YNbO}_4$  第二相体积分数的增加, $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  萤石结构特征衍射峰强度逐渐递减,而  $\text{YNbO}_4$  特征峰强度相应递增。其中, $\text{YNbO}_4$  相在(121)和( $\bar{1}21$ )晶面的特征衍射峰以及  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  相在(111)晶面的特征衍射峰最为明显。所有复合样品的 XRD 谱均未检测到杂质相衍射峰信号,表明  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  与  $\text{YNbO}_4$  两相在 1700  $^{\circ}\text{C}$  烧结条件下未发生其他化学反应,二者具有优异的化学相容性。由图 2b 可见,所有样品的致密度均达 97% 以上,表现出良好的烧结致密化效果,从 EDS 谱中观察到, $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  与  $\text{YNbO}_4$  两相分布均匀,且界面清晰,未发现明显的元素扩散层,说明  $\text{YNbO}_4$  第二相在复合体系中结构稳定。对复合陶瓷样品的晶粒尺度进一步分析,随着  $\text{YNbO}_4$  相含量的增加,组织中平均晶粒尺寸呈现出逐渐细化的趋势,

其中,样品 C1、样品 C2 和样品 C3 的平均晶粒尺度分别为 5、4.3、2.9  $\mu\text{m}$ ,这一晶粒细化现象可归因于两相烧结行为的差异, $\text{YNbO}_4$  相成型温度较低<sup>[19]</sup>。在烧结过程中  $\text{YNbO}_4$  相率先完成致密化,其晶粒钉扎于  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  晶界处,形成空间位阻效应,有效抑制了  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  晶粒长大。同时,分布于  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  相之间也避免了  $\text{YNbO}_4$  相晶粒之间相互吞并长大,从而实现复合陶瓷整体组织的细化。

为深入研究  $\text{YNbO}_4$  晶粒内部的微观结构特征以及  $\text{YNbO}_4$  相与  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  相的界面状态,采用高角环形暗场像(HAADF)与高分辨透射电子显微镜开展分析表征。图 3 为  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ – $\text{YNbO}_4$  复合陶瓷两相 TEM 照片和 HRTEM 照片。由图 3a 可见, $\text{YNbO}_4$  晶粒内部呈现出明显的层状铁弹性畸变骨架结构。相应的 EDS 图谱则直观反映出两相之间的衬度差异,印证了二者的成分区分。此外,由图 3b 可见,两相界面处

图 2  $\text{Y}_3\text{NbO}_7\text{-YNbO}_4$  复合陶瓷的 XRD 谱 EDS 谱及晶粒尺寸分布Fig. 2 XRD spectrums, EDS spectrums and grain size distribution of  $\text{Y}_3\text{NbO}_7\text{-YNbO}_4$  composite ceramics

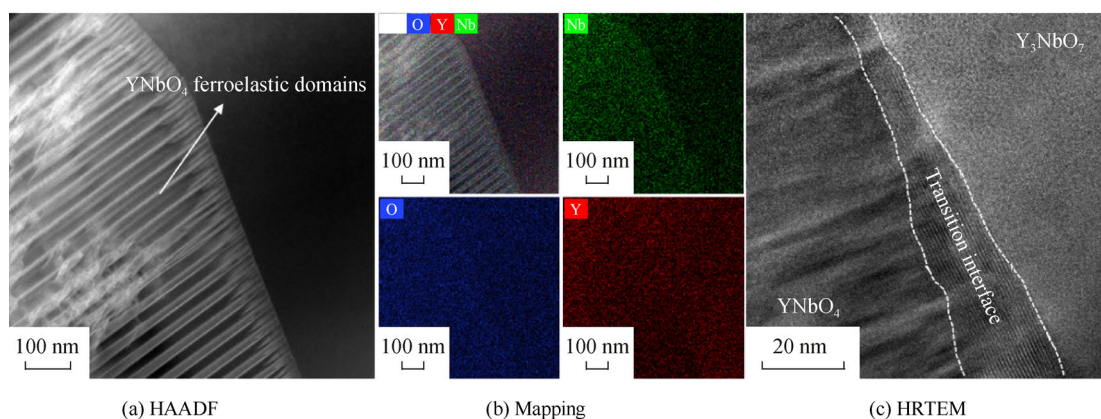


图 3  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ – $\text{YNbO}_4$  复合陶瓷两相 TEM 照片  
Fig. 3 The two-phase TEM images of  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ – $\text{YNbO}_4$  composite ceramics

存在明显的过渡层，该过渡层可有效缓解两相之间的晶格失配。该过渡层中两相形成了一定程度的固溶体，表明原位合成的方法可促进两相更好的结合。

## 2.2 $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ – $\text{YNbO}_4$ 复合陶瓷力学性能分析

热障涂层材料的力学性能(如硬度、强度及断裂韧性)是评估其实际应用潜力的核心指标，直接影响涂层在高温服役环境下的使用寿命与结构可靠性<sup>[20]</sup>。图 4 呈现了  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ – $\text{YNbO}_4$  复合陶瓷的维氏硬度压痕形貌。由图 4 可见，由于纯  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  陶瓷在 9.8 N 载荷下发生明显崩裂现象，该纯相样品的硬度测试采用 4.9 N 载荷进行，其余复合陶瓷样品

均采用 9.8 N 载荷。压痕形貌对比发现，随着复合陶瓷中  $\text{YNbO}_4$  相含量增加，压痕区域面积呈逐渐增大趋势，表明材料在压痕载荷作用下的变形能力增强。测试结果显示， $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  和  $\text{YNbO}_4$  纯相的维氏硬度分别为 11.19 GPa 和 4.82 GPa，而  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ – $\text{YNbO}_4$  复合陶瓷的硬度值介于两纯相之间，且得益于两相在复合材料中呈现均匀分散的微观形貌，其硬度表现出良好的稳定性。进一步分析表明，随第二相含量的增加，压痕诱导产生的裂纹长度逐渐缩短，表明复合材料的抗裂纹扩展能力得到增强，断裂韧性得到有效改善。

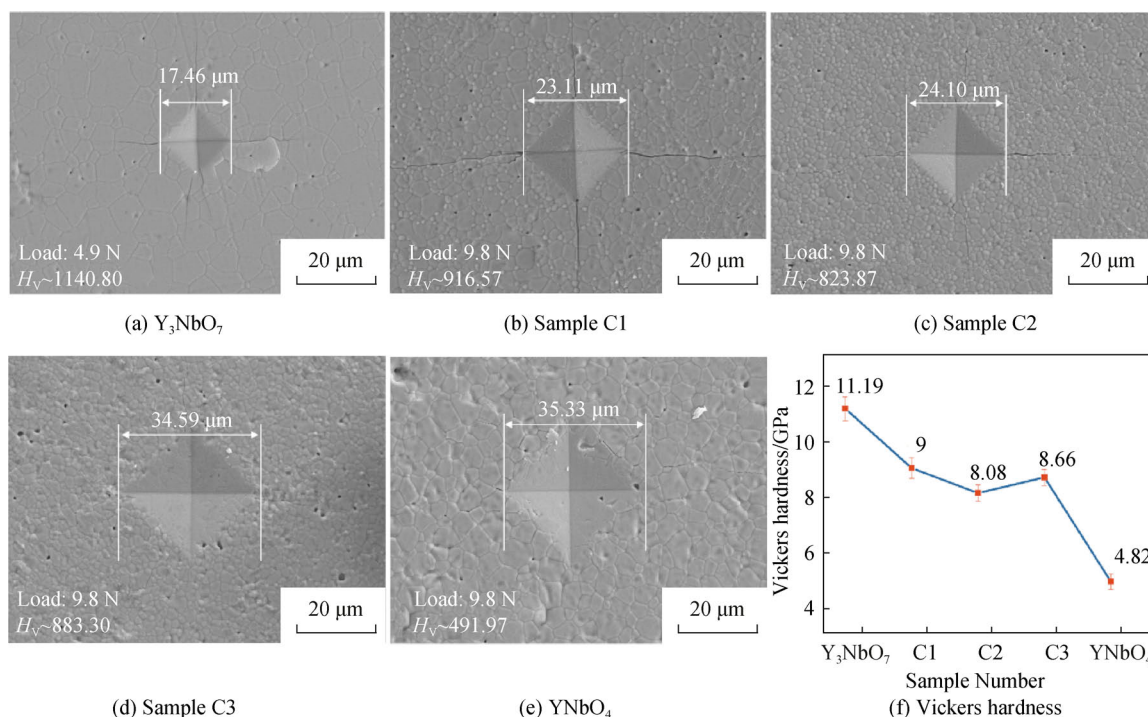


图 4  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ – $\text{YNbO}_4$  复合陶瓷表面压痕裂纹形貌及维氏硬度  
Fig. 4 Surface indentation crack morphology and Vickers hardness of  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ – $\text{YNbO}_4$  composite ceramics

采用三点弯曲试验得到  $\text{Y}_3\text{NbO}_7\text{-YNbO}_4$  系列陶瓷材料的弯曲强度, 如图 5 所示。由图 5 可见,  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  和  $\text{YNbO}_4$  纯相的弯曲强度( $\sigma$ )分别为 136.31 MPa、73.02 MPa, 随着第二相  $\text{YNbO}_4$  含量的增加  $\text{Y}_3\text{NbO}_7\text{-YNbO}_4$  复合陶瓷的弯曲强度呈逐渐下降趋势。由于强度和韧性间的固有矛盾特性, 需对复合陶瓷的断裂韧性展开进一步评估。采用式(1)对材料断裂能( $G$ )进行表征<sup>[21]</sup>。

$$G = \frac{W}{A} = \frac{W}{t \times w} \quad (1)$$

式中:  $W$  (J) 为试样断裂过程中所消耗的总能量, 由载荷-位移曲线下的积分面积计算得到;  $A$  ( $\text{m}^2$ ) 为试样的断裂面积;  $t$  (m) 为试样厚度;  $w$  (m) 为试样宽度。复合陶瓷的断裂能计算结果如图 6a 所示。由图 6a 可见, 随着第二相  $\text{YNbO}_4$  含量的增加, 材料的断裂能呈逐步增大的趋势, 即裂纹拓展所需的能量显著提升。为揭示其增韧机制, 进一步对陶瓷的断口形貌进行分析, 结果如图 6b 所示。由图 6b 可见,  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  纯相陶瓷的断裂形式以穿晶断裂为主, 断口平整且可观察到明显的解理面, 该特征是典型的脆性断裂标志。当  $\text{YNbO}_4$  含量为 30% 时, 复合陶瓷断口呈现曲折起伏的特征, 伴随着第二相晶粒拔出现象, 同时可观察到  $\text{YNbO}_4$  晶粒内部的层状断裂形态。该断裂特征与  $\text{YNbO}_4$  晶粒内部的层状铁弹性畴骨架结构密切相关, 在裂纹尖端应力场的驱动下, 畴结构会发生原子排布方式及取向的调整, 进而改

变了裂纹的拓展路径, 最终形成层状断裂形态<sup>[22]</sup>。此外, 与  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  晶界相比,  $\text{Y}_3\text{NbO}_7\text{-YNbO}_4$  复合陶瓷中的两相界面的键合作用相对较弱。当  $\text{YNbO}_4$  相引入到  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  基体中时, 会导致晶间断裂比例增加, 具体表现为  $\text{YNbO}_4$  颗粒的拔出行为。综合分析可知, 样品 C1、样品 C2 复合陶瓷在维持较高的硬度和弯曲强度的前提下, 断裂能分别提高了 13% 和 19%。该性能优化使陶瓷涂层材料在保持所需的耐磨性能的基础上, 提高了材料的抗裂纹拓展的能力, 进而提升了材料的服役稳定性。

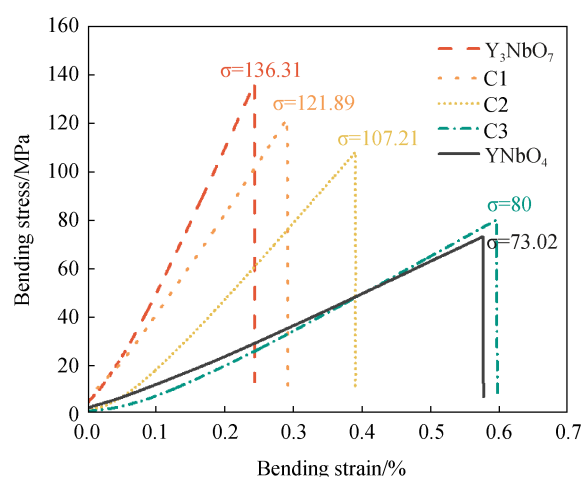
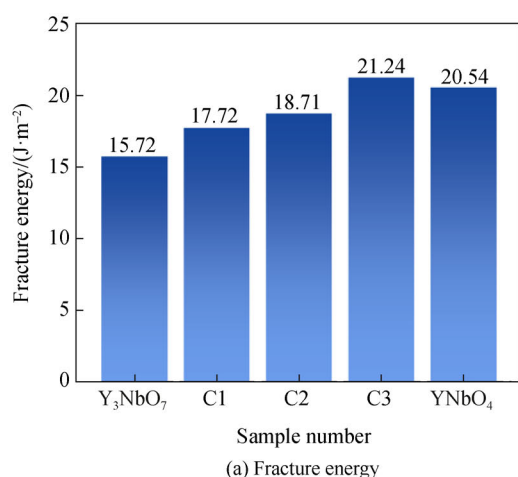
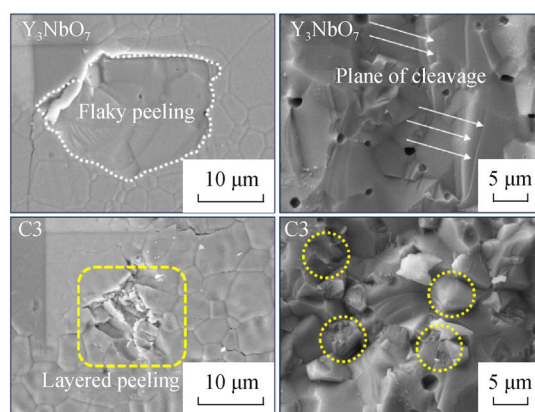


图 5  $\text{Y}_3\text{NbO}_7\text{-YNbO}_4$  复合陶瓷的弯曲应力-应变曲线  
Fig. 5 Bending stress-strain curve of the  $\text{Y}_3\text{NbO}_7\text{-YNbO}_4$  composite ceramic



(a) Fracture energy



(b) Fracture morphology

图 6  $\text{Y}_3\text{NbO}_7\text{-YNbO}_4$  复合陶瓷的断裂能和端口形貌

Fig. 6  $\text{Y}_3\text{NbO}_7\text{-YNbO}_4$  composite ceramic fracture energy and fracture morphology

### 2.3 $\text{Y}_3\text{NbO}_7\text{-YNbO}_4$ 复合陶瓷热光学性能分析

图 7 为室温~1000 °C 条件下  $\text{Y}_3\text{NbO}_7\text{-YNbO}_4$  复合陶瓷的热导率。由图 7 可见, 具有缺陷萤石

结构的  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  相, 其内部氧空位缺陷以及无序的晶格结构可对声子产生显著的散射作用, 因而具有较低的本征热导率。但在高温环境下, 随着光

子导热机制的逐步激活,  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  的热导率呈急剧上翘的趋势, 由室温下的  $1.13 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$  升高至  $1000^\circ\text{C}$  时的  $1.56 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ , 上升幅度达 38%, 这一现象对材料的高温热防护性能极为不利。相比之下,  $\text{YNbO}_4$  虽具有较高的本征热导率, 但其导热行为表现出传统晶体的导热特征, 表现出  $1/T$  的温度依赖性。随着温度的升高, 其热导率逐渐降低并趋于稳定<sup>[23]</sup>。对于  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ - $\text{YNbO}_4$  复合陶瓷, 在引入  $\text{YNbO}_4$  第二相后, 材料的综合热导率整体呈升高的趋势, 但在  $800\sim 1000^\circ\text{C}$  的高温区间内, 其热导率的上翘趋势得到显著抑制。样品 C1 的热导率上翘现象明显减缓, 其高温热导率低于  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  纯相, 在  $1000^\circ\text{C}$  时热导率仅为  $1.29 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ 。微观结构分析表明, 样品 C1 中少量的  $\text{YNbO}_4$  第二相以弥散分布形式存在于  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  晶粒周围, 该分布形式有效阻断了高热导通路的形成, 使样品 C1 获得该系列材料中整体的最低热导率性能。

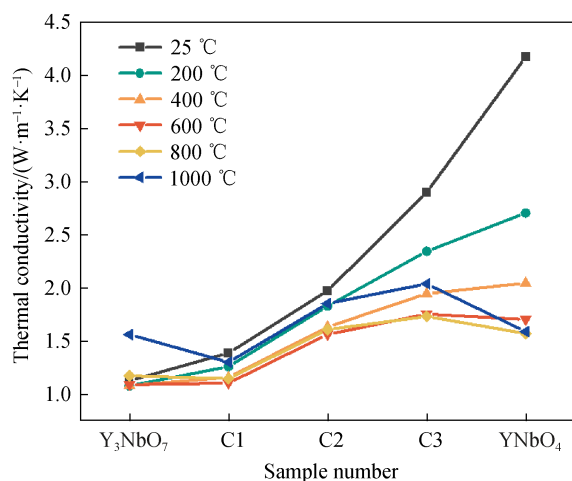


图 7 室温~ $1000^\circ\text{C}$  条件下  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ - $\text{YNbO}_4$  复合陶瓷的热导率

Fig. 7 Thermal conductivity of  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ - $\text{YNbO}_4$  composite ceramics at room temperature– $1000^\circ\text{C}$

当环境温度达到  $800^\circ\text{C}$  以上时, 光子热导(即热辐射)逐渐成为材料中热流传输的主要方式。材料对热辐射的吸收和辐射性能差异, 同样会影响其高温下的热导率变化趋势, 这可能是诱发材料热导率高温上翘的核心原因之一<sup>[24–25]</sup>。图 8 为  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ - $\text{YNbO}_4$  复合材料在  $400$ 、 $600^\circ\text{C}$  和  $800^\circ\text{C}$  条件下的高温发射率。对比  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  纯相, 在  $600\sim 800^\circ\text{C}$  温度区间  $2.5\sim 14.0 \mu\text{m}$  波段内, 样品 C1 表现出更高的红外光谱发射率, 其中在  $800^\circ\text{C}$  时, 复合陶瓷的全波段红外发射率相较于单一  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  相提高了 8%, 该特性在一定程度上抑制了其热导率的高温上升趋势。微观机制上,  $\text{YNbO}_4$  相的引入增加了材料内部的晶界

与相界数量, 提高了微观结构的不均匀性。同时, 在  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  与  $\text{YNbO}_4$  两相界面处, 由于晶格常数和晶体取向的差异, 引发了比单相晶界更显著的晶格畸变, 形成了强烈的声子和光子散射中心。此外, 两相之间的折射率差异进一步增强了光子散射效应。得益于  $\text{YNbO}_4$  相较高的本征发射率, 以及两相复合后形成的特殊的光学性质,  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ - $\text{YNbO}_4$  复合材料表现出更优异的高温热辐射屏蔽性能。其中, 样品 C1 在高温下表现出较  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  相更优异的隔热性能, 具备作为下一代新型热障涂层材料的应用潜力。

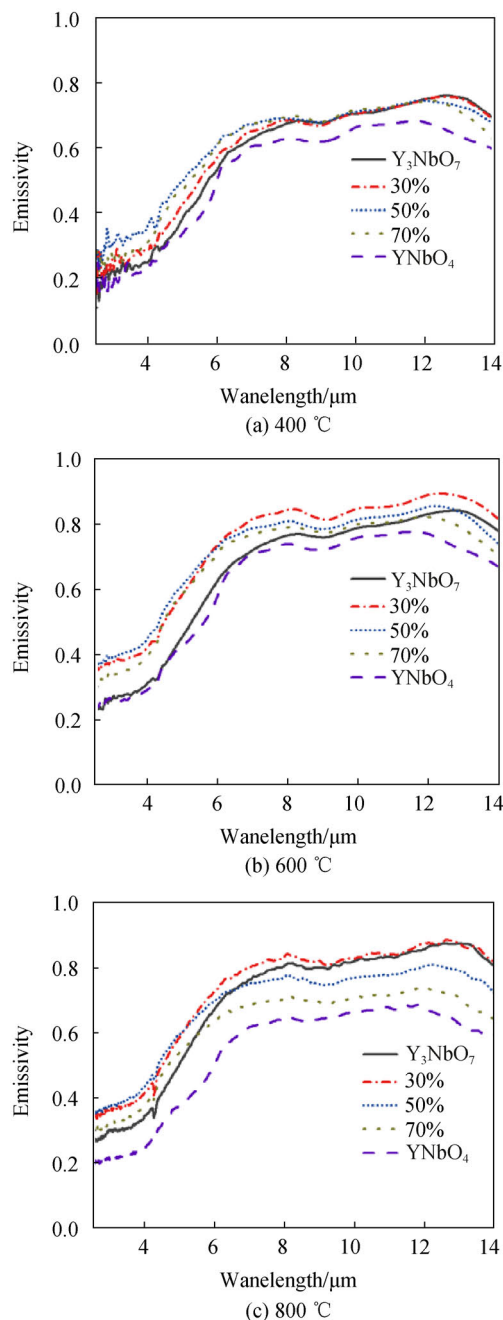


图 8 不同温度下  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ - $\text{YNbO}_4$  复合陶瓷的高温发射率  
Fig. 8 High-temperature emissivity of  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ - $\text{YNbO}_4$  composite ceramics at different temperatures

### 3 结论

采用原位合成的方法制备了一系列成分梯度的  $\text{Y}_3\text{NbO}_7\text{-YNbO}_4$  复合陶瓷材料, 其中第二相  $\text{YNbO}_4$  的含量与分布状态对复合陶瓷的综合性能具有决定性影响, 尤以 30%  $\text{YNbO}_4$  含量的复合陶瓷(样品 C1)展现出最优的综合性能。力学性能方面, 样品 C1 在保持较高弯曲强度(121.89 MPa)的前提下, 其断裂能较  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  纯相提高了约 13%, 实现了韧性的优化。对于隔热性能, 引入 30%  $\text{YNbO}_4$  相后, 未导致复合陶瓷的整体热导率显著升高, 25 °C 时其热导率为  $1.39 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ , 600 °C 时降至最低( $1.1 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ )。从组织结构进行分析, 样品 C1 中  $\text{YNbO}_4$  相以球状形态弥散分布于  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  相晶界处,  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  阻隔了  $\text{YNbO}_4$  相间的相互连接, 该独特分布状态有效阻断了高热导通路的形成。更为关键的是, 第二相有效抑制了  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  相高温热导率的上翘趋势。1000 °C 时热导率仅为  $1.29 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ , 较  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  纯相( $1.59 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ )降低 20%, 上翘幅度显著抑制。这一优化效果源于  $\text{YNbO}_4$  相引入后材料高温红外发射率的提升, 进而削弱了红外热辐射主导的热流传输。综上,  $\text{Y}_3\text{NbO}_7\text{-YNbO}_4$  复合陶瓷通过合理的成分设计与原位合成策略, 成功实现了低热导-高强韧的性能协同, 尤其是样品 C1 的优异综合性能, 使其在高温热防护领域展现出巨大的应用潜力。

#### 参考文献:

- [1] LAKIZA S M, GRECHANYUK M I, RUBAN O K, et al. Thermal barrier coatings: Current status, search, and analysis[J]. Powder Metall Met Ceram, 2018, 57(1): 82–113.
- [2] XU L, SUN Z N, RUAN Q C, et al. Development trend of cooling technology for turbine blades at super-high temperature of above 2000 K[J]. Energies, 2023, 16(2): 668.
- [3] KRAUSE A R, GARCES H F, DWIVEDI G, et al. Calcia-magnesia-alumino-silicate (CMAS)-induced degradation and failure of air plasma sprayed yttria-stabilized zirconia thermal barrier coatings[J]. Acta Mater, 2016, 105: 355–366.
- [4] SHUKLA S, SEAL S. Mechanisms of room temperature metastable tetragonal phase stabilisation in zirconia[J]. Int Mater Rev, 2005, 50(1): 45–64.
- [5] FLAMANT Q, CLARKE D R. Opportunities for minimizing radiative heat transfer in future thermal and environmental barrier coatings[J]. Scr Mater, 2019, 173: 26–31.
- [6] EVANS A G, MUMM D R, HUTCHINSON J W, et al. Mechanisms controlling the durability of thermal barrier coatings[J]. Prog Mater Sci, 2001, 46(5): 505–553.
- [7] CAO X Q. New materials and new structures for thermal barrier coatings[M]. Switzerland: Springer-Verlag. New materials and new structures for thermal barrier coatings, 2016: 87–123.
- [8] CHEN L, WU P, SONG P, et al. Potential thermal barrier coating materials:  $\text{RE}_3\text{NbO}_7$  (RE=La, Nd, Sm, Eu, Gd, Dy) ceramics[J]. J Am Ceram Soc, 2018, 101(10): 4503–4508.
- [9] YANG J, PAN W, HAN Y, et al. Mechanical properties, oxygen barrier property, and chemical stability of  $\text{RE}_3\text{NbO}_7$  for thermal barrier coating[J]. J Am Ceram Soc, 2020, 103(4): 2302–2308.
- [10] HAN Y, ZONG P A, HUANG M Z, et al. *In-situ* synthesis of gadolinium niobate quasi-binary composites with balanced mechanical and thermal properties for thermal barrier coatings[J]. J Adv Ceram, 2022, 11(9): 1445–1456.
- [11] XIE E Y, CHEN G L, WANG S Q, et al. Thermal shielding  $\text{Gd}_3\text{TaO}_7$ -based thermal barrier ceramic with ultralow NIR transmittance[J]. Small, 2025, 21(1): 2404567.
- [12] LIU X Y, YU Y L, HAN Y, et al.  $\text{GdAlO}_3/\text{Gd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$  composites for advanced thermal barrier coatings[J]. J Eur Ceram Soc, 2024, 44(15): 116736.
- [13] LAWN B R, PADTURE N P, CAIT H, et al. Making ceramics “ductile”[J]. Science, 1994, 263(5150): 1114–1116.
- [14] YU A, TAN Y, YANG X. Machining characteristics of Ce– $\text{ZrO}_2$ /CePO<sub>4</sub> ceramics, Journal of Rare Earths (2004) 22 223–225.
- [15] HUANG M Z, LIANG J, ZHANG P, et al. Opaque  $\text{Gd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7/\text{GdMnO}_3$  thermal barrier materials for thermal radiation shielding: The effect of polaron excitation[J]. J Mater Sci Technol, 2022, 100: 67–74.
- [16] ZHANG P, FENG Y J, LI Y, et al. Thermal and mechanical properties of ferroelastic  $\text{RENbO}_4$  (RE = Nd, Sm, Gd, Dy, Er, Yb) for thermal barrier coatings[J]. Scr Mater, 2020, 180: 51–56.
- [17] TIAN J, CHEN L, CHEN X L, et al. Regulation of crystal and microstructures of  $\text{RETaO}_4$  (RE = Nd, Sm, Gd, Ho, Er) powders synthesized *via* co-precipitation[J]. J Rare Earths, 2025, 43(6): 1246–1255.
- [18] LUO P D, XIAO W H, HUANG D D, et al. Phase equilibria in the  $\text{Y}_2\text{O}_3\text{-Nb}_2\text{O}_5$  system up to 2500 °C: New high-temperature experiments and thermodynamic modeling[J]. J Alloys Compd, 2022, 918: 165714.
- [19] 刘秋平.  $\text{YNbO}_4$  的合成制备及其介电性能的研究[D]. 北京: 北京交通大学, 2007.  
LIU Qiuping. Synthesis and dielectric properties of niobate yttrium [D]. Beijing: Beijing Jiaotong University, 2007.
- [20] YANG Y Q, WEN Z X, ZHAO Y C, et al. Influence of hot corrosion on thermal fatigue behavior of Ni-based single crystal superalloy: Invisible and accelerated crack[J]. Int J Fatigue, 2024, 182: 108162.
- [21] MALVAR L J, WARREN G E. Fracture energy for three-point-bend tests on single-edge-notched beams[J]. Exp Mech, 1988, 28(3): 266–272.
- [22] LI C, TAN D, LUO C, et al. Transformation toughening in zirconium tantalum ceramics[J]. Sci China Technol Sci, 2022, 65(8): 1772–1779.
- [23] AZIZ H S, HUANG M Z, LI Z Y, et al. Repressing high-temperature radiative heat transfer in thermal barrier coatings[J]. J Am Ceram Soc, 2022, 105(5): 3485–3497.
- [24] CHEN G L, FU H Y, ZOU Y C, et al. A promising radiation thermal protection coating based on lamellar porous Ca-Cr Co-doped  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  ceramic[J]. Adv Funct Mater, 2023, 33(47): 2305650.
- [25] ZHAO Q Y, WANG S Q, CHEN G L, et al.  $\text{La}_2\text{Hf}_2\text{O}_7$  based TBC materials with near-infrared ultra-low transmittance for thermal radiation shielding[J]. Adv Opt Mater, 2025, 13(1): 2401768.

## 作者贡献声明:

田京维: 论文构思、设计研究方法和实验方案、撰写初稿、绘制图表  
王中源: 调查研究、分析/综合数据并推导结论  
王乐鑫: 软件使用、验证  
张若琦: 数据管理

王树琪: 提供资源、获取资助、监督指导、审阅与修订  
陈国梁: 监督指导、审阅与修订  
邹永纯: 提供资源、获取资助  
王亚明: 提供资源、获取资助、项目管理、监督指导  
黄磊: 监督指导  
周玉: 监督指导

## Mechanical and Thermal Physical Properties of $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ - $\text{YNbO}_4$ Composite Ceramics for Thermal Barrier Coatings

TIAN Jingwei<sup>1</sup>, WANG Zhongyuan<sup>1</sup>, WANG Leyao<sup>1</sup>, ZHANG Ruqi<sup>1</sup>, WANG Shuqi<sup>1</sup>, CHEN Guoliang<sup>1</sup>, ZOU Yunchun<sup>1</sup>,  
WANG Yaming<sup>1</sup>, HUANG Lei<sup>2</sup>, ZHOU Yu<sup>1</sup>

(1. Institute of Advanced Ceramics, School of Materials Science and Engineering, Harbin Institute of Technology, Harbin 150080, China; 2. Luoyang Ship Material Research Institute, National Key Laboratory of Marine Corrosion and Protection, Luoyang 471023, Henan, China)

### Extended Abstract

**Introduction**  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ - $\text{YNbO}_4$  composite ceramic materials were synthesized by *in-situ* synthesis and solid-state reaction methods. The effect of  $\text{YNbO}_4$  content (*i.e.*, 0 to 70% in volume fraction) on the two-phase structure, distribution, and properties of the composite ceramics were investigated. The results show that the hardness and strength of the composite ceramics decrease with the increase in  $\text{YNbO}_4$  content. At  $\text{YNbO}_4$  content of 30%, the composite ceramic can maintain a high Vickers hardness of 8.99 GPa and a strength of 121.89 MPa, while the fracture energy is increased by approximately 18%, showing good comprehensive strength and toughness. Also,  $\text{YNbO}_4$  in C1 can be diffusely distributed around  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ , preventing the formation of high thermal conductive pathways. Meanwhile, the interface between the two phases and the refractive index difference enhances the scattering of sound/photons, thereby increasing the infrared radiation emissivity in the range of 2.5–14.0  $\mu\text{m}$  at high temperatures and suppressing an increase in thermal conductivity at high temperatures. At 1000  $^{\circ}\text{C}$ , the thermal conductivity is only  $1.29 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ .

**Methods** In this study,  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ - $\text{YNbO}_4$  series ceramic materials were prepared by *in-situ* synthesis and solid-state reaction methods. The phase of  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ - $\text{YNbO}_4$  composite ceramics was characterized by X-ray diffraction (XRD). The microstructure morphology of the ceramic samples was analyzed by scanning electron microscopy (SEM) and energy dispersive spectrometry (EDS). The grain size of each sample was statistically analyzed by a software named ImageJ, and the size distribution was fitted by the Gaussian peak. The Vickers hardness ( $H_V$ ) of the samples was determined by indentation method using a micro-Vickers hardness tester (HVT-1000A), and the indentation and crack were prefabricated. The three-point bending test was carried out on the composite ceramic samples by an electronic universal testing machine to obtain the stress-strain curve and the flexural strength of the material. The thermal diffusivity ( $\alpha$ ) was measured at 25–1000  $^{\circ}\text{C}$  by a laser flash diffusivity analyzer. The infrared emissivity in the range of 2.5–14.0  $\mu\text{m}$  was characterized by Fourier transform infrared spectroscopy (FTIR).

**Results and Discussion** For the mechanical properties, the Vickers hardness ( $H_V$ ) of the pure phases of  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  and  $\text{YNbO}_4$  are 11.19 GPa and 4.82 GPa, respectively. The hardness of the  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ - $\text{YNbO}_4$  composite ceramics lies between the two pure phases, and its hardness has a good stability due to the uniform dispersion of the two phases in the composite material. At  $\text{YNbO}_4$  content of 30%, the fracture surface of the composite ceramics shows a tortuous and undulating feature, accompanied by the pull-out phenomenon of the second phase grains, and the layered fracture morphology within the  $\text{YNbO}_4$  grains also occurs. This fracture feature is closely related to the layered ferroelastic domain skeleton structure within the  $\text{YNbO}_4$  grains. Under the driving of the stress field at the crack tip, the domain structure can adjust the atomic arrangement and orientation, thereby changing the crack propagation path and ultimately forming a layered fracture morphology. Regarding thermal properties, the thermal conductivity upturn phenomenon of sample C1 is significantly mitigated, and its high-temperature thermal conductivity is lower than that of the pure phase of  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ , with a thermal conductivity of only  $1.29 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$  at 1000  $^{\circ}\text{C}$ . The microstructural analysis indicates that a small amount of  $\text{YNbO}_4$  second phase in sample C1 is dispersed around the  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  grains, and this distribution effectively blocks the formation of high thermal conductivity pathways, resulting in the lowest overall thermal conductivity performance in this series of materials. At the interface between the  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  and  $\text{YNbO}_4$  phases, due to the differences in lattice constants and crystal orientations, more significant lattice distortions occur compared to single-phase grain boundaries, forming strong phonon and photon scattering centers. The  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ - $\text{YNbO}_4$  composite material exhibits superior high-temperature thermal radiation shielding performance due to the high intrinsic emissivity of the  $\text{YNbO}_4$  phase and the special optical properties formed after the two-phase composite.

**Conclusions** A series of  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ - $\text{YNbO}_4$  composite ceramics with composition gradients were *in-situ* synthesized. The content and distribution state of the second phase  $\text{YNbO}_4$  had a decisive influence on the comprehensive performance of the composite

ceramics, especially the composite ceramic with 30%  $\text{YNbO}_4$  content (sample C1) showed the optimum comprehensive performance. In terms of mechanical properties, the sample C1 maintained a relatively high bending strength (*i.e.*, 121.89 MPa) and its fracture energy was 18% greater than that of the pure  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  phase, achieving an optimization of toughness. Regarding thermal insulation performance, the  $\text{YNbO}_4$  phase in the sample C1 was dispersed in a spherical form at the grain boundaries of the  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  phase, and the  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  phase blocked the interconnection between the  $\text{YNbO}_4$  phases. This unique distribution could effectively block the formation of high thermal conductivity pathways. The second phase effectively suppressed the upward trend of the high-temperature thermal conductivity of the  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  phase. At 1000 °C, the thermal conductivity was only  $1.29 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ , which was 20% lower than that of the pure  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$  phase (*i.e.*,  $1.59 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ ), significantly reducing the upward trend. This optimization effect could be attributed to the increase in the high-temperature infrared emissivity of the material after the introduction of the  $\text{YNbO}_4$  phase, thereby weakening the heat flow transmission dominated by infrared thermal radiation. In summary, the  $\text{Y}_3\text{NbO}_7$ - $\text{YNbO}_4$  composite ceramics achieved the performance synergy of low thermal conductivity and high strength and toughness through reasonable composition design and in-situ synthesis strategy. The sample C1 with excellent comprehensive performance could have a great application potential in the field of high-temperature thermal protection.

**Keywords** thermal barrier ceramics; composite materials; defective fluorite structure; bending strength; thermal conductivity; high-temperature emissivity