



## ارزیابی رفتار اکسایش پیوسته پوشش پاشش پلاسمایی SiC/Mo-Si-B روی گرافیت

مهدی احمدی<sup>۱</sup>، سعیدرضا بخشی<sup>۱ و ۲\*</sup>

۱. دانشکده مهندسی مواد، دانشگاه صنعتی مالک اشتر، شاهین شهر، اصفهان

۲. شهرک علمی و تحقیقاتی اصفهان، شرکت اطلس پرتو آرتین

### چکیده

### واژگان کلیدی:

این مطالعه به منظور ارزیابی استحکام چسبندگی و رفتار اکسایش پیوسته پوشش SiC/Mo-Si-B روی زیرلایه‌های گرافیتی انجام شد. برای این منظور، پوشش SiC با استفاده از روش سمانتاسیون همراه با فعال کننده NH<sub>4</sub>Cl روی گرافیت ایجاد شد. لایه ثانویه Mo-Si-B با استفاده از پاشش پلاسمای اتمسفری (APS) به کمک محاف‌کننده آرگنی روی نمونه‌ها حاصل شد. مورفولوژی سطح و ترکیب شیمیایی پوشش‌های SiC و Mo-Si-B با استفاده از میکروسکوپ الکترونی روبشی SEM مجهز به سیستم طیف سنجی پراکندگی انرژی (EDS) بررسی و ارزیابی شدند. تجزیه و تحلیل سطح با پراش پرتو ایکس (XRD) نشان داد که پوشش کاربرد سیلیسیم نسبتاً خالصی تشکیل شده است. در مورد Mo-Si-B، فازهای مختلف بین Mo و Si، Mo و B و Mo خالص تشخیص داده شد. چسبندگی پوشش چند لایه با آزمون کشش مورد بررسی قرار گرفت و نشان دهنده چسبندگی و پیوستگی کافی از پوشش بود. آزمون اکسایش در هوا تا دمای ۱۲۷۳ K انجام شد و زمان و تغییر وزن به طور همزمان ثبت شد. نتایج نشان داد که پوشش به کار رفته، به طور قابل توجهی مقاومت اکسایش گرافیت را با لایه‌های شیشه‌ای SiO<sub>2</sub> و B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> بهبود می‌بخشد.

اکسایش پیوسته،  
ترکیبات بین فلزی،  
Mo-Si-B،  
SiC،  
گرافیت.

تاریخ دریافت: ۱۴۰۳/۱۰/۱۳

تاریخ پذیرش: ۱۴۰۳/۱۱/۱۵

DOI: 10.22034/ISSST.2025.2049713.1637

## Evaluation of continuous oxidation behavior plasma spraying of SiC/Mo-Si-B on graphite

### Abstract

This study was conducted to evaluate the adhesion strength and oxidation behavior of SiC/Mo-Si-B coating applied on graphite substrates. For this purpose, SiC coating was created on graphite substrate using pack cementation method with NH<sub>4</sub>Cl activator. The secondary layer Mo-Si-B coating was created using atmospheric plasma spraying (APS) with argon protective shower on the samples. Surface morphology and chemical composition of the SiC and Mo-Si-B coatings were investigated by Scanning Electron Microscopy (SEM) equipped with an Energy Dispersive Spectroscopy (EDS) system. Surface analysis by X-ray diffraction (XRD) revealed that the structure of SiC was mainly composed of SiC phase. In the case of Mo-Si-B, different phases of Mo and Si, Mo and B, and pure Mo were identified. The adhesion of the multi-layer coating was evaluated by tensile test which indicated a sufficient adhesion and cohesion of the coating. The oxidation test was carried out in the air at 1273 K and the time and weight changes were recorded simultaneously. The results showed that the applied coating significantly improves oxidation resistance of graphite with SiO<sub>2</sub> and B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> glass layers.

**Keywords:** continuous oxidation; intermetallic compounds; Mo-Si-B; SiC; graphite

\* Corresponding author E-mail: bakhshir@mut-es.ac.ir.

۱- مقدمه

محصولات مختلف گرافیت و کربن به طور گسترده در فرایندهای متالورژیکی آهنی و غیرآهنی و یا تولید شیشه، و به عنوان مواد به کار گرفته شده در دمای بالا در صنایع هوافضا مورد استفاده قرار می‌گیرند، زیرا نسبت استحکام به وزن بالا، مقاومت در برابر شوک حرارتی عالی، حفظ خواص مکانیکی در دمای بالا و پایداری حرارتی خوبی از خود نشان می‌دهند [۱-۶]. با این حال، در اتمسفر حاوی اکسیژن، کاربرد آن‌ها با میزان اکسایش زیاد در دمای بالاتر از ۷۲۳ K محدود می‌شود. گرافیت مستعد واکنش با هوا برای تشکیل اکسید کربن است، بنابراین، افزایش مقاومت به اکسایش گرافیت در دماهای بالاتر در یک اتمسفر اکسید کننده، اهمیت زیادی دارد [۲، ۵، ۷-۹]. تلاش‌های بسیاری برای بهبود مقاومت به اکسایش گرافیت و کامپوزیت کربن/کربن به منظور کاربردهای درجه حرارت بالا انجام شده و در این خصوص روش‌های مختلفی ارائه شده است [۱۰]. رسوب یک پوشش مقاوم به اکسایش، کارآمدترین و منطقی‌ترین انتخاب برای محافظت از گرافیت در دماهای بالا است [۲، ۳، ۷، ۱۱-۱۳].

به دلیل مقاومت به اکسایش عالی، ضریب انبساط حرارتی کم و سازگاری فیزیکی و شیمیایی رضایت بخش کاربرد سیلیسیم (SiC)، این پوشش به عنوان یک پوشش مقاوم به اکسایش روی مواد کربنی، توجه بسیاری را به خود جلب کرده است [۲، ۱۴]. با این حال، مطالعات قبلی نشان داده‌اند که عدم تطابق انبساط حرارتی بین الیاف<sup>۱</sup> SiC و کربن، باعث ترک خوردگی پوشش شده و نفوذ اکسیژن به داخل پوشش را سبب می‌شود [۲، ۱۱، ۱۵]. علاوه بر این، پوشش SiC برای جلوگیری از اکسایش در دمای بالاتر از ۱۶۷۳ K طراحی شده است، چرا که در شرایط اکسایشی فعال، ویژگی پرکنندگی ترک‌ها توسط SiO<sub>2</sub>، فعال می‌شود [۱۶، ۱۷]. از طرف دیگر، در دماهای پایین‌تر و در محیط‌های اکسید کننده، سیالیت SiO<sub>2</sub> نمی‌تواند برای بسته شدن ترک‌ها کافی باشد. در تحقیقات قبلی، پوشش‌های چند لایه مانند SiC-MoSi<sub>2</sub> [۱۸]، Mullite-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiC [۱۹]، MoSi<sub>2</sub>-CrSi<sub>2</sub>-Si/B اصلاح شده [۲۰]، همراه با

B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> اصلاح شده [۲۱]، Si-Mo-B [۲۲]، سیلیکات اوتریم/SiC [۲۳] و AlPO<sub>4</sub>/SiC [۲۴]، توانایی خوب محافظت از اکسایش مواد کربنی را به اثبات رسانده‌اند. بین پوشش‌های فوق، Mo-Si-B یکی از مواردی است که به دلیل ثبات حرارتی خوب و نقطه ذوب بالا به عنوان یکی از امیدوارکننده‌ترین پوشش‌های مقاوم در برابر اکسایش شناخته شده است. خاصیت جالب این نوع پوشش، تشکیل یک فیلم شیشه‌ای بوروسیلیکات با ویسکوزیته پایین روی سطح، در دمای بالا است. این فیلم شیشه‌ای پیوسته و غیر متخلخل، می‌تواند به دلیل سیالیت بالاتر، انسداد ترک را نسبت به لایه SiO<sub>2</sub> در دماهای پایین‌تر انجام دهد [۲، ۲۵-۲۷]. علاوه بر این، انبساط حجمی نسبی (RVE)<sup>۲</sup> در واکنش‌های شیمیایی حالت جامد، در دماهای بالا، پرکنندگی مؤثری از ترک در پوشش سرامیکی را فراهم می‌کند و منجر به ویژگی خودمحافظةتی<sup>۳</sup> می‌شود؛ به این معنا که حجم مولی محصولات واکنش از مواد اولیه بیشتر است [۲۸]. پوشش‌های مبتنی بر Mo-Si-B با روش‌های مختلفی مانند سمانتاسیون فشرده [۲۵، ۲۹، ۳۰]، پاشش حرارتی [۳۱]، رسوب بخار [۳۲] و روش پراکنشی مگنترون<sup>۴</sup> [۲۷] تولید شده‌اند. در بین روش‌های یاد شده، روش پاشش پلاسمایی، فرایندی مناسب و مقرون به صرفه جهت رسوب پوشش‌های سرامیکی در نظر گرفته می‌شود. استفاده از پوشش‌های مبتنی بر Mo-Si-B، با استفاده از پاشش پلازما، قبلاً مورد مطالعه قرار گرفته است [۲۶، ۳۱، ۳۳].

پاشش پلازما در اتمسفر به دلیل اکسایش بالا در تحقیقات قبلی، بررسی محدودی شده است. با این حال، این روش نه تنها به دلیل رسوب با نرخ بالا از نظر اقتصادی رضایت‌بخش است، بلکه بسیار ساده است و پیچیدگی‌های کمی برای استفاده دارد. از سویی، مراجع محدودی، ارزیابی رفتار اکسایشی Mo-Si-B تولید شده توسط روش APS در بستر گرافیت را بررسی کرده‌اند. در پژوهش حاضر، پوشش Mo-Si-B توسط روش APS، همراه با آرگن، بر روی یک بستر گرافیت با لایه پیوندی SiC حاصل از فرایند سمانتاسیون فشرده بررسی شده است. در

<sup>3</sup> self-healing

<sup>4</sup> magnetron sputtering

<sup>1</sup> fibers

<sup>2</sup> relative volume expansion

طی ۳ ساعت در دمای K ۱۶۷۳ در داخل کوره لوله‌ای حاوی گاز آرگن سنتز شدند. فرایند رسوب پوشش ثانویه، با استفاده از روش APS، توسط نازل PS50MPF/B و پارامترهای ارائه شده در جدول ۲ انجام شد [۳۴]. به منظور محافظت پودرها از اکسایش، گاز آرگن حین پاشش پودر و اطراف آن به کمک محافظت‌کننده آرگنی ۱ جریان دارد.

جدول ۲: مشخصه‌های در نظر گرفته شده در این پژوهش برای فرایند

پاشش پلاسمای اتمسفری همراه با محافظت‌کننده آرگنی [۳۴]

مشخصه	پارامتر
PS50MPF/B	مدل تفنگ
۳۶	توان (kW)
۷۵۰	آمپراژ (A)
۴۸	ولتاژ (V)
۳۰	گاز آرگن (L/min)
۵	گاز نیتروژن (L/min)
۳	گاز آرگن حامل (L/min)
۱۰۰	فاصله پاشش (mm)
۱۰ تا ۱۲	نرخ تغذیه پودر (g/min)

#### ۲-۲- مشخصه‌یابی پوشش

برای شناسایی فازهای پوشش، آزمون پراش پرتو ایکس (XRD) توسط آنالیزکننده فیلیپس با آند مسی به طول موج  $\lambda = 1.5418 \text{ \AA}$ ، ولتاژ ۴۰ کیلوولت، جریان ۳۰ میلی‌آمپر و اندازه گام  $0.05^\circ$  درجه با زمان ۲ ثانیه و در محدوده  $20^\circ$  تا  $90^\circ$  درجه استفاده شد. میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) فیلیپس مجهز به یک سیستم طیف سنجی پراکندگی انرژی (EDS) برای ارزیابی ریزساختار و مورفولوژی نمونه‌ها و همچنین تعیین ترکیب شیمیایی پوشش استفاده شد.

آزمون استحکام چسبندگی پوشش مطابق با استاندارد ASTM C633-01 انجام شد [۳۵]. از چسب رزین ساخته شده توسط شرکت ولداسکاج ۲ با کد SW2214 برای تهیه نمونه استفاده شد. یک نمونه استوانه‌ای از گرافیت خام توسط رزین به یک نمونه استوانه‌ای پوشش‌دار چسبانده شد و برای ارزیابی چسبندگی پوشش SiC/Mo-Si-B، از دستگاه کشش زوئیک ۳

ادامه، ترکیبات فازی و ریزساختاری پوشش چندلایه SiC/Mo-Si-B، همراه با میزان چسبندگی پوشش مورد بررسی قرار گرفت و در نهایت، رفتار اکسایش پیوسته این پوشش ترکیبی با پوشش SiC و بستر گرافیت مقایسه شد. همان‌طور که پیش‌تر اشاره شد گزارشی از چنین پوشش‌های کامپوزیتی ارائه نشده است.

#### ۲- روش تحقیق

##### ۱-۲- نمونه‌های زیرلایه و آماده‌سازی SiC/Mo-Si-B

تمام نمونه‌ها با استفاده از بلوک‌های گرافیتی با مشخصات ذکر شده در جدول ۱ و ابعاد  $20 \times 100 \times 100$  میلی‌متر تهیه شدند. نمونه‌های اکسایش به شکل مکعب‌هایی با ابعاد  $12 \times 10 \times 10$  میلی‌متر (بدون لبه‌های تیز) و نمونه‌های استحکام چسبندگی به صورت استوانه‌ای با قطر ۱۶ میلی‌متر و ارتفاع ۱۰۰ میلی‌متر تهیه شد. تمام نمونه‌ها با کاغذ سنباده SiC شماره ۴۰۰ ساییده شدند و به مدت ۱۵ دقیقه در استون و دستگاه اولتراسونیک شستشو داده شده و به مدت ۲ ساعت در دمای K ۳۷۳ خشک شدند. پوشش SiC در ابتدا روی گرافیت با استفاده از روش سمانتاسیون فشرده به کمک مخلوطی از ۵۵ wt% Si، ۱۵ wt%  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ، ۱۵ wt%  $\text{NH}_4\text{Cl}$  و ۱۵ wt% گرافیت در K ۱۸۷۳ به مدت ۲ ساعت ایجاد شد.  $\text{NH}_4\text{Cl}$  به عنوان یک فعال‌کننده، نفوذ سیلیسیم را افزایش و با تشکیل گاز  $\text{SiCl}_4$  زمان فرایند را کاهش می‌دهد.

جدول ۱: مشخصات بلوک گرافیتی

چگالی	ضریب انبساط	تخلخل باز	استحکام
توده‌ای	حرارتی ( $2^\circ\text{C}$ )	(درصد)	کششی
( $\text{g/cm}^3$ )	(۱۰۰۰)		(MPa)
۱٫۷۵	$2.6 \times 10^{-6} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$	۱۰-۱۲	۹-۱۰

به منظور تهیه پوشش مقاوم در برابر اکسایش  $\text{MoSi}_2\text{-MoB}$ ، از پودرهای Mo، Si و B با اندازه ذرات تقریبی به ترتیب ۱۰، ۸ و ۲ میکرومتر و خلوص ۹۸٪ وزنی استفاده شد، به گونه‌ای که به مدت ۵ ساعت در آسیاب سیاره‌ای مخلوط شده و سپس در

<sup>3</sup> Zwick

<sup>1</sup> Argon shrouding gas

<sup>2</sup> Weld Scotch

روی سطح واضح است. در شکل ۱ (ب)، تصویر مقطع لایه SiC و زیرلایه گرافیت در دو رنگ مختلف (حالت BSE)، قابل مشاهده است. با توجه به آنالیز EDS (شکل ۱ ب)، پوشش SiC با رنگ روشن تر در مقایسه با گرافیت تیره دیده می شود. مشخص است که پوشش و ساختاری متراکم نتیجه می دهند. علاوه بر این، ضخامت پوشش SiC حدود ۳۰۰ میکرومتر است.

شکل ۲ الگوی XRD پوشش SiC را که به مدت دو ساعت توسط سمانتاسیون فشرده روی گرافیت اعمال شده است، نشان می دهد. از این الگو دو فاز SiC و گرافیت قابل تشخیص است. با دقت در این الگوها می توان دریافت شدت پیکهای SiC بسیار بیشتر از پیکهای مربوط به کربن است. این امر بیانگر آن است که در زمان ۲ ساعت، میزان زیادی از پوشش SiC روی گرافیت ایجاد شده و احتمالاً عمق نفوذ آن نیز درون گرافیت به حد قابل قبولی رسیده است. در نتیجه به هنگام اکسایش، سطح کمتری از گرافیت با اتمسفر حاوی اکسیژن در تماس خواهد بود.

استفاده شد. این آزمون سه بار تکرار و نتایج به صورت میانگین گزارش شد (جدول ۳).

جدول ۳: نتایج آزمون استحکام چسبندگی (برحسب MPa) برای پوشش

SiC/Mo-Si-B			
آزمون اول	آزمون دوم	آزمون سوم	میانگین
۹/۶	۱۰/۲	۹/۷	۹/۸

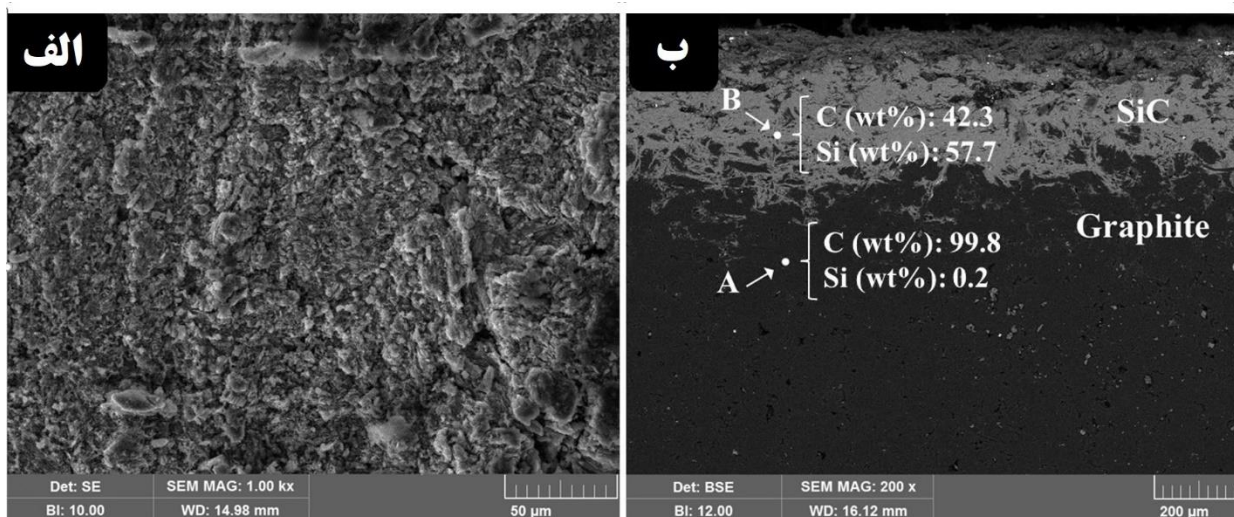
### ۳-۲- آزمون اکسایش پیوسته

برای ارزیابی مقاومت به اکسایش پیوسته نمونه های پوشش دار، مطابق با استاندارد ASTM E1131-03 [۳۶]، از یک کوره المتی با توانایی ارزیابی تغییرات وزن برخط استفاده شد. حساسیت دمایی دستگاه  $\pm 5$  درجه سانتیگراد تا دمای ۱۲۷۳ K و دقت ترازو ۰/۱ میلی گرم بوده است.

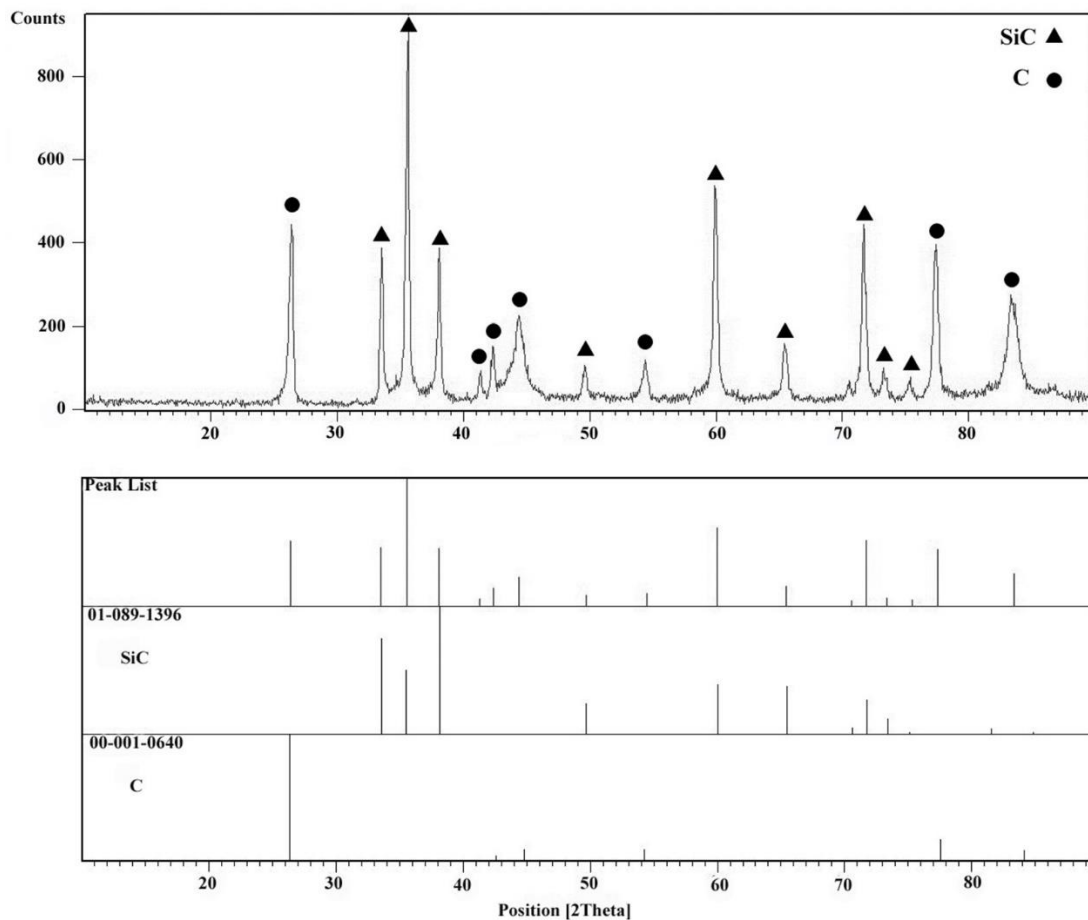
### ۳- نتایج و بحث

#### ۳-۱- پوشش SiC

شکل ۱ تصاویر میکروسکوپی الکترونی روبشی از سطح (الف) و مقطع (ب) پوشش SiC را نشان می دهد. همانطور که در شکل ۱ (الف) نشان داده شده است، این پوشش دارای مورفولوژی غیرهمگن و غیریکنواخت بوده و وجود حفرات



شکل ۱. تصاویر میکروسکوپی الکترونی روبشی از SiC؛ (الف) سطح، و (ب) مقطع و آنالیز EDS.



شکل ۲: الگوی XRD پوشش SiC.

مناطق سفید، خاکستری و تیره به ترتیب با پوشش APS، SiC و گرافیت مطابقت دارند.

شکل ۵ الگوهای پراش اشعه ایکس سطح پوشش Mo-Si-B را که توسط APS حاصل شده است، همراه با الگوهای مرجع نشان می‌دهد. مشخص است که پس از پاشش، ترکیبات  $\beta$ - $\text{MoSi}_2$  و  $\text{MoB}_2$  در ساختار پوشش علاوه بر ترکیبات  $\alpha$ - $\text{MoSi}_2$  و  $\text{MoB}$  تشکیل شده‌اند. تشکیل چنین ترکیباتی به دلیل شرایط غیرتعادلی حاکم بر فرایند است. فاز  $\alpha$ - $\text{MoSi}_2$  یک فاز پایدار بوده و هنگامی که فرایند انجماد با سرعت تعادلی یا نزدیک آن صورت گیرد، تشکیل می‌شود. اما فاز  $\beta$ - $\text{MoSi}_2$  شبه پایدار است و در شرایط غیرتعادلی به هنگام انجماد سریع، آلیاژسازی مکانیکی یا رسوب‌دهی لایه نازک به وجود می‌آید [۳۷ و ۳۸]. بنابراین کسری از  $\alpha$ - $\text{MoSi}_2$  به دلیل نرخ سرد شدن بالای ذرات مذاب رسوب یافته در حین فرایند پاشش به فاز  $\beta$ - $\text{MoSi}_2$  تبدیل شده است [۳۹].

### ۲-۳- پوشش Mo-Si-B

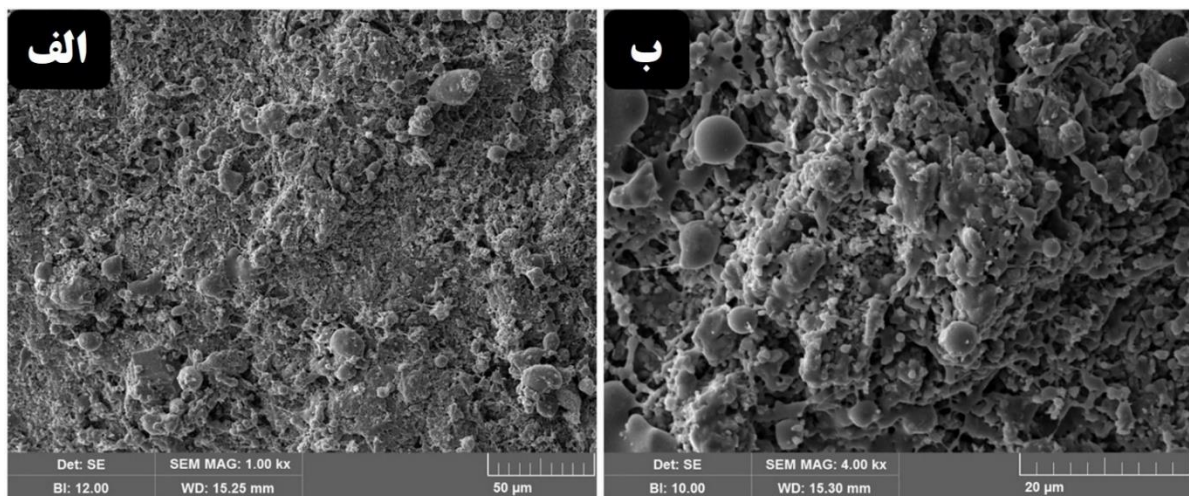
شکل ۳ (الف) و (ب)، مورفولوژی سطح پوشش Mo-Si-B به روش APS را در دو بزرگنمایی متفاوت نشان می‌دهد. با دقت در تصاویر می‌توان مشاهده نمود که پوشش اعمال شده شامل اسپلت‌هایی است که روی یکدیگر با درجه پهن‌شدگی متفاوتی قرار گرفته‌اند و سطح را به صورت ناهمگون پوشانده‌اند. پوشش مملو از حفرات ریز و خلل و فرج‌هایی است که بر اثر انجماد سریع یا عدم ذوب کامل قطرات پاشش بوجود آمده است. همچنین ترک‌هایی روی سطح پوشش مشاهده می‌شود که ناشی از عدم تطابق ضریب انبساط حرارتی پوشش پاششی و لایه میانی SiC و همچنین تنش‌های حرارتی ایجاد شده در اثر انجماد سریع اسپلت‌ها می‌باشد.

شکل ۴ تصویر مقطع میکروسکوپی الکترونی روبشی از پوشش را نشان می‌دهد که به راحتی از SiC قابل تشخیص است. بر اساس نتایج EDS آورده شده در شکل، مشخص است که

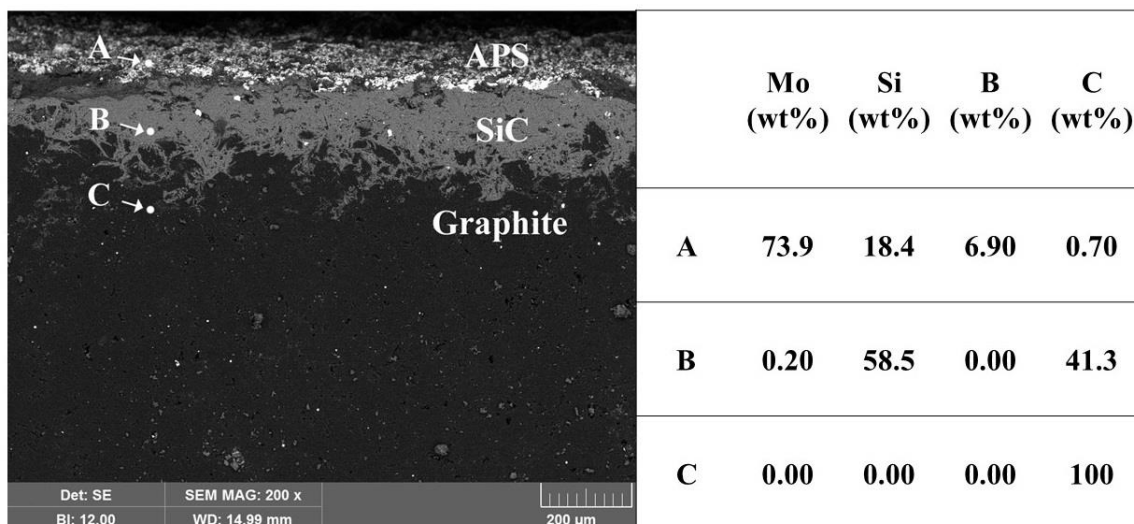
### ۳-۳- استحکام چسبندگی

به منظور تعیین استحکام چسبندگی پوشش SiC/Mo-Si-B اعمال شده به روش پاششی، آزمون کشش با اتصال نمونه‌های استوانه‌ای دارای پوشش، به نمونه‌های استوانه‌ای گرافیت خام، انجام گرفت. با انجام آزمون و اعمال بار کششی، قبل از ایجاد هرگونه جدایشی در ناحیه پوشش و محل اتصال، نمونه‌های استوانه‌ای گرافیتی شکسته شدند (شکل ۶). بنابراین نتیجه می‌شود که استحکام چسبندگی پوشش از استحکام کششی

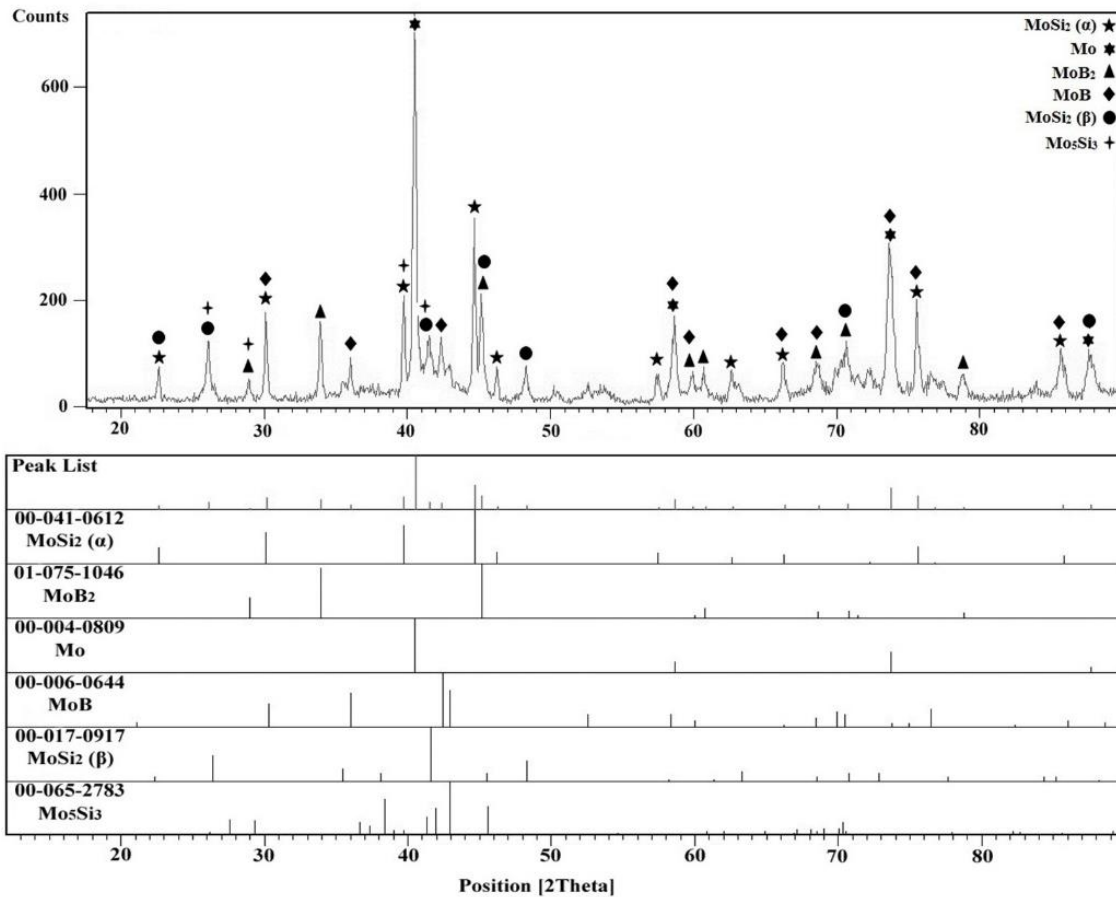
گرافیت (در حدود ۱۰MPa) بالاتر است. استحکام چسبندگی مطلوب پوشش SiC/Mo-Si-B، ناشی از سطح مناسب زیرلایه است که با پوشش دهی ترکیب SiC روی گرافیت، زبری بالا جهت انجام فرایند پاشش حرارتی و اعمال پوشش حاصل شده است. به همین دلیل نتایج این آزمون به صورت کیفی و براساس استحکام کششی گرافیت بررسی و گزارش شده و اطلاعات آن در جدول ۳ قابل مشاهده است.



شکل ۳: تصاویر میکروسکوپی الکترونی روبشی از سطح پوشش Mo-Si-B در بزرگنمایی (الف) ۱۰۰۰ و (ب) ۴۰۰۰ برابر.



شکل ۴: تصویر میکروسکوپی الکترونی روبشی از سطح مقطع پوشش APS.



شکل ۵: الگوی XRD پوشش Mo-Si-B توسط پاشش پلاسما.

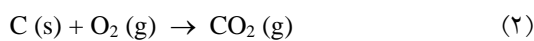


شکل ۶: نمونه شکسته شده پس از آزمایش کشش برای ارزیابی استحکام چسبندگی.

### ۳-۴- آزمون اکسایش پیوسته

به منظور مطالعه رفتار اکسایش در دمای بالا، گرافیت بدون پوشش و نمونه‌های پوشش‌دار با SiC و SiC/Mo-Si-B در معرض آزمون اکسایش پیوسته در دمای ۱۲۷۳ K قرار گرفتند. نمودارهای تغییر جرم در واحد سطح به عنوان تابعی از زمان اکسایش برای همه نمونه‌ها در شکل‌های ۷ و ۸ نشان داده شده است. شکل ۷، ۳۳۰۰ ثانیه اول آزمایش و مرحله اولیه اکسایش را نشان می‌دهد. با توجه به این شکل و واکنش‌های (۱) و (۲)، می‌توان نتیجه گرفت که اکسایش گرافیت خام تقریباً از دمای

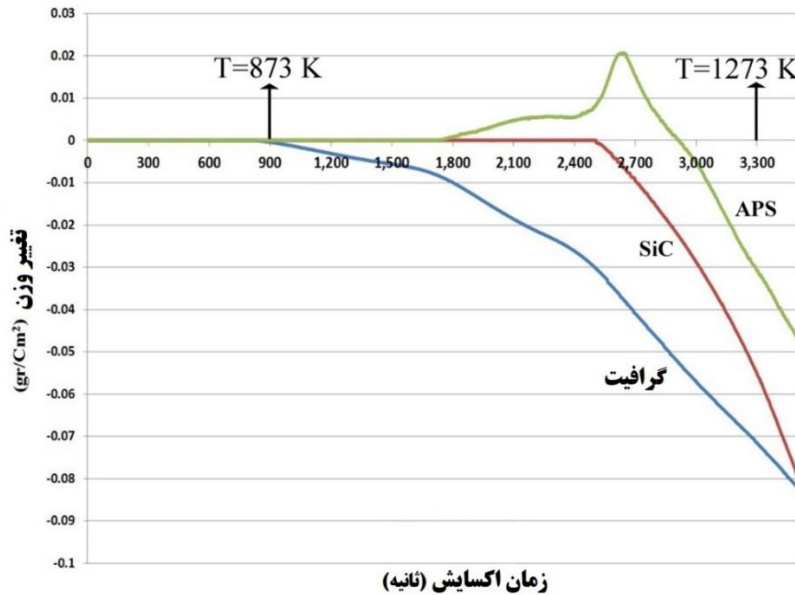
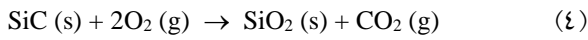
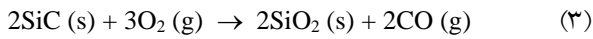
۸۷۳ K شروع می‌شود و این روند با یک نرخ افزایشی ادامه یافته است. سرانجام، آزمایش اکسایش در ۶۰۰۰ ثانیه و در دمای ۱۲۷۳ K با اکسایش کامل نمونه گرافیتی متوقف شد (تبخیر کامل نمونه).



با استفاده از پوشش SiC در نمونه‌های گرافیتی، مقاومت به اکسایش افزایش یافته و کاهش وزن از دمای بالاتر رخ داده است. اکسایش و کاهش وزن تقریباً در ۲۵۰۰ ثانیه آغاز شد، در

پدیده‌ای منطبق بر تحقیقات سایر محققان نیز می‌باشد [۴۰].

حالی که برای گرافیت نزدیک به ۹۰۰ ثانیه شروع شده بود (شکل ۷). این موضوع به دلیل اکسایش ترکیب SiC روی سطح پوشش است که منجر به تشکیل یک لایه SiO<sub>2</sub> آمورف روی سطح پوشش از طریق واکنش (۳) و (۴) می‌شود. مشاهده چنین



شکل ۷: تغییر وزن در واحد سطح بر حسب زمان اکسایش در ۳۳۰۰ ثانیه اول.



شکل ۸: تغییر وزن در واحد سطح بر حسب زمان اکسایش به مدت ۱۰ ساعت.

به محافظت بهتر در برابر اکسایش با قابلیت خودمحافظتی<sup>۱</sup> می‌شود. از طرف دیگر، با توجه به واکنش (۴)، گاز CO<sub>2</sub> ایجاد شده از پوشش خارج می‌شود و منجر به ایجاد حفره‌هایی روی سطح و عدم یکنواختی لایه SiO<sub>2</sub> در سطح پوشش می‌گردد.

لایه شیشه‌ای SiO<sub>2</sub> نفوذپذیری کم اکسیژن [۲] و انبساط حجمی بزرگی [۲۸] را در پی دارد. بنابراین، تشکیل یک لایه نازک از SiO<sub>2</sub> روی قطعات کربنی، مانع نفوذ اکسیژن به داخل و ایجاد هر گونه واکنشی با اتم‌های درونی خواهد شد و منجر

<sup>۱</sup> self-healing ability

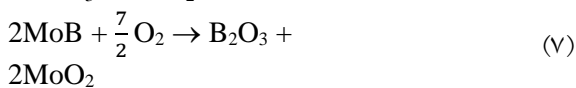
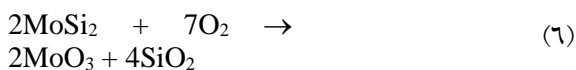
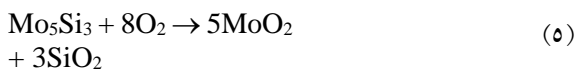
این حفره‌ها و ترک‌ها که ناشی از عدم تطابق انبساط حرارتی بین پوشش و زیرلایه است، نفوذ اکسیژن به داخل زیرلایه را تسهیل می‌کنند و در نهایت منجر به اکسایش آن می‌شوند.

شکل ۸ سرعت اکسایش و کاهش وزن را در مقابل زمان اکسایش پس از ۱۰ ساعت نشان می‌دهد. نمودارها نشان‌دهنده کاهش وزن ۶٫۳ گرم در سانتی‌متر مربع برای نمونه پوشش داده شده توسط SiC است. تصاویر میکروسکوپی الکترونی روبشی از سطح و مقطع پوشش SiC پس از آزمایش اکسایش در شکل ۹ (الف و ب) به نمایش گذاشته شده است. علاوه بر این، آنالیز EDS (نقطه مشخص شده در شکل ۹ (ج)) انجام شد تا ارزیابی بهتری از پوشش SiC پس از ۱۰ ساعت اکسایش در ۱۲۷۳ K انجام شود. همانطور که در شکل ۹ (الف) مشخص است، سطح مملو از ترک‌ها و ریزترک‌هایی شده که اکسیژن از طریق همین ریزترک‌ها به فصل مشترک بین زیرلایه کربنی و پوشش نفوذ کرده و سبب اکسایش کربن و خروج گازهای CO و CO<sub>2</sub> می‌شود. خروج این گازها باعث تشکیل سوراخ‌ها و حباب‌های ریز در سطح فاز شیشه‌ای می‌شود که بهترین مکان برای اکسایش است. با دقت در تصاویر مشخص می‌شود که هنوز یک فاز شیشه‌ای روی سطح وجود دارد و با رنگ روشن‌تر (شکل ۹ (ج)) در مقایسه با سایر قسمت‌ها قابل مشاهده است. این فاز شیشه‌ای با به دست آوردن ویسکوزیته مناسب، حفره‌ها و ریزترک‌های روی سطح را پر می‌کند و پیشرفت اکسایش را کند می‌سازد.

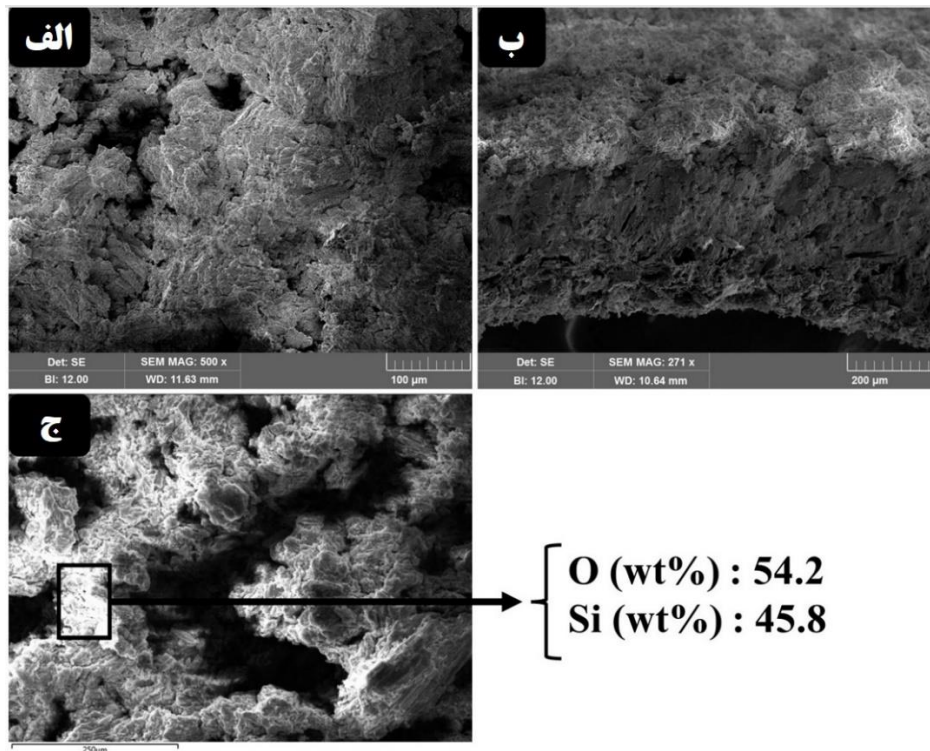
نمودارهای APS در شکل‌های ۷ و ۸ مربوط به نمونه پوشش داده شده با پاشش پلاسمایی (SiC/Mo-Si-B) در هواست. همانطور که مشاهده می‌شود، در ۱۷۰۰ ثانیه، نمونه‌ها شروع به افزایش وزن می‌کنند و تا زمان نزدیک به ۲۷۰۰ ثانیه، تغییر وزن به بیشترین مقدار خود یعنی ۰٫۰۲ گرم در سانتی‌متر مربع می‌رسد. کاهش وزن برای نمونه APS با شیب آهسته و با کاهش وزن کلی ۱٫۵ گرم در سانتی‌متر مربع تا پایان آزمون

ادامه داشت. شکل ۱۰ تصاویر میکروسکوپی الکترونی روبشی در بزرگنمایی‌های مختلف و آنالیز EDS را در نقطه مشخص شده در سطح پوشش APS (شکل ۱۰ (ج))، پس از ۱۰ ساعت اکسایش پیوسته در ۱۲۷۳ K نشان می‌دهد. حفره‌های کوچک و بزرگ که غالباً عمیق هستند همراه با ترک‌های ریز ناشی از اکسایش، در شکل ۱۰ (الف) مشخص است. لایه‌های تقریباً صاف و شیشه‌ای نیز بسیاری از مناطق را پوشانده است (شکل ۱۰ (ب)). نتایج EDS نشان داده شده در شکل ۱۰ (ج)، وجود عناصر Si، B، O و Mo را در پوشش پس از اکسایش تأیید می‌کند.

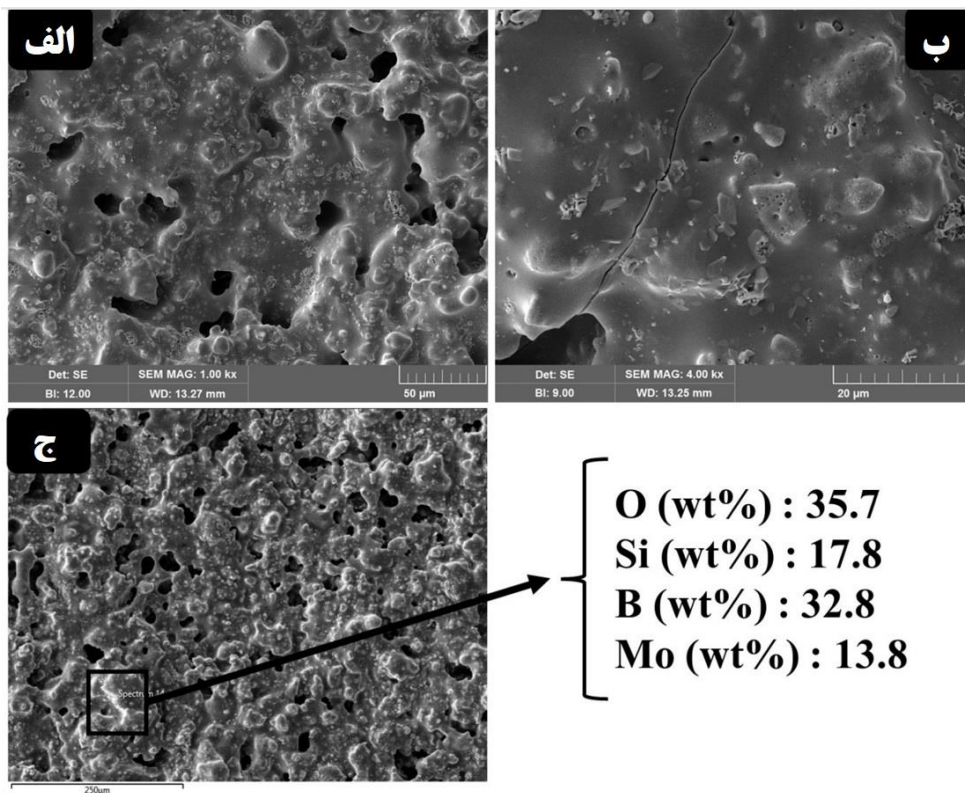
شکل ۱۱، الگوی پراش پرتو ایکس از پوشش APS را پس از آزمون اکسایش نشان می‌دهد. به دلیل وجود فازهای MoB، MoSi<sub>2</sub> و Mo<sub>5</sub>Si<sub>3</sub> در پوشش (شکل ۵)، واکنش‌های (۵) تا (۷) در مراحل اولیه فرایند اکسایش حاکم است [۲۲، ۴۰].



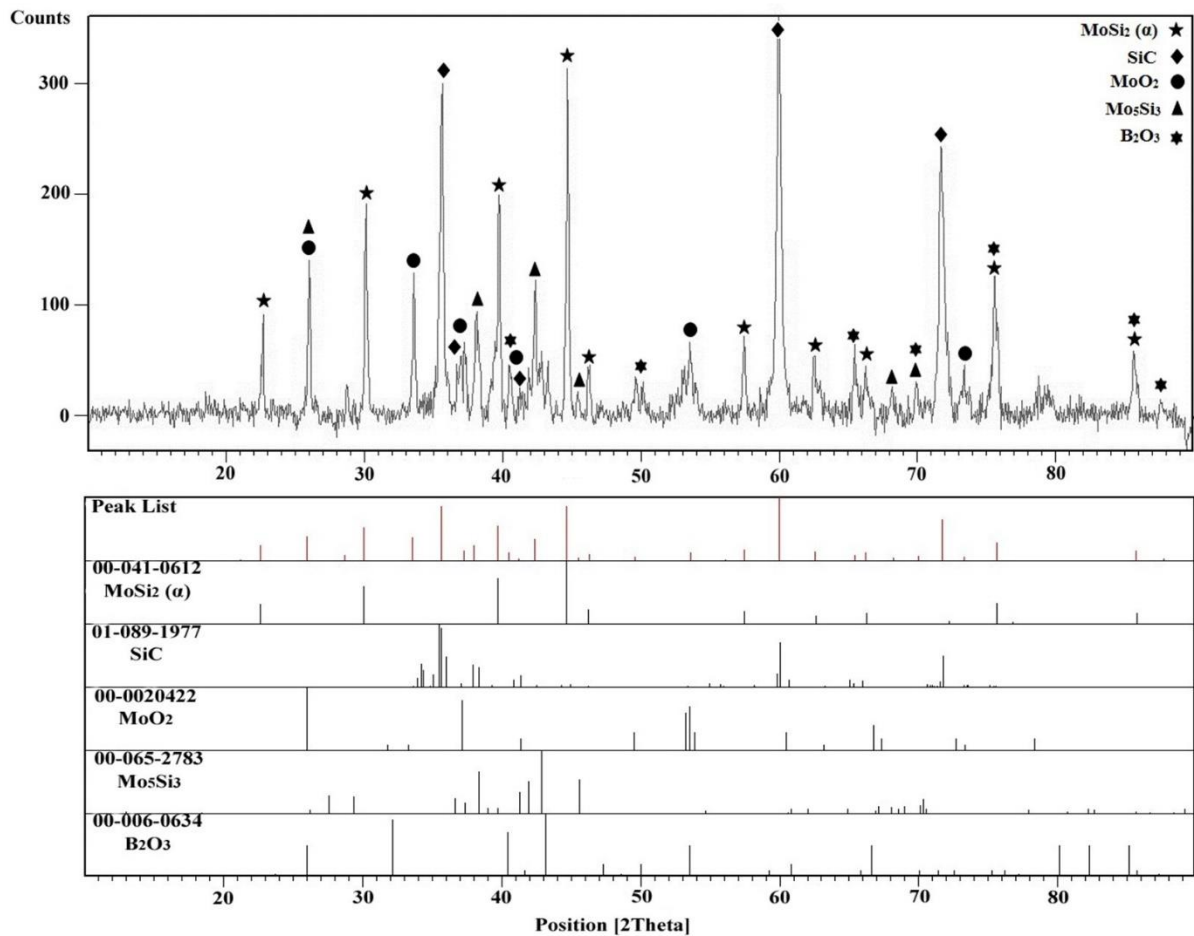
اگرچه واکنش‌های (۵) و (۶) به دلیل حضور اکسید مولیبدن، واکنش‌های همراه با کاهش وزن محسوب می‌شوند [۴۱]، اما تشکیل فازهای SiO<sub>2</sub> و B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> افزایش وزن نمونه را در پی دارند. علت اصلی افزایش وزن اولیه در شکل ۷، تشکیل یک لایه محافظ (B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) است، به گونه‌ای که B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ریزترک‌ها و حفره‌ها را از دمای ۸۲۳ K تا ۱۲۷۳ K با یک جریان سیال می‌پوشاند و منجر به مقاومت در برابر اکسایش می‌شود [۲]. با این حال، با افزایش دما به دلیل تبخیر سریع MoO<sub>3</sub> تغییرات وزن، کاهش می‌شود و شیب منفی در نمودار اکسایش حاصل خواهد شد.



شکل ۹: تصاویر میکروسکوپی الکترونی روبشی از پوشش SiC پس از ۱۰ ساعت اکسایش پیوسته در ۱۲۷۳ K؛ (الف) سطح، (ب) سطح مقطع، و (ج) آنالیز EDS



شکل ۱۰: تصاویر میکروسکوپی الکترونی روبشی از پوشش Mo-Si-B پس از ۱۰ ساعت اکسیداسیون پیوسته در ۱۲۷۳ K؛ (الف) بزرگنمایی ۱۰۰۰ برابر، (ب) بزرگنمایی ۴۰۰۰ برابر و (ج) آنالیز EDS از منطقه مشخص شده.



شکل ۱۱: الگوی XRD پوشش APS پس از ۱۰ ساعت اکسایش پیوسته در ۱۲۷۳ K.

شده، همانند  $\text{SiO}_2$ ، با جریان به درون لایه اکسایش، حفره‌های ایجاد شده ناشی از تبخیر  $\text{MoO}_3$  را پر می‌کند. از این رو، لایه بوروسیلیکات تشکیل شده توسط  $\text{SiO}_2$  و  $\text{B}_2\text{O}_3$ ، مقاومت بالاتری را فراهم می‌سازد.

با افزایش زمان اکسایش در دمای ثابت  $1273 \text{ K}$ ، کاهش وزن با تبخیر  $\text{MoO}_3$ ، بر افزایش وزن حاصل از  $\text{SiO}_2$  و  $\text{B}_2\text{O}_3$  غلبه می‌کند و در نهایت منجر به کاهش وزن خواهد شد. عدم تطابق انبساط حرارتی بین پوشش و زیرلایه، همراه با تنش‌های خارجی و حرارتی ناشی از رسوب و ایجاد شده حین اکسایش، ترک‌های بیشتری در پوشش باعث می‌شوند. این ترک‌ها به بخار و حباب‌هایی مانند  $\text{MoO}_3$  اجازه می‌دهند تا از پوشش خارج شوند، مگر آنکه توسط فاز شیشه‌ای مهر و موم یا آب‌بند گردند.

#### ۴- نتایج

رفتار اکسایش پیوسته پوشش Mo-Si-B توسط پاشش پلاسما

با توجه به شکل ۱۱، هیچ پیکی از فاز  $\text{SiO}_2$  مشاهده نمی‌شود. بنابراین، می‌توان این انتظار را داشت که سیلیس به دلیل انجماد سریع به صورت آمورف و شیشه‌ای وجود داشته باشد؛ این نکته در تحقیقات قبلی نیز اشاره شده است [۲، ۳۱]. کریستالی شدن و تشکیل فاز شدیداً به سرعت انجماد وابسته است و با کاهش نرخ انجماد افزایش می‌یابد. علاوه بر این، گزارش شده است که پوشش‌های پاشش پلاسما در طی فرایند پاشش، سیلیسیم را از دست می‌دهند و این موضوع با زمان‌های زیادتر و دماهای بالاتر فرایند رسوب، تشدید می‌شود [۳۱].

حضور  $\text{B}_2\text{O}_3$  به همراه  $\text{SiO}_2$  به عنوان یک سد مؤثر در برابر اکسایش و عامل اصلی افزایش وزن، یک لایه بوروسیلیکات شیشه‌ای را فراهم می‌کند که در نتایج سایر محققان نیز تأیید شده است [۲۱، ۲۵، ۲۷، ۴۰]. با توجه به واکنش (۷)،  $\text{B}_2\text{O}_3$  تشکیل شده در دمای بالا به سرعت ذوب می‌شود.

powders-derived coatings, *Corros. Sci.* (2021) 109587. <http://doi.org/10.1016/j.corsci.2021.109587>.

[6] L. Li, H. Li, Y. Li, X. Yin, Q. Shen, Q. Fu, A SiC-ZrB<sub>2</sub>-ZrC coating toughened by electrophoretically-deposited SiC nanowires to protect C/C composites against thermal shock and oxidation, *Appl. Surf. Sci.* 349 (2015) 465-471. <http://doi.org/10.1016/j.apsusc.2015.05.028>.

[7] Q.-G. Fu, H.-J. Li, X.-H. Shi, K.-Z. Li, G.-D. Sun, Silicon carbide coating to protect carbon/carbon composites against oxidation, *Scr. Mater.* 52 (2005) 923-927. <http://doi.org/10.1016/j.scriptamat.2004.12.029>.

[8] P. Wang, S. Zhou, P. Hu, G. Chen, X. Zhang, W. Han, Ablation resistance of ZrB<sub>2</sub>SiC/SiC coating prepared by pack cementation for graphite, *J. Alloys Compd.* 682 (2016) 203-207. <http://doi.org/10.1016/j.jallcom.2016.04.010>.

[9] C. Huo, L. Guo, L. Feng, C. Wang, Z. Li, Y. Zhang, G. Kou, Improving the oxidation resistance under thermal shock condition of SiC-coated C/C composites with refined SiC grain size using ferrocene, *Surf. Coat. Technol.* 316 (2017) 39-47. <http://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2017.03.019>.

[10] E. Goldstein, E. Carter, S. Kluz, The improvement of the oxidation resistance of graphite by composite technique, *Carbon* 4 (1966) 273-279. [http://doi.org/10.1016/0008-6223\(66\)90089-3](http://doi.org/10.1016/0008-6223(66)90089-3).

[11] Y.-L. Zhang, H.-J. Li, X.-F. Qiang, K.-Z. Li, S.-Y. Zhang, C/SiC/MoSi<sub>2</sub>-Si multilayer coatings for carbon/carbon composites for protection against oxidation, *Corros. Sci.* 53 (2011) 3840-3844. <http://doi.org/10.1016/j.corsci.2011.07.036>.

[12] X. Yang, C. Zhao-hui, C. Feng, High-temperature protective coatings for C/SiC composites, *J. Asian Ceram. Soc.* 2 (2014) 305-309. <http://doi.org/10.1016/j.jascer.2014.07.004>.

[13] A. Yurishcheva, A. Astapov, I. Lifanov, L. Rabinskiy, in: *Key Engineering Materials*, Trans Tech Publ, 2018, pp. 103-117. <http://doi.org/10.4028/www.scientific.net/kem.771.103>

[14] X. Yang, Q. Huang, Z. Su, L. Chai, X. Wang, L. Zhou, A double layer nanostructure SiC coating for anti-oxidation protection of carbon/carbon composites prepared by chemical vapor reaction and chemical vapor deposition, *Ceram. Int.* 39 (2013) 5053-5062. <http://doi.org/10.1016/j.ceramint.2012.11.104>.

[15] N.S. Jacobson, D.J. Roth, R.W. Rauser, J.D. Cawley, D.M. Curry, Oxidation through coating cracks of SiC-protected carbon/carbon, *Surf. Coat. Technol.* 203 (2008) 372-383. <http://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2008.09.013>.

[16] I. Spitsberg, J. Steibel, Thermal and environmental barrier coatings for SiC/SiC CMCs in aircraft engine applications, *Int. J. Appl. Ceram. Technol.* 1 (2004) 291-301. <http://doi.org/10.1111/j.1744-7402.2004.tb00181.x>.

[17] N.S. Jacobson, D.L. Myers, Active oxidation of SiC, *Oxid. Met.* 75 (2011) 1-25. <http://doi.org/10.1007/s11085-010-9216-4>.

در اتمسفر همراه با لایه میانی SiC به روش سمانتاسیون فشرده، روی زیرلایه گرافیت، مورد بررسی قرار گرفت. نتایج را می توان به شرح زیر خلاصه کرد.

۱. پوشش های SiC و Mo-Si-B ساختارهای مورد انتظار را تشکیل دادند: فاز SiC برای پوشش اول و فازهای مختلف بین Mo و Si و Mo و B و Mo خالص برای پوشش رویی مشاهده شد.

۲. چسبندگی پوشش چند لایه SiC/Mo-Si-B با آزمون کشش انجام شد و چسبندگی و پیوستگی مناسب پوشش با استحکام بیش از ۱۰ مگاپاسکال مشاهده شد.

۳. لایه SiC پس از ۱۰ ساعت اکسایش پیوسته در ۱۲۷۳ K، با تشکیل یک لایه محافظ SiO<sub>2</sub>، کاهش وزن ۶ گرم در سانتی متر مربع را نشان داد.

۴. اکسایش SiC/Mo-Si-B پس از ۱۰ ساعت اکسایش پیوسته در ۱۲۷۳ K، با تشکیل محصولات اکسیدی و لایه شیشه ای محافظ SiO<sub>2</sub> و B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>، در ابتدا افزایش وزن حدود ۰٫۰۲ گرم در سانتی متر مربع را نشان داد؛ پس از آن کاهش وزن کلی ۱٫۵ گرم در سانتی متر مربع دیده شد.

## قدردانی

نویسندگان این مقاله از حمایت های مادی و معنوی دانشگاه صنعتی مالک اشتر برای انجام این تحقیق سپاسگزاری می کنند.

## مراجع

[1] A. Nechepurenko, S. Samuni, Oxidation protection of graphite by BN coatings, *J. Solid State Chem.* 154 (2000) 162-164. <http://doi.org/10.1006/jssc.2000.8829>.

[2] P. Ritt, R. Sakidja, J.H. Perepezko, Mo-Si-B based coating for oxidation protection of SiC-C composites, *Surf. Coat. Technol.* 206 (2012) 4166-4172. <http://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2012.04.016>.

[3] X. Jin, X. Fan, C. Lu, T. Wang, Advances in oxidation and ablation resistance of high and ultra-high temperature ceramics modified or coated carbon/carbon composites, *J. Eur. Ceram.* 38 (2018) 1-28. <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2017.08.013>.

[4] C.V. Kumar, B. Kandasubramanian, Advances in ablative composites of carbon based materials: A review, *Ind. Eng. Chem. Res.* 58 (2019) 22663-22701. <http://doi.org/10.1021/acs.iecr.9b04625>.

[5] A. Astapov, B. Zhestkov, Y.S. Pogozhev, M. Zinovyeva, A.Y. Potanin, E. Levashov, The oxidation resistance of the heterophase ZrSi<sub>2</sub>-MoSi<sub>2</sub>-ZrB<sub>2</sub>

- coated carbon/carbon composites, *Surf. Rev. Lett.* 16 (2009) 223-229. <http://doi.org/10.1142/s0218625x09012524>.
- [30] M. Taylor, J. Perepezko, Hot corrosion of Mo-Si-B coatings, *Oxid. Met.* 87 (2017) 705-715. <http://doi.org/10.1007/s11085-017-9773-x>.
- [31] T.C. Totemeier, R.N. Wright, W.D. Swank, FeAl and Mo-Si-B intermetallic coatings prepared by thermal spraying, *Intermetallics* 12 (2004) 1335-1344. <http://doi.org/10.1016/j.intermet.2004.04.034>.
- [32] J. Pang, W. Wang, C. Zhou, Microstructure evolution and oxidation behavior of B modified MoSi<sub>2</sub> coating on Nb-Si based alloys, *Corros. Sci.* 105 (2016) 1-7. <http://doi.org/10.1016/j.corsci.2015.12.003>.
- [33] T. Ishigaki, X. Fan, Mo<sub>5</sub>Si<sub>3</sub>-B and MoSi<sub>2</sub> deposits fabricated by radio frequency induction plasma spraying, *J. Therm. Spray Technol.* 10 (2001) 611-617. <http://doi.org/10.1361/105996301770349132>.
- [۳۴] م. عرفانمنش، س. ر. بخشی، سنتز و ارزیابی خواص پوشش‌های پاشش حرارتی MoSi<sub>2</sub>، پایان‌نامه دوره کارشناسی ارشد مهندسی مواد، دانشگاه صنعتی مالک اشتر، ۱۳۹۰.
- [35] C. ASTM, 633-01: Standard test method for adhesion or cohesion strength of thermal spray coatings, ASTM International, West Conshohocken, PA (2008). <http://doi.org/10.1520/c0633-01r08>.
- [36] A. International, Standard test method for compositional analysis by thermogravimetry, ASTM International, 2003. <http://doi.org/10.1520/stp26395s>.
- [37] X. Fei, Y. Niu, H. Ji, L. Huang, X. Zheng, A comparative study of MoSi<sub>2</sub> coatings manufactured by atmospheric and vacuum plasma spray processes, *Ceram. Int.* 37 (2011) 813-817. <http://doi.org/10.1016/j.ceramint.2010.10.018>.
- [38] M. Erfanmanesh, S.R. Bakhshi, M. Khajelakzay, M. Salekbafghi, The effect of argon shielding gas at plasma spray process on the structure and properties of MoSi<sub>2</sub> coating, *Ceram. Int.* 40 (2014) 4529-4533. <http://doi.org/10.1016/j.ceramint.2013.08.128>.
- [39] M. Meyer, A. Thom, M. Akinc, Oxide scale formation and isothermal oxidation behavior of Mo-Si-B intermetallics at 600-1000 C, *Intermetallics* 7 (1999) 153-162. [http://doi.org/10.1016/s0966-9795\(98\)00058-2](http://doi.org/10.1016/s0966-9795(98)00058-2).
- [40] T. Feng, H.-J. Li, Q.-G. Fu, X.-T. Shen, H. Wu, Microstructure and oxidation of multi-layer MoSi<sub>2</sub>-CrSi<sub>2</sub>-Si coatings for SiC coated carbon/carbon composites, *Corros. Sci.* 52 (2010) 3011-3017. <http://doi.org/10.1016/j.corsci.2010.05.020>.
- [41] T. Feng, H.-J. Li, S.-L. Wang, M.-H. Hu, L. Liu, Boron modified multi-layer MoSi<sub>2</sub>-CrSi<sub>2</sub>-SiC-Si oxidation protective coating for carbon/carbon composites, *Ceram. Int.* 40 (2014) 15167-15173. <http://doi.org/10.1016/j.ceramint.2014.06.131>
- [18] H. Wu, H.-J. Li, C. Ma, Q.-G. Fu, Y.-J. Wang, J.-f. Wei, J. Tao, MoSi<sub>2</sub>-based oxidation protective coatings for SiC-coated carbon/carbon composites prepared by supersonic plasma spraying, *J. Eur. Ceram.* 30 (2010) 3267-3270. <http://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2010.06.007>.
- [19] H. Jian-Feng, Z. Xie-Rong, L. He-Jun, X. Xin-Bo, H. Min, Mullite-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiC oxidation protective coating for carbon/carbon composites, *Carbon* 41 (2003) 2825-2829. [http://doi.org/10.1016/s0008-6223\(03\)00397-x](http://doi.org/10.1016/s0008-6223(03)00397-x).
- [20] T. Feng, H.-J. Li, X.-H. Shi, X. Yang, Y.-X. Li, X.-Y. Yao, Sealing role of B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> in MoSi<sub>2</sub>-CrSi<sub>2</sub>-Si/B-modified SiC coating for C/C composites, *Corros. Sci.* 60 (2012) 4-9. <http://doi.org/10.1016/j.corsci.2012.04.018>.
- [21] Q.-G. Fu, H.-J. Li, Y.-J. Wang, K.-Z. Li, X.-H. Shi, B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> modified SiC-MoSi<sub>2</sub> oxidation resistant coating for carbon/carbon composites by a two-step pack cementation, *Corros. Sci.* 51 (2009) 2450-2454. <http://doi.org/10.1016/j.corsci.2009.06.033>.
- [22] Y.-L. Zhang, H.-J. Li, Z.-X. Hu, J.-C. Ren, K.-Z. Li, Microstructure and oxidation resistance of Si-Mo-B coating for C/SiC coated carbon/carbon composites, *Corros. Sci.* 72 (2013) 150-155. <http://doi.org/10.1016/j.corsci.2013.03.015>.
- [23] H. Jian-Feng, Z. Xie-Rong, L. He-Jun, X. Xin-Bo, F. Ye-Wei, M. Huang, SiC/yttrium silicate multi-layer coating for oxidation protection of carbon/carbon composites, *J. Mater. Sci.* 39 (2004) 7383-7385. <http://doi.org/10.1023/b:jmsc.0000048756.96547.bf>.
- [24] J.-F. Huang, W. Hao, L.-Y. Cao, L.-X. Yin, H. Ouyang, C.-Y. Yao, J.-P. Wu, J. Fei, An AlPO<sub>4</sub>/SiC coating prepared by pulse arc discharge deposition for oxidation protection of carbon/carbon composites, *Corros. Sci.* 79 (2014) 192-197. <http://doi.org/10.1016/j.corsci.2013.11.006>.
- [25] J. Yang, H. Liu, W. Gao, L. Su, K. Jiang, Effect of different fillers on the microstructural evolution and high temperature oxidation resistance of Mo-Si-B coatings prepared by pack cementation, *Int. J. Refract. Hard Met.* 100 (2021) 105625. <http://doi.org/10.1016/j.ijrmhm.2021.105625>.
- [26] N. Nomura, T. Suzuki, K. Yoshimi, S. Hanada, Microstructure and oxidation resistance of a plasma sprayed Mo-Si-B multiphase alloy coating, *Intermetallics* 11 (2003) 735-742. [http://doi.org/10.1016/s0966-9795\(03\)00069-4](http://doi.org/10.1016/s0966-9795(03)00069-4).
- [27] P.V. Kiryukhantsev-Korneev, A. Sytchenko, A.Y. Potanin, S. Vorotilo, E. Levashov, Mechanical properties and oxidation resistance of Mo-Si-B and Mo-Hf-Si-B coatings obtained by magnetron sputtering in DC and pulsed DC modes, *Surf. Coat. Technol.* 403 (2020) 126373. <http://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2020.126373>.
- [28] S. Cho, I. Jo, Y.-H. Lee, Y.W. Yoo, E. Byon, S.-K. Lee, S.-B. Lee, Highly improved oxidation resistance of TiC-SKD11 composite by SiC/TiB<sub>2</sub> based hybrid coating, *Appl. Surf. Sci.* 448 (2018) 407-415. <http://doi.org/10.1016/j.apsusc.2018.04.156>.
- [29] T. Feng, H.-J. Li, Q.-G. Fu, X.-H. Shi, K.-Z. Li, Mo-Si-B alloys oxidation protective coating for SiC-