Fabrication and Characterization of Environmental Barrier Coatings by Spray Drying and Atmospheric Plasma Spraying for Protection of Silicon Carbide Ceramics

Fan Jie Feng, Heung Soo Moon*, Chan Won Kwak*, Ji Yeon Park,** and Kee Sung Lee[†]

School of Mechanical Systems Engineering, Kookmin University, Seoul 136-702, Korea,

*Sewon Hardfacing Co. Ltd.

**Nuclear Materials Development Division, Korea Atomic Energy Research Institute, Daejeon 305-353, Korea

(Received May 7, 2014; Revised July 14, 2014; Accepted July 21, 2014)

분무건조 및 대기 플라즈마 용사에 의한 탄화규소 세라믹스용 내환경 코팅재의 제조 및 평가

풍범걸 · 문흥수* · 객찬원* · 박지연** · 이기성[†]

국민대학교 기계시스템공학부 기계설계전공

*세원하드페이징 주식회사

**원자력소재개발부 한국원자력연구원

(2014년 5월 7일 접수 ; 2014년 7월 14일 수정 ; 2014년 7월 21일 채택)

ABSTRACT

Environmental barrier coatings (EBCs) are used to protect SiC-based ceramics or composites from oxidation and corrosion due to reaction with oxygen and water vapour at high temperatures above 1000°C. Mullite ceramics have been studied for environmental barrier coatings for Si-based ceramics. More recently, rare earth silicate ceramics have been identified as more water vapour-resistant materials than mullite for environmental barrier coatings. In this study, we fabricate mullite and yttrium silicate ceramics by an atmospheric plasma spray coating method using spherical granules fabricated by spray drying. As a result, EBCs with thicknesses in the range of 200-300 µm are successfully fabricated without any macroscopic cracks or interfacial delamination. Phase and microstructure analysis are conducted, and the basic mechanical properties, such as hardness and indentation load-displacement curves are evaluated.

Key words : Environmental barrier coatings, Silicon carbide, Atmospheric plasma spray, Fiber composites

1. 서 론

Si계 세라믹스 중 탄화규소(SiC), 질화규소(Si₃N₄) 세라믹스는 내열성, 내열충격성, 저열팽창성, 높은 열전도도 등의 고온에서 적용 가능한 열적특성^{1,2)}과 내마모성, 고강도, 고경도 등의 우수한 기계적 특성³⁾과 우수한 내방사성을 갖고 있어서 미래의 가스터빈 열차폐 재료, 원자력 관련 부품소재, 항공우주용 부품소재로의 적용이 이루어지고 있다.^{1,2,4,5)} 그러나 Si계 세라믹스는 고온에서 산화가 일어나고, 특히 수증기(water vapour)와 Si의 반응이 일어나 침식에 의한 부식(steam corrosion)으로 질량감소가 일어나는 단점이 있다.⁶⁻⁸⁾ 이를 해결하기 위해 Si계 세라믹

스와 수증기가 만나 반응이 일어나는 경로를 차단하기 위해 Si계 세라믹스 위에 고온부식에 대한 내식성이 우수한 내환경코팅(Environmental barrier coatings)재와 그 코팅에 대한 연구가 이루어져 왔다.^{1,2,4)}

탄화규소, 질화규소 등 Si계 세라믹스를 고온과 부식 환경에서 보호하기 위한 재료로는 몰라이트(mullite, 3Al₂O₃·2SiO₂)와 실리케이트 유리(BSAS, Barium strontium aluminosilicate) 등^{1,2,9-11)}이 연구되어져 왔으나 보다 최근에는 내열성 향상연구와 함께 보다 우수한 고온부식에 대한 저항성이 요구되어져서 희토류계 원소가 포함된 실리케이트 소재(rare earth silicate)에 대한 연구가 이루어지고 있다.¹²⁻¹⁴⁾

Si계 세라믹스에 내환경재를 코팅하는 방법으로 화학증착법(CVD), 졸-겔 코팅방법(sol-gel) 등도 연구되어졌으나 형상이 복잡하고 치수가 큰 기물에 코팅하는 일반적인 방법으로 대기 플라즈마 용사(atmospheric plasma spray)법이

[†]Corresponding author : Kee Sung Lee

E-mail : keeslee@kookmin.ac.kr

Tel : +82-2-910-4834 Fax : +82-2-910-4839

동시에 연구되어져 왔다.^{6,10,11)} 특히 가스터빈 부품 등에 코팅재를 적용하기 위해서는 대기 플라즈마 용사법이 범용적으로 활용되고 있어서, 작동온도가 1100~1300°C인 현재보다 에너지효율과 냉각효율을 높이기 위해 세라믹스 복합재가 사용될 경우는 내환경 코팅재가 적용되어져야 하며, 이 방법 역시 대기 플라즈마 용사법이 활용될 가능성이 높다.

대기 플라즈마 용사법으로 코팅하기 위해서는 출발물질의 크기와 형상, 입도 분포 등이 최종 코팅층의 미세구조를 결정하는 주요한 요인이 되므로 분말의 처리기술 또한 중요한 기술 중 하나이다. 플라즈마 용사법의 출발원료의 제조방법으로는 분무건조법이 범용적으로 활용되고 있다. 이러한 분말들은 플라즈마 용사 시 흐름성이 좋아야 하므로 구형의 형상이 바람직하며, 치밀한 코팅층이 요구되는 경우는 분말 역시 치밀하게 제조되는 것이 유리하다. 내열합금등으로 제조되는 가스터빈 고온부품에 열차폐 코팅을 적용하기 위해서는 일반적으로 세라믹스재의 탑 코트(ceramic topcoat)층과 기재인 내열합금 층간의 응력완화를 위해 중간재로서 본드 코트(bondcoat)층을 도입하는 것과 마찬가지로, 내환경 코팅재 역시 기재인 탄화규소소재와의 응력완화를 위해 Si, SiO₂ 등의 본드 코팅층을 도입하는 것이 유리한 것으로 연구되어지고 있다.¹⁾

본 연구에서는 탄화규소계 복합재료의 고온산화와 고온부식을 억제하기 위한 내환경 코팅재로서 물라이트(Mullite)와 희토류계 실리케이트 중 이트륨 실리케이트(Y₂SiO₅)에 대해 분무건조법으로 구형형상을 갖는 분말을 제조하였고, 이러한 분말들을 이용하여 대기 플라즈마 용사법으로 탄화규소 세라믹스에 내환경 코팅재를 적용하는 연구를 수행하였다. 본드 코팅재로서는 Si를 도입하였다. 그 결과 기존의 대기플라즈마 용사법으로 제조된 코팅체와는 다르게^{2,7)} 결정질이 포함된, 200 - 300 μm의 두께를 갖는 내환경 코팅재를 큰 결함이나 계면박리 없이 제조할 수 있었으며, 경도와 압흔하중-변위 곡선거동에 대한 연구를 수행하였다.

2. 실험 방법

분무 건조 및 대기 플라즈마 용사법을 이용하여 물라이트 및 이트륨 실리케이트 내환경 코팅재용 분말을 분무건조법에 의해 제조한 공정 흐름도를 Fig. 1에 나타내었다.

실리콘 분말(Silicon, Si)은 입도의 평균크기가 40 μm (Saint Gobain, Belgium), 쉴리카(Silica, SiO₂)는 입도의 평균크기가 0.6 μm(Xuancheng Jingrui New Materia Co. Ltd, VK-SP50), 물라이트(Mullite, 3Al₂O₃·2SiO₂)는 43 μm (Yichang Kebo Refractories Co. Ltd, KB-M-003)의 것을 사용하였고, 이트륨 실리케이트(Yttrium Silicate, Y₂SiO₅)

Fig. 1. Procedure for the preparation of powder for EBC coatings.

의 출발원료로는 이트륨 산화물(Yttrium Oxide, Y₂O₃, Hebei Pejin International Co. Ltd, Yttrium Oxide 5N, 입도 평균크기 3 μm)과 SiO₂(Xuancheng Jingrui New Materia Co. Ltd, VK-SP50, 입도평균크기 0.6 μm)를 사용하였다.

Y₂O₃ 분말과 SiO₂ 분말로부터 Y₂SiO₅ 분말을 합성하기 위하여, 각각의 분말을 알콜 및 지르코니아 볼과 함께 24 시간동안 볼 밀링(ball milling)해 주었다. 볼 밀링 후 대기 중에서 24 시간 이상 80°C가 유지된 오븐(oven) 내에서 건조한 후 체가름 해 주었다. 체가름한 분말을 알루미늄 도가니에 넣고 1,400°C에서 4 시간동안 열처리를 하였다. 열처리 한 분말을 XRD 회절장비(Rigaku, Japan)를 이용하여 Y₂SiO₅ 분말이 얻어졌는지를 확인하였다. 실리콘 분말, 쉴리카 분말, 물라이트 분말 및 합성한 Y₂SiO₅ 분말 각각에 대하여 PVA의 유기 결합제(binder, DC Chemical Co. Ltd, PVA P-17), 5468-cf의 분산제(dispersant, 한국산노프(주), CERASRERSE 5468CF) 등을 첨가한 후 증류수, 지르코니아 볼과 함께 24 시간 동안 볼 밀링(ball milling)하였다. 이 때 결합제는 세라믹스 분말에 대해 무게비로 5%내외, 분산제는 4%내외를 첨가하

였다.

밀링혼합 후 슬러리를 분무건조기(spray dryer, Sewon Hardfacing, Korea)에 10 L/h의 일정 속도로 분무시켜 구형의 응집체를 얻었다. 이 때 입구온도는 170~210°C, 출구온도는 70~110°C, 원판 디스크(atomizer)의 회전속도를 6,000~10,000 rpm의 범위 내에서 제어하였다.¹⁵⁾ 제조한 구형의 응집체 내의 유기물을 제거하기 위해 600~800°C의 온도 범위에서 탈지를 수행한 후, 분말에 강도를 부여하기 위해 1250°C에서 1 시간동안 열처리 하여 주었다. 열처리 한 분말은 다양한 크기의 체(sieve)를 적층한 후, 10~63 μm 범위 내의 과립들을 분류(classification)하여 코팅을 위한 분말로 사용하였다. 분무건조된 후 열처리한 접착제 코트 및 탑 코트 분말, 즉 대기 플라즈마 용사를 위한 최종 분말들의 크기와 입도분포, 형상을 주사전자현미경(SEM)으로 관찰 하였고, SiC 연마제로 연마하여 분말의 단면을 광학현미경으로 관찰하였다.

내환경재 코팅을 하기 위한 모재(substrate)로 탄화규소 반응소결 소결체((주)대양산업, reaction-bonded SiC, SiC320)를 사용하였으며 직경 1인치, 두께 약 5 mm로 가공하여 사용하였다. 분무건조한 분말들을 코팅하기 전에 접합 강도를 향상시키기 위하여 알루미나 입자로 샌드블라스트(sandblast) 처리를 해주었다. 대기 플라즈마 용사 장비(Atmosphere Plasma Spray, Triplex-pro 200, Sultz Metco)를 이용하여 각 분말을 플라즈마에 용융시킨 후 고온, 고압으로 용사하여 모재에 코팅하였다. 각 내환경재를 코팅하기 전에 먼저 분무건조법으로 제조한 본드 코트(bondcoat, Si) 분말을 탄화규소 기재 위에 코팅하였다. 본드 코팅(bondcoat)의 코팅조건으로서는 Ar/He = 30 : 20의 부피비가 되도록 제어하였고, 분당 총 3.5 리터의 유동속도로 분말을 공급하였다. 또한 분무 건(spray gun)과 모재와의 거리를 180 mm로 고정시킨 후, 전력 450A/90V로 분당 90 g의 분말을 공급하여 모재에 코팅하였다.¹⁶⁾ 한편 내환경재의 코팅(topcoat) 조건으로서는 Ar/He = 30 : 20의 부피비가 되도록 제어하였고, 분당 3 리터의 유동속도로 분말을 공급하였다. 전력은 540 A/99V로 하였으며 이 때 Spray gun과 기관간의 거리인 분무거리(spray distance), 공급속도(feeding rate), 건의 속도(gun speed)를 변수로 변화시켜가며 코팅하여 최적의 조건으로 제조하였다. 그 조건은 건과 모재간의 거리를 150 mm로 고정시킨 후, 분당 100 g의 분말을 공급하여 300 mm/sec의 속도의 조건으로 코팅하였다.

대기 플라즈마 용사법으로 제조한 코팅층의 결정상을 분석하기 위하여 X선 회절 분석기(Rigaku Co., Rint 2000 Ultima+, Japan)를 이용하였으며, $2\theta = 10 \sim 80^\circ$ 범위에서 회절 peak를 고찰하였다. 코팅층의 미세구조는 주사전자현미경(SEM, JEM-7610F, JEOL LTD, JAPAN)을 이용하여 배율 500 및 2000배로 확대 관찰하였다. 코팅층의 두께를

관찰하기 위해 코팅층의 표면에 홈을 내어 절단한 후 측면을 광학현미경(optical microscope, NIKON, Japan)으로 관찰하였으며, 표면을 6 μm 의 다이아몬드 페이스트(diamond paste)를 이용하여 살짝 연마한 후 표면의 기공율과 결함들을 광학현미경으로 관찰하였다. 또 거시적인 결함과 계면박리 여부를 관찰하였다. 코팅제의 기계적 성능을 평가하기 위해 압흔응력에 의한 기계적 거동을 평가하였다. 이를 위해서 서로 다른 두께를 갖고 있는 시편을 다이아몬드 페이스트(diamond paste)를 이용하여 코팅층 두께가 각각 180 μm 로 동일하게 되도록 제어하였다. 다이아몬드 압자로 $P=1 \text{ kgf}$ 의 하중으로 코팅층 표면을 압흔한 후 결함의 직경을 측정 한 후 경도를 측정하였다. 한편 반경 $r=3.18 \text{ mm}$ 을 갖는 구형의 초경 볼(tungsten carbide ball, WC)을 지그에 부착한 후 만능 하중 시험기(Instron 5567, U.S.A.)에 장착한 후, 0.1 mm/min의 일정한 속도로 코팅제의 표면에 $P=100 \text{ N}$ 까지 압흔응력을 가하여 하중-변위 곡선을 얻어내어 비교하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 2에 탄화규소 기재와 내환경 코팅제의 응력을 완화하기 위한 본드 코팅 분말재로서 SiO_2 와 Si를 분무건조법으로 제조한 결과를 나타내었다. Fig. 2(a), (b)는 SiO_2 분말들을, Fig. 2(c), (d)는 Si 분말들을 각각 나타내며, (b), (d)는 (a), (c)의 분말들을 500배로 확대관찰한 주사전자현미경 사진들이다. 분무건조법으로 최적의 조건으로 제조한 분말들의 형상을 관찰한 결과, 사진에서와 같이 Si 및 SiO_2 의 분말 종류에 관계없이 모두 구형의 형상의 분말들을 제조할 수 있었다. 일부 표면에 hollow한 부분들이

Fig. 2. SEM micrographs of spray dried granules for bondcoat of EBC: (a), (b) SiO_2 and (c), (d) Si.

발견되었으나, 플라즈마 용융시 용융될 경우는 큰 문제가 없을 것으로 생각되었으며 분말의 중앙부위는 중공상(hollow)이 포함되지 않은 분말들이 제조되었다. 이러한 구형의 분말들은 대기 플라즈마 용사 시 좋은 흐름성을 유지할 수 있을 것으로 생각되었다.

탄화규소 기재 위에 적용할 내환경 코팅재의 분말들을 분무건조법으로 제조한 후 주사전자현미경(SEM)으로 관찰한 사진들을 Fig. 3에 나타내었다. 몰라이트(mullite) 코팅재분말을 Fig. 3(a), (b)에, Y_2SiO_5 코팅재용 분말(yttrium silicate)들을 Fig. 3의(c), (d)에 각각 나타내었다. 탑 코팅용 코팅재 분말을 최적의 조건으로 제조할 경우 본드 코팅 분말보다 중공상 부분이 거의 없는, 보다 구형의 형상을 갖는 분말들을 성공적으로 제조할 수 있었다. 또 분말을 연마(polishing)한 후 단면 미세구조를 관찰한 결과를 그림 우측에 삽입하여 나타내었는데, 비교적 치밀한 입자들로 제조되었음을 알 수 있다. 내환경 코팅재에 적용될 경우에는 특히 탑 코팅 분말의 경우 일반적으로 10 - 20%의 기공율을 갖도록 제조해야 하는 열차폐 코팅재와는 다르게, 가능한 한 우수한 열차폐성이 유지되는 범위 내에서 치밀하게 코팅되는 것이 좋을 것이라고 판단되므로 이러한 치밀한 구형의 분말들은 치밀한 코팅층의 제조가 가능하면서도 구형에 의해 우수한 유동속도로 코팅될 수 있을 것으로 기대되었다.

대기플라즈마 용사에 의해 코팅된 mullite, Y_2SiO_5 의 표면외관사진과 단면코팅두께 사진을 각각 Fig. 4의 (a), (c)와 (b), (d)에 나타내었다. Fig. 4의 (a), (c)와 같이 표면에 전반적인 거시 결함없이 코팅된 것을 알 수 있으며, (b), (d)와 같이 계면박리 없이 코팅된 것을 알 수 있다. 본드

코팅된 Si의 코팅층 두께는 대략 50 ~ 150 μm 의 범위 내에서 코팅되었으며, top 코팅된 mullite의 코팅층 두께는 300 μm , Y_2SiO_5 의 코팅층 두께는 200 μm 이었다.

대기플라즈마 용사된 Mullite, Y_2SiO_5 코인시험편의 중앙 부위 표면의 단면을 확대 관찰한 사진을 Fig. 5에 나타내었다. 이 사진은 또한 단면 내에서도 중앙 부위를 확대 관찰한 사진들이다. 사진에서와 같이 비교적 큰 입자

Fig. 4. Photographs of topcoat surface and section view showing coating thickness of (a), (b) mullite and (c), (d) yttrium silicates.

Fig. 3. SEM micrographs of spray dried granules for topcoat of EBC: (a), (b) mullite and (c), (d) yttrium silicate. Micrographs shown in insets show polished spherical powders.

Fig. 5. SEM micrographs of section views of (a) mullite, $\times 500$ of magnification, (b) mullite, $\times 2,000$ of magnification, (c) yttrium silicate, $\times 500$ of magnification and (d) yttrium silicate, $\times 2,000$ of magnification. The coatings are conducted using atmospheric plasma spray.

들이 관찰되지 않는 파단면을 나타내었다. Mullite의 경우 SEM 사진을 촬영하기 위하여 코팅층 부위를 파단시켰을 때 주로 입내파괴가 일어난 것으로 미루어 비교적 치밀질의 코팅층이 형성된 것으로 판단되었다. Y_2SiO_5 시험편의 경우 미세구조의 불균일성이 관찰되기는 하였지만 이러한 불균일성은 대기플라즈마 용사기술에서는 일반적으로 관찰되는 현상이다.

Mullite, Y_2SiO_5 의 내환경 코팅재에 대하여 XRD 회절 분석기를 이용하여 결정상을 분석한 후, 그 회절 피크를 Fig. 6에 나타내었다. JCPDS 카드와 비교하여 결정질 상을 조사한 후 각 피크의 위에 기호로 삽입하였다. 그림에서와 같이 전반적으로 결정상 회절피크가 확인됨으로써 본 연구에서 제조한 내환경 코팅재의 주된 상은 결정상인 것으로 판단된다. 이러한 결과는 기존의 대기 플라즈

마 용사에 의해 코팅된 mullite 코팅재의 경우 비정질 상으로 코팅이 이루어짐으로써, 이후 반복되는 열처리에 의해 결정상으로 상변화가 일어나고 그 결과로 균열(crack)들의 결함이 관찰된 결과^{2,7)}에 비하면 상대적으로 우수한 결과이다. 또한 대기 플라즈마 용사에 의해 코팅된 Y_2SiO_5 코팅층 역시 동일 조성의 결정상을 포함하고 있는 것으로 확인되었다. 향후에는 보다 용사조건과 용사공정 시기관에 열처리를 추가하는 방법으로 온도차이를 감소시키는 기술 등으로 다양화함으로써 결정상의 회절피크가 보다 뚜렷한 상들을 얻을 계획이며, 후열처리 등을 통한 결정상 변화 및 박리연구 등을 수행할 예정이다.

분무건조법으로 제조된 Mullite과 Y_2SiO_5 분말을 사용하여 대기 플라즈마 용사법에 의해 내환경재를 코팅한 코팅층의 표면을 비이커스 압흔법으로 경도를 측정된 결과를 Fig. 7(a)에 나타내었다. 비이커스 압흔법에 의한 경도 측정값은 상호 비슷한 값을 보여 약 5 GPa의 값을 나타내었으며 mullite가 상대적으로 다소 높은 평균값의 경도를 나타내었다. Fig. 7(b)에서는 초경볼을 압흔하여 압흔 하중-변위곡선을 얻은 결과를 나타내었다. Fig. 4(b), (d)에서와 같이 플라즈마 용사 후에는 코팅층의 두께가 상호 다르게 코팅되어서, 먼저 polishing을 이용하여 두 코팅층

Fig. 6. XRD patterns on the surfaces of environmental barrier coatings of (a) mullite (∇ : Mullite, JCPDS Card: 15-776) and (b) yttrium silicate ($\diamond$: Y_2SiO_5 , JCPDS Card: 21-1456).

Fig. 7. Plots of (a) Hardness and (b) Indentation behavior for yttrium silicate and mullite EBCs.

의 두께를 약 180 μm 정도로 유사하게 유지한 후 시험하였다. 이 때 특히, 하부의 본드 코팅층 및 탄화규소 모재에 의해 영향을 받지 않도록 하중을 제어하여 하중 $P = 100\text{ N}$, 속도는 0.1 mm/min의 속도로 압흔실험을 하였다. 압흔실험결과 Fig. 7(b)와 같이 Mullite가 Y_2SiO_5 에 비하여 다소 탄성적이면서 고경도의 특성을 나타내었다. 이러한 결과는 Fig. 5에서와 같이 mullite의 경우가 상대적으로 치밀하게 코팅된데 기인한 것으로 생각된다. 그러나 상대적으로 탄성적이고 고경도의 코팅층은 지속적인 열팽창과 수축에 의해 큰 열응력이 작용하여 파괴를 빨리 일으키는 원인이 될 수 있으므로 향후 열적특성에 대한 평가를 수행하여 종합적인 평가를 수행할 계획이다.

4. 결 론

본 연구에서는 탄화규소 모재를 고온부식으로부터 보호하기 위해 Mullite과 Y_2SiO_5 내환경코팅재를 제조하고 평가하는 연구를 수행하였다. 탄화규소 모재 위에 Si 소재를 본드 코팅한 후 그 위에 Mullite과 Y_2SiO_5 분말을 탑 코팅하였으며, 이 때 mullite 분말과 Y_2SiO_5 분말을 분무 건조법으로 제조하여 용사하였다. 본드 코트 분말 및 탑 코팅 분말을 주사전자현미경으로 관찰한 결과 구형의 형상으로 치밀화된 분말이었음을 확인하였다. 상분석결과 결정상 회절피크를 확인하였으며, 파단면을 주사전자현미경으로 관찰한 결과 불균일한 미세구조를 갖지만 거시적으로는 큰 결함, 균열이 없고 계면박리가 일어나지 않는 건전한 코팅층을 얻었다. 코팅층의 두께는 약 200~300 μm 로 제어할 수 있었고, 기계적 특성을 평가한 결과 5 GPa의 상호 유사한 경도값을 갖는 내환경 코팅층을 제조하였다.

Acknowledgment

이 논문은 2013-2014년도 정부(산업통상자원부)의 재원으로 한국산업기술평가관리원(KEIT 지식경제 기술혁신기술개발사업, 10043819, 연구사업명 : 고효율 제트엔진 및 마이크로 가스터빈용 고신뢰성 SiC 섬유강화 세라믹 복합소재 개발)의 지원을 받아 수행된 연구임.

REFERENCES

1. K. N. Lee, D. S. Fox, and N. P. Bansal, "Rare Earth Silicate Environmental Barrier Coatings for SiC/SiC Composites and Si_3N_4 Ceramics," *J. Eur. Ceram. Soc.*, **25** 1705-15 (2005).
2. C. V. Cojocar, D. Levesque, C. Moreau, and R. S. Lima, "Performance of Thermally Sprayed Si/mullite/BSAS Environmental Barrier Coatings Exposed to Thermal Cycling in Water Vapor Environment," *Surf. Coat. Technol.*, **216** 215-23 (2013).
3. V. Herb, G. Couégnat, and E. Martin, "Damage Assessment of Thin SiC/SiC Composite Plates Subjected to Quasi-Static Indentation Loading," *Composites: Part A*, **41** 1677-85 (2010).
4. A. Abdul-Aziz and R. T. Bhatt, "Modeling of Thermal Residual Stress in Environmental Barrier Coated Fiber Reinforced Ceramic Matrix," *J. Compos. Mater.*, **46** [10] 1211-18 (2011).
5. S. Ramasamy, S. N. Tewari, K. N. Lee, R. T. Bhatt, and D. S. Fox, "Slurry Based Multilayer Environmental Barrier Coatings for Silicon Carbide and Silicon Nitride Ceramics, II. Oxidation Resistance," *Surf. Coat. Technol.*, **205** 266-70 (2010).
6. S. Ramasamy, S. N. Tewari, K. N. Lee, R. T. Bhatt, and D. S. Fox, "EBC Development for Hot-Pressed $\text{Y}_2\text{O}_3/\text{Al}_2\text{O}_3$ doped Silicon Nitride Ceramics," *Mater. Sci. Eng. A*, **527** 5492-98 (2010).
7. K. N. Lee, "Current Status of Environmental Barrier Coatings for Si-based ceramics," *Surf. Coat. Technol.*, **133-134** 1-7 (2000).
8. J. Kimmel, N. Miriyala, J. Price, K. More, P. Tortorelli, H. Eaton, G. Linsey, and E. Sun, "Evaluation of CFCC Liners with EBC after Field Testing in a Gas Turbine," *J. Eur. Ceram. Soc.*, **22** 2769-75 (2002).
9. M. P. Brady, B. L. Armstrong, H. T. Lin, M. J. Lance, K. L. More, L. R. Walker, F. Huang, and M. L. Weaver, "Feasibility Assessment of Self-Grading Metallic Bond Coat Alloys for EBCs/TBCs to Protect Si-Based Ceramics," *Scr. Mater.*, **52** 393-97 (2005).
10. K. N. Lee, D. S. Fox, J. I. Eldridge, D. Zhu, R. C. Robinson, N. P. Bansal, and R. A. Miller, "Upper Temperature Limit of Environmental Barrier Coatings Based on Mullite and BSAS," *J. Am. Ceram. Soc.*, **86** [8] 1299-306 (2003).
11. H. Wen, S. Dong, P. He, Z. Wang, H. Zhou, and X. Zhang, "Sol-Gel Synthesis and Characterization of Ytterbium Silicate Powders," *J. Am. Ceram. Soc.*, **90** [12] 4043-46 (2007).
12. B. J. Harder and K. T. Faber, "Transformation Kinetics in Plasma-Sprayed Barium- and Strontium-Doped Alumino-silicate (BSAS)," *Scr. Mater.*, **62** 282-85 (2010).
13. M. Aparicio and A. Duran, "Yttrium Silicate Coatings for Oxidation Protection of Carbon-Silicate Carbide Composites," *J. Am. Ceram. Soc.*, **83** [6] 1351-55 (2000).
14. Z. Suna, M. Li, and Y. Zhou, "Thermal Properties of Single-phase Y_2SiO_5 ," *J. Eur. Ceram. Soc.*, **29** 551-57 (2009).
15. C. Kim, Y. S. Heo, T. W. Kim, and K. S. Lee, "Fabrication and Characterization of Zirconia Thermal Barrier Coatings by Spray Drying and Atmospheric Plasma Spraying (in Korean)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **50** [5] 326-32 (2013).
16. D. H. Lee and K. S. Lee, "Mechanical Behavior of Layered YSZ Thermal Barrier Coatings using Indentation Test (in Korean)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **48** [5] 396-403 (2011).