

## Y- $\alpha$ / $\beta$ -Sialon 陶瓷材料及疲劳特性研究\*

邬凤英 詹国栋 庄汉锐 来亭荣  
(中国科学院上海硅酸盐研究所 上海 200050)

### 摘 要

本文通过组份设计, 选用  $\text{Si}_3\text{N}_4$ 、 $\text{AlN}$  和  $\text{Y}_2\text{O}_3$  等粉末为原料, 在  $1800\sim 1950^\circ\text{C}$  进行气氛加压烧结 (GPS), 制备了性能优良的 Y- $\alpha$ / $\beta$ -Sialon 陶瓷材料; 利用 XRD、EDAX 和 HREM 详细地研究了相组成和晶界特性, 其主晶相为  $\beta$ -Sialon 和  $\alpha$ -Sialon, 晶界由少量的  $\text{J-Y}_4\text{Si}_2\text{O}_7\text{N}_2$  结晶相以及微量的玻璃相构成; 并进一步探讨了材料在循环疲劳载荷下 Vickers 压痕短裂纹扩展特性, 结果表明, 最大应力强度因子与裂纹扩展速率之间呈 V 型扩展行为, 并对外加应力水平非常敏感。

**关键词** Sialon, GPS, 显微结构, Vickers 压痕, 循环疲劳裂纹扩展

### 1 引言

近年来, 人们发现复相 Sialon 陶瓷材料具有优良的综合性能而深受重视. 随着制备工艺—气压烧结 (GPS) 和高温等静压 (HIP) 技术的问世, 对 Sialon 陶瓷材料的研究产生了极大兴趣。

二十年前发现,  $\text{AlN}$  和  $\text{Al}_2\text{O}_3$  在高温可同时进入  $\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$  晶格而形成分子通式为  $\text{Si}_{6-z}\text{Al}_z\text{O}_z\text{N}_{8-z}$  ( $0 \leq z \leq 4$ ) 的  $\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$  固溶体<sup>[1]</sup>, 即  $\beta$ -Sialon, 它很快被开发成重要的氮陶瓷材料之一. 近来又发现  $\text{AlN}$  和某些大离子氮化物或氧化物在高温时可同时进入  $\alpha$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$  晶格, 形成  $\alpha$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$  固溶体, 即所谓  $\alpha$ -Sialon, 其通式为  $M_x\text{Si}_{12-(m+n)}\text{Al}_{m+n}\text{O}_n\text{N}_{16-n}^{[2]}$  ( $M=\text{Y}, \text{Ca}$  等). 这些大离子占据晶胞中的二个大填隙空位, 故  $x \leq 2$ .  $\alpha$ -Sialon 组成比  $\beta$ -Sialon 含氮量高, 故液相的粘度也高, 这就是导致难以致密化的原因. 近来  $\alpha/\beta$ -Sialon 复相陶瓷引人注目, 其原因不仅可获得致密陶瓷, 而且这类陶瓷的力学性能具有加和性和可调节性。

随着  $\alpha/\beta$ -Sialon 陶瓷材料日益广泛地应用, 如何评价材料的可靠性, 预测其寿命, 就成为亟待解决的问题. 陶瓷材料的疲劳特性研究已成为力学性能中的热点. 众所周知, 陶瓷材料失效是起源于材料固有缺陷, 由于材料固有缺陷之一的表面缺陷, 可以用压痕裂纹进行模拟, 因此最近压痕裂纹被用来研究陶瓷材料在循环载荷下裂纹扩展行为. Fett 等人的研究表明, 对于相同材料, 人工小裂纹与自然裂纹相比, 裂纹扩展起源相同, 循环疲劳相似<sup>[3]</sup>.

本文通过组成设计, 选用气压烧结工艺 (GPS), 制备了性能优良的 Y- $\alpha$ / $\beta$ -Sialon 陶瓷材料, 通过 XRD、EDAX 和 HREM 详细研究了它的相组成和晶界特性; 进一步探讨了材料

\* 1996年6月25日收到初稿, 8月22日收到修改稿  
国家自然科学基金资助项目 (19392300)

在循环疲劳载荷下短裂纹扩展特性.

## 2 实验

根据  $\alpha$ -Sialon 分子式:  $M_x\text{Si}_{12-(m+n)}\text{Al}_{m+n}\text{O}_n\text{N}_{16-n}$  其中填隙原子  $M$  为 Y, 设计材料的组成, 以  $\text{Si}_3\text{N}_4$ 、 $\text{AlN}$  和  $\text{Y}_2\text{O}_3$  粉末为原料, 用无水乙醇为介质进行混合、干燥、成型, 然后将坯体置于  $\text{Si}_3\text{N}_4$ - $\text{AlN}$ -BN 为埋粉的石墨坩锅中, 在气氛加压炉内于  $1800\sim 1950^\circ\text{C}$ 、 $0.1\sim 3\text{MPa}$   $\text{N}_2$  压力下进行烧结.

试样的相组成采用 X 射线衍射分析; 断口形貌由 SEM 观察; 用 EDAX 和 HREM 分析相成份及晶界特性; 抗弯强度采用三点弯曲法测试, 其试样尺寸为  $3\times 4\times 36\text{mm}$ , 跨距为  $30\text{mm}$ , 加载速度为  $0.5\text{mm/min}$ ; 断裂韧性 ( $K_{\text{IC}}$ ) 采用压痕法测试. 循环疲劳试验是在 Instron Model 8501 材料试验机上采用四点弯曲加载方法进行的 (试样尺寸为  $3\times 4\times 36\text{mm}$ , 外跨距为  $30\text{mm}$ , 内跨距为  $10\text{mm}$ ). 试验所用波形为正弦波, 频率为  $5\text{Hz}$ , 载荷控制, 应力比  $R(=\sigma_{\text{min}}/\sigma_{\text{max}})$  为  $0.1$ . 裂纹长度是用显微镜测量的.

## 3 结果与讨论

### 3.1 相组成

在  $1800\sim 1950^\circ\text{C}$ 、 $1.5\text{MPa}$   $\text{N}_2$  压力下烧结的 Y- $\alpha/\beta$ -Sialon 陶瓷材料, 经 XRD 和 TEM 分析表明, 主晶相为  $\beta$ -Sialon 和  $\alpha$ -Sialon, 晶界相是由含 J- $\text{Y}_4\text{Si}_2\text{O}_7\text{N}_2[102]$  的结晶相和微量玻璃相构成.

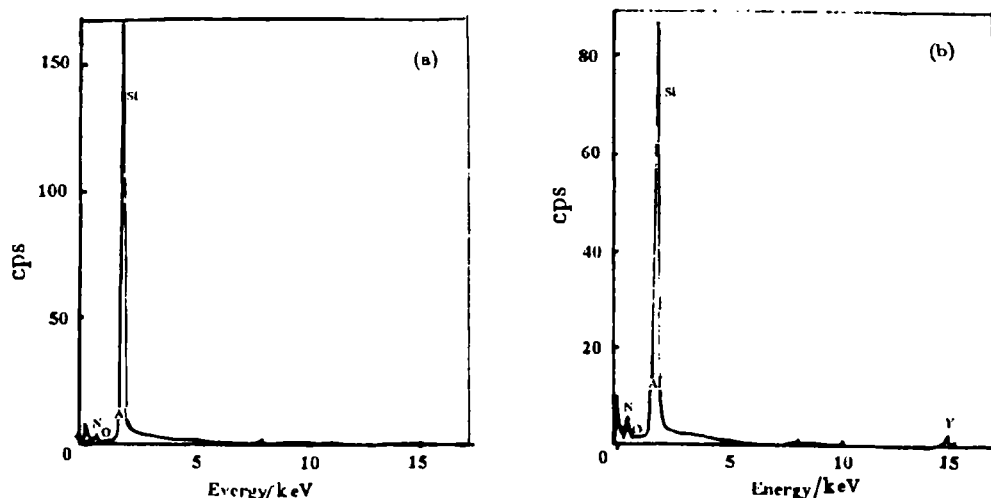


图 1 EDAX 分析结果

Fig.1 DEAX of Y- $\alpha/\beta$ -Sialon sintered at  $1850^\circ\text{C}$  for 2h under  $1.5\text{MPa}$   $\text{N}_2$

(a) For a  $\beta'$  grain; (b) For a  $\alpha'$  grain

图 1 示出  $\beta'$  ( $\beta$ -Sialon) 和  $\alpha'$  ( $\alpha$ -Sialon) 晶粒表面的 EDAX 分析结果. 图 1(a) 为  $\beta'$  晶粒的 EDAX 谱线, 由图谱可以清楚地看出除了 Si 元素主峰和 N 元素外, 还有 Al、O 元素, 由此可以进一步证明  $\text{Si}_3\text{N}_4$  中已有少量的 Al-O (键长为  $1.75\text{\AA}$ ) 取代 Si-N ( $1.74\text{\AA}$ ) 而形成  $\text{Si}_3\text{N}_4$

固溶体, 即所谓  $\beta$ -Sialon. 由图 1(b) 可见,  $\alpha'$  晶粒的 EDAX 谱线, 除 Si 元素主峰和 N 元素外, 还有 Y、Al、O 元素的小峰, 这证明由少量的 Al-O 和 Al-N(1.87Å) 取代 Si-N 的同时, 有大金属离子  $Y^{3+}$ (0.900Å) 参加填隙空位的情况下 ( $\alpha$ - $Si_3N_4$  单位晶胞含有两个填隙空位), 可以形成  $\alpha$ - $Si_3N_4$  固溶体, 也称  $\alpha$ -Sialon<sup>[4]</sup>.

### 3.2 显微结构

#### 3.2.1 晶粒形貌

通过 1850°C、2h、1.5MPa  $N_2$  压力下烧结的 Y- $\alpha/\beta$ -Sialon 陶瓷材料, 经 SEM 观察可见, Y- $\alpha/\beta$ -Sialon 的显微结构是由长柱状的  $\beta$ -Sialon 和近似等轴型的  $\alpha$ -Sialon 相互交织而成, 如图 2 所示.



图 2 Y- $\alpha/\beta$ -Sialon 断口表面的 SEM 照片  
Fig.2 SEM micrographs of fracture surface of Y- $\alpha/\beta$ -Sialon

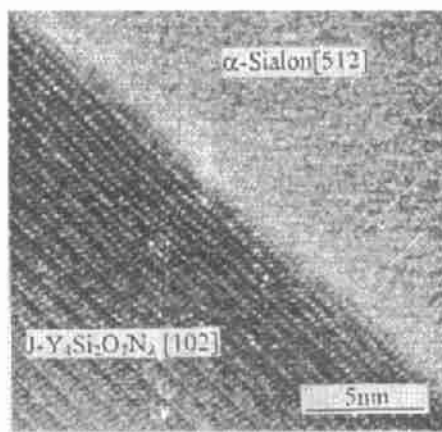


图 3 Y- $\alpha/\beta$ -Sialon 陶瓷材料的 HREM 照片  
Fig.3 HREM micrographs of Y- $\alpha/\beta$ -Sialon sintered at 1850°C for 2h under 1.5MPa  $N_2$

#### 3.2.2 晶界相

气氛加压烧结期间, 氮气将溶入液相 (或玻璃相) 中, 溶解量取决于氮气压力<sup>[5]</sup>、液相组成及温度<sup>[6]</sup>等. 较高的氮气压力可以抑制含氮晶界结晶相的溶解, 减少液相量, 增加液相粘度.

在 0.1~3MPa  $N_2$  压力条件下, 经 1850°C、2h 烧结而成的 Y- $\alpha/\beta$ -Sialon 陶瓷材料, 由电子显微镜暗场形貌和电子衍射图分析可见, 较高的氮气压力, 有利于含氮的结晶相形成. 经电子衍射和电子能谱分析表明, 晶界结晶相主要是 J 相.

图 3 示出经 1.5MPa  $N_2$  压力下, 1850°C、2h 制备的 Y- $\alpha/\beta$ -Sialon 陶瓷材料的高分辨电子显微镜像 (HREM). 通过 HREM 观察, 可清晰地显示出  $\alpha$ -Sialon 晶格象, 在晶界析出 J- $Y_4Si_2O_7N_2$ [102] 结晶相, 其结晶相是样品在炉内自然冷却过程中形成的. 在  $\alpha'$  和 J 相之间也存在微量的玻璃相.

### 3.3 疲劳特性

经 1800~1950°C、1.5MPa  $N_2$  压力下烧结 2h 后的 Y- $\alpha/\beta$ -Sialon 陶瓷材料密度为 3.25g/cm<sup>3</sup>, 常温抗弯曲强度为 760MPa, 断裂韧性 ( $K_{IC}$ ) 为 7.5MPa·m<sup>1/2</sup>.

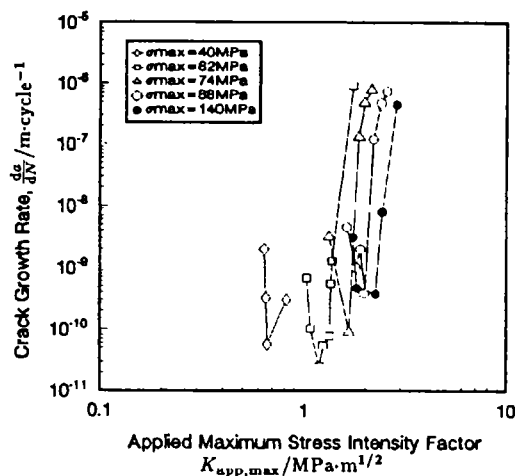


图 4 Y- $\alpha/\beta$ -Sialon 陶瓷材料在不同外加应力下裂纹扩展速率与外加最大应力强度因子之间关系

Fig.4 Crack growth rates vs applied maximum stress intensity factors ( $R=0.1$ ,  $f=5\text{Hz}$ ) at different applied stresses in Y- $\alpha/\beta$ -Sialon ceramic material

循环疲劳实验所用压痕载荷为 10~30kg, 所得到的压痕裂纹长度 ( $2c$ ) 在 150~300 $\mu\text{m}$  之间. 图 4 所示的是 Y- $\alpha/\beta$ -Sialon 陶瓷材料在循环频率为 5Hz、应力比为 0.1 时, 在不同的外加最大应力范围内循环疲劳裂纹扩展速率与外加最大应力强度因子之间的关系. 由图 4 可以看出, 压痕短裂纹循环疲劳裂纹扩展速率与外加最大应力强度因子之间的关系. 在裂纹扩展初期, 裂纹扩展速率随外加最大应力强度因子的增加而减少, 并达到最小值. 当外加最大应力强度因子超过某一值时, 裂纹扩展速率又开始增加. 该图表明, 压痕裂纹循环疲劳裂纹扩展速率对外加应力水平非常敏感. 随着外加应力的增加, 裂纹扩展速率的最小值所对应的最大应力强度因子值也增加, 而且最小裂纹扩展速率并不总是与外加最大应力变化趋势相一致. 同时由图 4 还可以看出, 压痕短裂纹循环疲劳裂纹扩展可在很低的应力强度因子下扩展, 这与陶瓷材料长裂纹的扩展规律不同 [7]. 也就是说, 压痕短裂纹循环疲劳裂纹能在低于长裂纹疲劳门槛值的应力强度因子下扩展.

## 4 结论

1. Y- $\alpha/\beta$ -Sialon 陶瓷材料的显微结构是由长柱状的  $\beta$ -Sialon 和等轴型的  $\alpha$ -Sialon 为主晶相, 在晶界有少量的  $J\text{-Y}_4\text{Si}_2\text{O}_7\text{N}_2$  [102] 结晶相以及微量的玻璃相构成.
2. 压痕短裂纹循环疲劳裂纹扩展速率与外加最大应力强度因子之间的关系呈 V 型曲线. 这种小裂纹现象是由压痕残余应力引起的.

## 参 考 文 献

- 1 Huang Zhenkun, Yan Dongsheng. *J. Mater. Sci.*, 1992, 27: 5640.
- 2 Sun W Y, Wu F Y, YAN D S (T. S. Yen). *Materials Letter*, 1987, 6 (1, 2): 11.
- 3 Fett T, Munz D. *Fracture Mechanics of Ceramics*, 1992, 9: 219.
- 4 Jack K H. *Nature*, 1978, 274: 880.
- 5 Sakka S, Mackenzie J D. *J. Non-Crystal Solids*, 1969, 1: 107.
- 6 Cohen M H, Jurbull D. *J. Chem. Phys.*, 1959, 31 (5): 1164.
- 7 Angela A S, Dauskardt R H, Ritchie R O. *J. Am. Ceram. Soc.*, 1991, 74 (6): 1259.

## Y- $\alpha$ / $\beta$ -Sialon Ceramics and Its Fatigue Behavior

WU Fengying ZHAN Guodong ZHUANG Hanrui LAI Tingrong  
(Shanghai Institute of Ceramics, Chinese Academy of Sciences Shanghai 200050 China)

### Abstract

The investigations were mainly focused on the phase composition, microstructure and fatigue behavior of fully-dense Y- $\alpha$ / $\beta$ -Sialon ceramics prepared from powder mixtures of  $\text{Si}_3\text{N}_4$ ,  $\text{AlN}$  and  $\text{Y}_2\text{O}_3$  by using gas pressure sintering technique.

The results obtained show that the typical microstructure of mixed Y- $\alpha$ / $\beta$ -Sialon ceramics consists of needle-like grains of the  $\beta$ -phase and equi-axed  $\alpha$ -Sialon grains with a small amount of glassy phase and  $J\text{-Y}_4\text{Si}_2\text{O}_7\text{N}_2[102]$  crystalline phase on grain boundaries.

The cyclic fatigue crack growth behavior from microindentation flaws was investigated with gas pressure sintered Y- $\alpha$ / $\beta$ -Sialon ceramics. A V-shape behavior was observed in the relation between the maximum applied stress intensity factor and crack growth rates which are sensitive to the level of applied stresses.

**Key words** Sialon, GPS, microstructure, vickers indentation, cyclic fatigue crack growth