

文章编号: 1000-324X(2003)05-1139-04

## 添加 $\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$ 棒晶对氮化硅陶瓷力学性能的影响

陈殿营, 张宝林, 庄汉锐, 李文兰

(中国科学院上海硅酸盐研究所, 上海 200050)

**摘 要:** 将由自蔓延燃烧合成法制备的  $\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$  棒晶加入到  $\alpha$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$  起始原料中, 研究了热压烧结氮化硅陶瓷力学性能的变化。随棒晶添加量的增加, 材料的韧性提高, 抗弯曲强度下降。与不加棒晶相比, 加入 8wt% 的  $\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$  棒晶可使陶瓷的韧性从  $4.0\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$  提高到  $6.7\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ 。断口形貌和压痕裂纹的显微结构观察表明, 韧性的提高源于长柱状晶粒的拔出和裂纹的偏转。

**关 键 词:**  $\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$  棒晶; 氮化硅; 断裂韧性;

**中图分类号:** TQ 174 **文献标识码:** A

### 1 引言

氮化硅是典型的高温高强结构陶瓷, 具有优良的室温及高温机械性能, 强度高, 耐腐蚀, 抗热震能力强, 抗化学腐蚀, 比重小, 是结构陶瓷中研究最为广泛深入的材料, 亦是陶瓷发动机及其它高温结构件、切削工具、耐磨件等的主要候选材料<sup>[1]</sup>。但是, 氮化硅陶瓷的脆性缺陷限制了它获得广泛的实际应用。如何提高氮化硅陶瓷的韧性一直是研究的热点。为了提高氮化硅陶瓷的韧性, 发展了棒晶(或称晶须)补强增韧、自增韧等增韧方法, 其中棒晶补强增韧是研究的热点之一<sup>[2~4]</sup>。

在我们以前的工作中, 利用自蔓延燃烧合成的方法制备了高长径比的  $\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$  棒晶<sup>[5]</sup>, 在本工作中, 重点研究了添加  $\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$  棒晶对氮化硅陶瓷力学性能的影响。

### 2 实验

以  $\alpha$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$  为原料,  $\text{Yb}_2\text{O}_3$  和  $\text{MgO}$  为烧结助剂, 将原始粉料按实验设计组份进行配比称重。混合粉料装入塑料罐中, 加入氮化硅球, 以无水乙醇为介质, 球磨混合 24h, 然后加入  $\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$  棒晶(形貌如图 1 所示, 长径比约为 10), 再次球磨 5h, 取出, 烘干, 过 60 目筛。将混合均匀的粉料倒入石墨模具中, 在氮气保护下的碳管炉中进行热压烧结(压力 20MPa), 烧结温度为  $1800^\circ\text{C}$ , 时间 1h。

利用 XRD 和 SEM 分别对热压样品进行相组成和显微结构的分析; 材料压痕断裂韧性由维氏硬度计在 100N 负荷下测定; 材料抗弯强度( $\sigma_f$ )测试在英制 Instron1195 万能材料试

收稿日期: 2002-08-19, 收到修改稿日期: 2002-09-20

基金项目: 中国科学院上海硅酸盐研究所创新基金

作者简介: 陈殿营(1975-), 男, 硕士。E-mail: cdiaying@yahoo.com.cn

验机上进行, 采用三点弯曲法测量, 跨距为 30mm, 加载速率为 0.5mm/min.

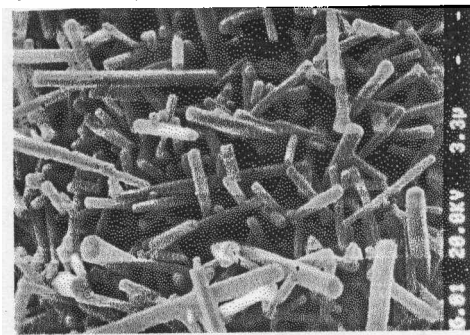


图 1  $\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$  棒晶的显微形貌

Fig. 1 Micrograph of  $\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$  rod crystals

### 3 结果和讨论

#### 3.1 材料的相对密度和相组成

表 1 给出了棒晶加入前后氮化硅陶瓷的相组成和相对密度. 从表中可以看出, 经过热压烧结后, 所有样品的相组成完全相同, 均由  $\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$  和少量的  $\text{Yb}_2\text{Si}_3\text{N}_2\text{O}_5$  组成; 此外, 所有的样品都已致密化, 即使  $\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$  棒晶的添加量为 8wt% 时, 烧结样品的相对密度也已经达到 98.2%.

表 1 添加  $\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$  棒晶的氮化硅陶瓷的相组成和相对密度

Table 1 Phase composition and relative density of HP sintered silicon nitride ceramic with and without  $\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$  rod crystals

Specimens	Content of $\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$ rod crystals/wt%	Relative density/%	Phase compositions
SN1	0	99.2	$\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$ (s), $\text{Yb}_2\text{Si}_3\text{N}_2\text{O}_5$ (w)
SN2	2	98.8	$\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$ (s), $\text{Yb}_2\text{Si}_3\text{N}_2\text{O}_5$ (w)
SN3	4	98.5	$\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$ (s), $\text{Yb}_2\text{Si}_3\text{N}_2\text{O}_5$ (w)
SN4	8	98.2	$\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$ (s), $\text{Yb}_2\text{Si}_3\text{N}_2\text{O}_5$ (w)

Note: s=strong; w=weak

#### 3.2 力学性能

图 2 是热压烧结氮化硅陶瓷的棒晶添加量与弯曲强度和断裂韧性的关系. 棒晶的加入使韧性升高, 与不加棒晶相比, 添加 8wt% 的棒晶使韧性从  $4.0\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$  提高到  $6.7\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ , 提高了 67.5%. 但是随棒晶添加量的增加, 样品的弯曲强度却呈下降的趋势, 从 1005MPa 下降到 670MPa.

棒晶加入导致氮化硅陶瓷韧性提高的原因可由样品的断口形貌和压痕裂纹的扩展路径得到反应. 图 3 给出了添加棒晶烧结样品的断口形貌, 从断口形貌可以明显的看出有许多空洞, 空洞是由于棒晶从基体中拔出后残存的痕迹, 这种棒晶拔出效应因界面摩擦消耗外界载荷的能量, 从而起到补强增韧的目的. 图 4 给出了压痕断裂韧性测定时的裂纹扩展路径, 从图中可以看出, 未加入棒晶的样品其裂纹较直, 没有明显的裂纹偏转 (图 4(a)), 而加入棒晶的样品则显示出了大量的裂纹偏转和桥连 (图 4(b)). 棒晶对裂纹的偏转效应延长了裂纹的扩展途径, 增大了裂纹扩展阻力因而需要吸收更多的能量. Becher<sup>[2]</sup> 分析了棒晶补强复相陶瓷中裂纹桥连的增韧机理, 提出了如下的公式:

$$K_{\text{IC}}^{\text{C}} = [E^{\text{c}}(J^{\text{m}} + \Delta J^{\text{cb}})]^{1/2}$$

式中,  $K_{\text{IC}}^{\text{C}}$  和  $E^{\text{c}}$  分别为复相陶瓷的断裂韧性和弹性模量,  $J^{\text{m}}$  和  $\Delta J^{\text{cb}}$  分别为基体中裂纹扩展和裂纹桥连过程中的能量消耗. 根据 Becher 方程, 添加了棒晶后,  $J^{\text{m}}$  和  $\Delta J^{\text{cb}}$  值升高, 因而表现出韧性升高.

对于添加棒晶后强度下降, 可能是因为棒晶加入后晶粒长大的结果. 棒晶在热压烧结过程中起着晶种的作用, 棒晶含量越高, 粗大晶粒越多, 粗大晶粒氮化硅是断裂源. 所以, 随着断裂韧性的升高, 抗弯强度下降.

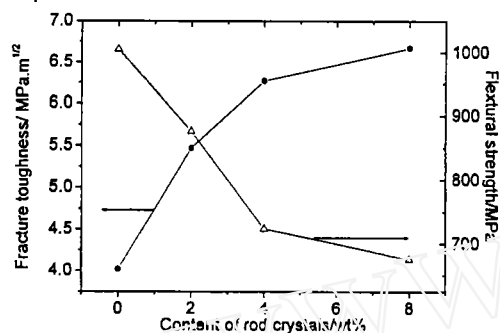


图 2 热压烧结氮化硅陶瓷的断裂韧性、弯曲强度与棒晶加入量的关系

Fig. 2 Fracture toughness and flexural strength of HP sintered silicon nitride ceramics



图 3 添加棒晶后热压烧结氮化硅陶瓷的断口形貌

Fig. 3 SEM photograph of fractured sample seeding with rod crystals

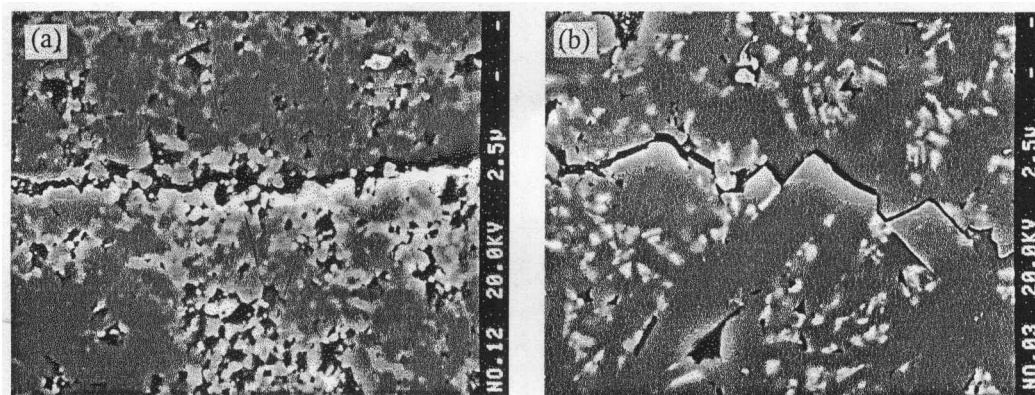


图 4 压痕裂纹扩展路径

Fig. 4 SEM photographs of the crack propagation of samples

(a) With 0wt% rod crystals; (b) With 8wt% rod crystals

## 4 结论

研究了添加自蔓延燃烧合成的  $\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$  棒晶对热压烧结氮化硅陶瓷力学性能的影响. 添加棒晶对热压烧结氮化硅陶瓷的致密化和相组成没有明显影响, 棒晶的加入使氮化硅陶瓷的韧性升高, 韧性升高的原因与陶瓷中长柱状晶粒引起的晶粒拔出以及裂纹偏转和桥连有关.

## 参考文献

- [1] Hoffmann M J, Petzow G. " Microstructure Design of  $\text{Si}_3\text{N}_4$  Based Ceramics "; in silicon nitride ceramics scientific and technology advances. Edited by I-Wei Chen, Paul F. Becher, G. Petzow, Tung-sheng Yen. Materials Research Society, Pittsburgh, PA, 1993. 3-14.
- [2] Becher P F. *J. Am. Ceram. Soc.*, 1991, **74** (2): 255-269.
- [3] Hirao Kiyoshi, Nagarka Takaaki, Manuel E. Brito, Shuzo kanzaki. *J. Am. Ceram. Soc.*, 1994, **77** (7): 1857-1862.
- [4] Hirao Kiyoshi, Masayshi, Manuel E. Brito, Shuzo kanzaki. *J. Am. Ceram. Soc.*, 1995, **78** (6): 1687-1690.
- [5] Chen Dianying, Zhang Baolin, Zhuang Hanrui, et al. *Mater. Res. Bull.*, 2002, **37** (8): 1481-1485.

### Effects of Seeding with $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ Rod Crystals on Mechanical Properties of Silicon Nitride Ceramics

CHEN Dian-Ying, ZHANG Bao-Lin, ZHUANG Han-Rui, LI Wen-Lan  
(Shanghai Institute of Ceramics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200050, China)

**Abstract:** In this paper, the effects of seeding  $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$  rod crystals prepared by self-propagating high-temperature synthesis on the mechanical properties of silicon nitride ceramic were investigated. The experimental results showed that with the increase of  $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$  rod crystals content, the fracture toughness increases, while the flexile strength decreases. The fracture toughness can increase from  $4.0\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$  to  $6.7\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$  when 8wt%  $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$  rod crystal was added compared with that without seeding. The improvement of fracture toughness results from the grain pullout and bridging, branching of elongated grains.

**Key words**  $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$  rod crystals; silicon nitride; fracture toughness