



Original Research Article - Extended Abstract

Effect of Sintering Temperature on Properties of Fused Silica- YSZ Composite Prepared by Spark Plasma Sintering

Elahe Teymourian ¹, Masoud Alizadeh ^{2*}, Hossein Nouranian ², Toraj Ebadzadeh ³

¹ M. Sc Student., Department of Ceramic, Materials and Energy Research Center, Karaj, Iran

² Associate Professor, Department of Ceramic, Materials and Energy Research Center, Karaj, Iran

³ Professor, Department of Ceramic, Materials and Energy Research Center, Karaj, Iran

*Corresponding Author's Email: m-alizadeh@merc.ac.ir (M. Alizadeh)

Paper History:

Received: 2021-11-21

Revised in revised form: 2022-01-19

Scientific Accepted: 2022-01-29

Keywords:

Composite,
Fused Silica,
Yttria Stabilized Zirconia,
Mechanical Properties

Abstract In this research, fused silica-zirconia composites including of 5 % by weight of zirconia stabilized yttria prepared by Spark Plasma Sintering (SPS) method. The powders were mixed by Spex (8000D, High energy ball mill) for 30 min in ethanol media. After mixing process, the ethanol removed by heating of the batches at 70 °C. The prepared samples were sintered at 1100, 1200 and 1300 °C and final pressure of 30 MPa. FESEM images demonstrated distribution of reinforcements at the fused silica matrix, also the results showed that sintered samples at 1200 °C have better properties than other samples. Relative density, flexural strength, hardness and toughness of these samples were 99.99 %, 13.4 GPa, 131 MPa and 4.46 MPa.m^{1/2} respectively. Also results showed that with increasing of sintering temperature to 1300 °C, due to crystallization in fused silica and as a result the formation of cracks in matrix, flexural strength decreased but the hardness and toughness increased slightly.



<https://doi.org/10.30501/jamt.2022.313935.1197>

URL: https://www.jamt.ir/article_143971.html

1. INTRODUCTION

Advanced ceramics have a combination of desirable properties such as high hardness and strength, high temperature tolerance, chemical neutrality, erosion resistance and low density [1]. Mechanical properties of fused silica matrix composites with reinforced zirconia particles are usually much better than pure ceramic parts [2, 3]. In these composites, mechanical strength and hardness and other properties are often improved [4]. In the SPS method, shaping and sintering are done in one step, and due to the use of pulsed current with high amperes, the heating rate is very high, and therefore the overall sintering time is greatly reduced compared to the other sintering methods. The lack of grain growth, easy operation, no need for various additives and initial pre-pressing, etc. are among the advantages that can be mentioned for this method [5, 6]. In this research, stabilized fused silica-zirconia composite with high density and uniform microstructure was prepared by SPS method to achieve optimal mechanical properties. In order to make the distribution of stabilized zirconia particles uniform in the matrix of fused silica powder, it was mixed with 5 % by weight of zirconia in a high-energy SPEX machine, and then the powders prepared using SPS at temperatures of 1100, 1200 and 1300 °C with a final pressure of 30 MPa and They were sintered with soaking time of 8 minutes and at the end their properties were evaluated.

In this research, fused silica powder with a purity of more than 99 % with $D_{50} = 5.369 \mu\text{m}$ and stabilized zirconia powder with a purity of more than 99 % with $D_{50} = 0.2 \mu\text{m}$ were used.

X-ray diffraction was used to identify the phases. The XRD device used in this method is a Siemens model with a copper anode, a wavelength of 1.5454 angstroms and a step size of 0.05 degrees. Archimedes method according to ASTM B962-13 standard was used to measure the density of sintered samples. The bending strength test was performed by the three-point method according to the ASTM-C1161-13 standard on samples with dimensions of $25 \times 2 \times 1.5 \text{ mm}$ and using the STM-20 bending strength device.

3. RESULTS AND DISCUSSION

In the samples of fused silica including YSZ, an increase in the density of the samples is observed with an increase in the sintering temperature. So that at a temperature of 1100 °C, the density is equal to 95.64 % and at a temperature of 1300 °C, it almost reaches the theoretical density. This shows that with the increase in temperature, the porosity is removed and the connection between the particles is increased, and it creates a unified structure with high density. The results show that the samples containing YSZ have higher strength compared to the sample without YSZ. Also, the results show that, by increasing the temperature of the sintering sinter from 1100 to 1200 °C, the strength increases, which is in agreement with the results of the Archimedes

2. MATERIALS AND METHODS

Please cite this article as: Teymourian, E., Alizadeh, M., Nouranian, H., Ebadzadeh, T., "Effect of sintering temperature on properties of fused silica-YSZ composite prepared by spark plasma sintering", *Journal of Advanced Materials and Technologies (JAMT)*, Vol. 11, No. 3, (2022), 75-84. (<https://doi.org/10.30501/jamt.2022.313935.1197>).



test and the X-ray diffraction pattern. However, at a temperature of 1300 °C, due to the crystallization of amorphous to cristobalite in fused silica, due to the difference in the coefficients of thermal expansion of the amorphous phase and cristobalite, this crystallization has been accompanied by a change in volume and leads to cracks and a decrease in flexural strength (Table 1). Table 2 shows the fracture toughness of the samples. As can be seen, the fracture toughness of the samples also increased with the increase in sinter temperature. The fused silica sample without zirconia has a fracture

toughness equal to 1.28.1 MPa. The results show that by increasing the weight percentage of zirconia up to 5 %, the fracture toughness increases and becomes 3.47 MPa.m^{1/2}. This increase in toughness is due to the presence of zirconia as a reinforcement. Microstructure evaluation shows that the samples are dense and have the least porosity. The low hardness of the fused silica phase, compared to zirconia, causes this phase to pull out during the polishing operation. For this reason, the porosities on the polished surface appear larger than the actual porosity.

Table 1. Flexural strength of sintered parts

Sample	Flexural strength (MPa)
SPS-1100-FS	96.5 ± 3.4
SPS-1100-5Y	117.75 ± 6.2
SPS-1200-5Y	131.66 ± 9.5
SPS-1300-5Y	127.67 ± 6.9

Table 2. Fracture toughness of the samples

Sample	Fracture toughness (MPa.m ^{1/2})
SPS-1100-FS	1.8 ± 0.2
SPS-1100-5Y	3.47 ± 0.6
SPS-1200-5Y	4.46 ± 1.1
SPS-1300-5Y	4.87 ± 1.2

4. CONCLUSION

The samples were sintered at temperatures of 1100, 1200 and 1300 °C and a final pressure of 30 MPa. The evaluation results showed that the properties of sintered samples sintered at a temperature of 1200 °C have better properties than other samples. The relative density, flexural strength, hardness and toughness of this sample were 99.99 %, 13.40 GPa, 131 MPa and 4.46 MPa.m^{1/2} respectively.

5. ACKNOWLEDGEMENT

The authors of the article are grateful to all the colleagues of the research institute, who helped in carrying out this research.

REFERENCES

1. Chawla, K., "Processing of ceramic matrix composites", *Ceramic Matrix Composites*, Springer, (2003), 107-138. <https://link.springer.com/book/10.1007%2F978-1-4615-1029-1>
2. Sun, G., Wang, W., Bi, J., "High-temperature mechanical behavior of boron nitride nanosheets/fused silica composite", *Ceramic International*, Vol. 46, No. 18, (2021), 29330-29333. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2020.08.035>
3. Sun, G., Bi, J., Wang, W., Zhang, J., "Enhancing mechanical properties of fused silica composites by introducing well-dispersed boron nitride nanosheets", *Ceramic International*, Vol. 44, No. 5, (2018), 5002-5009. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2017.12.096>
4. Wan, W., Huang, C. E., Yang, J., Zeng, J., Qiu, T., "Effect of sintering temperature on the properties of fused silica ceramics prepared by gelcasting", *Journal of Electronic Materials*, Vol. 43, No. 7, (2014), 2566-2572. <https://doi.org/10.1007/s11664-014-3112-7>
5. Wan, W., Feng, Y., Yang, J., Bu, W., Qiu, T., "Microstructure, mechanical and high-temperature dielectric properties of zirconia-reinforced fused silica ceramics", *Ceramics International*, Vol. 42, No. 5, (2016), 6436-6443. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2016.01.063>
6. He, Y. W., Bu, J. L., Wang, R. S., Zhao, D. M., Chen, J. X., Yu, L. X., Wang, Z. F., "Sintering properties of fused silica/nano-zirconia composite ceramic", *Advanced Materials Research*, Vol. 750, (2013), 81-84. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/AMR.750-752.81>



مقاله کامل پژوهشی

بررسی تأثیر دمای سینتر در خواص کامپوزیت‌های سیلیس گداخته - زیرکونیای پایدارشده با ایتريای (YSZ) تهیه‌شده به‌روش جرقه پلاسما

الهه تیموریان^۱، مسعود علیزاده^{۲*}، حسین نورانیان^۲، تورج عبادزاده^۳

^۱ دانشجوی کارشناسی ارشد، پژوهشکده سرامیک، پژوهشگاه مواد و انرژی، کرج، ایران

^۲ دانشیار، پژوهشکده سرامیک، پژوهشگاه مواد و انرژی، کرج، ایران

^۳ استاد، پژوهشکده سرامیک، پژوهشگاه مواد و انرژی، کرج، ایران

تاریخچه مقاله:

ثبت اولیه: ۱۴۰۰/۰۸/۳۰

دریافت نسخه اصلاح‌شده: ۱۴۰۰/۱۰/۲۹

پذیرش علمی: ۱۴۰۰/۱۱/۰۹

کلیدواژه‌ها:

کامپوزیت،

سیلیس گداخته،

زیرکونیای پایدارشده با ایتريای،

خواص مکانیکی

چکیده در این پژوهش، کامپوزیت‌های سیلیس گداخته - زیرکونیا با ۵ درصد وزنی زیرکونیای پایدارشده، به‌روش جرقه پلاسما، تهیه شدند. پودرها به‌کمک آسیای پرانرژی در محیط اتانول به‌مدت نیم ساعت با هم مخلوط شدند. پس از مخلوط‌شدن، پودرها در دمای ۷۰ درجه سلسیوس خشک شدند. نمونه‌های تهیه‌شده در دماهای ۱۱۰۰، ۱۲۰۰ و ۱۳۰۰ درجه سلسیوس و فشار نهایی ۳۰ MPa تف‌جوشی شدند. مشاهدات میکروسکوپ الکترونی نمونه‌ها نشان داد که زیرکونیای تثبیت‌شده در زمینه سیلیس گداخته یکنواخت توزیع شده است. همچنین، نتایج ارزیابی نشان داد نمونه‌های تف‌جوشی‌شده در دمای ۱۲۰۰ درجه سلسیوس از سایر نمونه‌ها استحکام بیشتری دارند. چگالی نسبی، استحکام خمشی، سختی و چقرمگی این نمونه‌ها به‌ترتیب ۹۹/۹۹ درصد، ۱۳/۴۰ GPa، ۱۳۱ MPa و $4/46 \text{ MPa.m}^{1/2}$ و به‌دست آمد. همچنین مشاهده شد، با افزایش دمای تف‌جوشی تا دمای ۱۳۰۰ درجه سلسیوس، به‌دلیل ایجاد تبلور در سیلیس گداخته و سپس ایجاد ترک در آن، استحکام کاهش یافته، اما سختی و چقرمگی به میزانی جزئی افزایش می‌یابد.



<https://doi.org/10.30501/jamt.2022.313935.1197> URL: https://www.jamt.ir/article_143971.html

۱- مقدمه

خواص مکانیکی کامپوزیت‌های زمینه سیلیس گداخته با

ذرات تقویت‌شده زیرکونیا معمولاً بسیار بهتر از بدنه‌های خالص

سرامیکی است. در این کامپوزیت‌ها، استحکام مکانیکی و سختی

و سایر ویژگی‌ها بیشتر اوقات بهبود می‌یابند. این پارامترها به

عوامل مختلفی از جمله نوع، اندازه و شکل ذرات و همچنین

یکنواختی توزیع آن‌ها در زمینه کامپوزیت وابسته‌اند [۵ و ۶].

برای ساخت این کامپوزیت تاکنون روش‌های مختلفی

همچون کوره قوس الکتریکی^۱ و پرس گرم^۲ به‌کار رفته است.

روش ساخت در خواص نهایی قطعات سرامیکی تأثیر می‌گذارد.

دو روش جدید برای تولید قطعات چگال وجود دارد: یکی

سیلیس گداخته با داشتن ویژگی‌های برجسته مکانیکی و

فیزیکی مانند هدایت حرارتی کم، ضریب انبساط حرارتی کم،

ثابت دی‌الکتریک پایدار و مقاومت به خوردگی و شوک حرارتی

خوب کاربردهای فراوانی دارد [۱-۳]. گرچه استحکام مکانیکی

سرامیک‌های سیلیس گداخته تف‌جوشی‌شده برای کاربردهای

هوافضا کافی است، پژوهش‌های گسترده‌ای در خصوص افزودن

فاز تقویت‌کننده به آن برای افزایش استحکام مکانیکی این نوع

سرامیک‌ها انجام شده است [۴].

^۱ Electric Arc Furnace

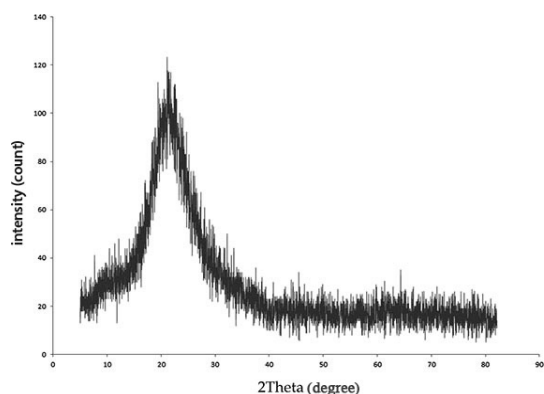
^۲ Hot Pressing

*عهده دار مکاتبات: مسعود علیزاده

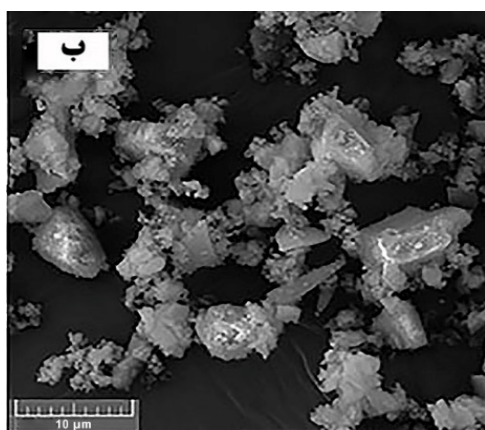
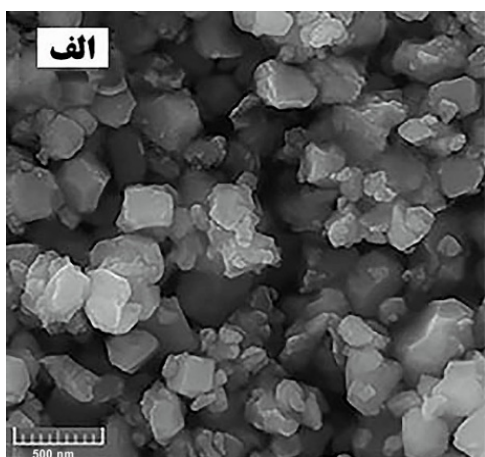
نشانی: ایران، کرج، پژوهشگاه مواد و انرژی، پژوهشکده سرامیک، تلفن: ۰۲۶-۳۶۲۸۰۰۴۰، دورنگار: ۰۲۶-۳۶۲۰۱۸۸۸

پیام‌نگار: m-alizadeh@merc.ac.ir

همان‌طور که در این شکل مشخص است، ذرات YSZ کلوخه‌شده و میکرونی‌اند.



شکل ۱. آنالیز پراش پرتو ایکس پودر سیلیس گداخته



شکل ۲. تصویر میکروسکوپی الکترونی روبشی گسیل میدانی پودرهای اولیه، الف) سیلیس گداخته و ب) YSZ

پودرهای مخلوط‌شده در قالبی گرافیتی به قطر ۳۰ میلی‌متر ریخته شده و درون دستگاه جرقه پلاسمای مدل SPS-20T-10 ساخت چین قرار داده شدند. فرایند تف‌جوشی نمونه‌ها در دماهای ۱۱۰، ۱۲۰۰ و ۱۳۰۰ درجه سلسیوس با فشار

استفاده از روش تف‌جوشی جرقه پلاسماست که درواقع نوعی پرس گرم پیشرفته است و دیگری تف‌جوشی با استفاده از انرژی ماکروویو است. در روش SPS، برخلاف استفاده از ماکروویو، شکل‌دهی و تف‌جوشی در یک مرحله انجام می‌شود و، به‌دلیل استفاده از جریان پالسی با آمپر بالا، سرعت گرمایش بسیار زیاد است. بنابراین، در مقایسه با روش پرس گرم معمولی، زمان کلی تف‌جوشی بسیار کاهش می‌یابد. از طرفی، یکنواختی قطعات ساخته‌شده، با این روش تناسب دارد. عدم رشد افراطی دانه، عملیات آسان، نیازنداشتن به افزودنی‌های گوناگون و شکل‌دهی اولیه از جمله مزایای این روش‌اند [۷ و ۸].

در این پژوهش، کامپوزیت سیلیس گداخته - زیرکونیای پایدارشده با چگالی بالا و ریزساختار یکنواخت، برای دستیابی به خواص مکانیکی مطلوب و بهینه، به روش SPS تهیه شد. به‌منظور یکنواخت‌شدن توزیع ذرات زیرکونیای پایدارشده در زمینه پودر سیلیس گداخته، پودر سیلیس گداخته با ۵ درصد وزنی زیرکونیا در دستگاه آسیای پرانرژی اسپکس مخلوط شدند و سپس پودرهای تهیه‌شده با استفاده از SPS در دماهای ۱۱۰۰، ۱۲۰۰ و ۱۳۰۰ درجه سلسیوس با فشار نهایی ۳۰ MPa و با زمان ماندگاری ۸ دقیقه تف‌جوشی شدند و در پایان خواص آن‌ها ارزیابی شد.

۲- روش تحقیق

در این پژوهش، از پودر سیلیس گداخته با خلوص بیش از ۹۹ درصد با $D_{50} = 5.369 \mu m$ و پودر زیرکونیای پایدارشده با خلوص بیش از ۹۹ درصد با $D_{50} = 0.2 \mu m$ استفاده شده است. همچنین، در فرایند اسپکس، به‌منظور مخلوط‌شدن دو پودر و جلوگیری از چسبیدن ذرات پودر به گلوله‌ها، از اتانولی با خلوص بیش از ۹۹ درصد استفاده شد. در شکل ۱، آنالیز پراش پرتو ایکس پودر سیلیس گداخته اولیه نشان داده شده است. شکل ۱ نشان می‌دهد که این ماده کاملاً آمورف است و فاز بلوری در آن مشاهده نمی‌شود.

در شکل ۲، تصویر میکروسکپ الکترونی روبشی گسیل میدانی پودرهای اولیه الف) سیلیس گداخته و ب) زیرکونیای پایدارشده با ایتیریا (YSZ) ارائه شده است. همان‌طور که مشاهده می‌شود، میانگین اندازه ذرات پودر سیلیس گداخته مورد استفاده ۵ میکرومتر است. شکل ۲(ب)، پودر YSZ را نشان می‌دهد.

مسی، طول موج ۱/۵۴۵۴ آنگستروم و اندازه گام ۰/۰۵ درجه است. به‌منظور تعیین نوع فازها و بررسی قله‌های شناسایی شده و آنالیز ریتولد، از نرم‌افزارهای X'Pert High Score Plus و TOPAS 5 استفاده شد.

اولیه ۱۰ MPa (طی فرایند تف‌جوشی) و فشار نهایی ۳۰ MPa (بعد از مرحله دوم انقباض) انجام شد. در جدول ۱، مشخصات نمونه‌ها آورده شده است. برای شناسایی فازها از پراش پرتو ایکس^۱ استفاده شد. دستگاه XRD که در این روش استفاده شد مدل زیمنس با آند

جدول ۱. مشخصات نمونه‌های تف‌جوشی شده به‌روش SPS

کد نمونه	درصد YSZ	دمای تف‌جوشی (°C)	فشار (MPa)	زمان نگهداری (دقیقه)
SPS-1100-5Y	۵	۱۱۰۰	۳۰	۸
SPS-1200-5Y	۵	۱۲۰۰	۳۰	۸
SPS-1300-5Y	۵	۱۳۰۰	۳۰	۸

۳- نتایج و بحث

شکل ۳ تغییرات جابه‌جایی سنبه را برحسب زمان برای نمونه‌های شامل ۵ درصد YSZ تف‌جوشی شده در دماهای ۱۱۰۰، ۱۲۰۰، ۱۳۰۰ درجه سلسیوس نشان می‌دهد. همان‌طور که در شکل ۳ مشاهده می‌شود، برای سهولت بررسی رفتار تف‌جوشی در طی فرایند، این نمودار به چهار ناحیه تقسیم شده است. در ناحیه اول، که مربوط به ۱۳ دقیقه ابتدایی فرایند است، دمای نمونه در پایان این مرحله حدود ۹۵۰ درجه سلسیوس است. با گذشت زمان و گرمایش تدریجی، هیچ‌گونه تغییری در جابه‌جایی مشاهده نشده است و درواقع میزان جابه‌جایی صفر است و روی محور افقی قرار دارد. نبودن جابه‌جایی در این ناحیه نشان می‌دهد که هنوز فرایند تف‌جوشی و متراکم‌شدن قطعات آغاز نشده است و در این مرحله، فقط گرم‌شدن هم‌زمان قالب و پودر رخ داده است.

ناحیه دوم نمودار از لحظه‌ای شروع می‌شود که اولین مقدار جابه‌جایی مشاهده شده است. در این مرحله، با گذشت زمان و افزایش دما، تغییرات جابه‌جایی مشاهده می‌شود. این تغییرات را می‌توان به مراحل اولیه فرایند تف‌جوشی و بازآرایی ذرات پودر اولیه نسبت داد. حرارت منبع اصلی انرژی برای تف‌جوشی قطعات است و از آنجاکه ذرات پودر اولیه گرمای کافی دریافت کرده‌اند، در این مرحله، به‌تدریج شروع می‌کنند به جابه‌جایی و بازآرایی و در واقع آرایش مجدد ذرات و لغزش

برای اندازه‌گیری چگالی نمونه‌های تف‌جوشی‌شده، از روش ارشمیدس طبق استاندارد ASTM B962-13 استفاده شد. آزمون استحکام خمشی به‌روش سه‌نقطه‌ای طبق استاندارد ASTM-C1161-13 روی نمونه‌هایی با ابعاد ۲۵ × ۲ × ۱/۵ میلی‌متر و با استفاده از دستگاه استحکام خمشی مدل STM-20 انجام شد.

برای اندازه‌گیری سختی نمونه‌ها، از روش میکروویکرز و دستگاه سختی‌سنجی مدل M5 ساخت شرکت شاب ساری استفاده شد. برای افزایش دقت سختی اندازه‌گیری‌شده نمونه‌ها، پنج بار آزمون سختی برای هر نمونه انجام شد و میانگین سختی به‌دست‌آمده محاسبه شد.

چقرمگی شکست نمونه‌ها در رابطه (۱) و با استفاده از ترک‌های ایجادشده با دستگاه فرورونده ویکرز تحت بار مشخص محاسبه شد [۹].

$$K_{1c} = 0.203 H a^2 \left(\frac{c}{a} \right)^{-3/2} \quad (1)$$

در این رابطه، K_{1c} ، H ، a و c به‌ترتیب چقرمگی شکست، سختی ویکرز برحسب MPa، نصف قطر اثر لوزی ویکرز و طول ترک از مرکز لوزی ویکرز برحسب متر هستند. برای ارزیابی ریزساختار نمونه‌ها نیز از میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی^۲ مدل MIRATESCAN با ولتاژ کاری ۱۵ کیلوولت ساخت کشور چک استفاده شد.

² Field Emission Scanning Electron Microscope (FESEM)

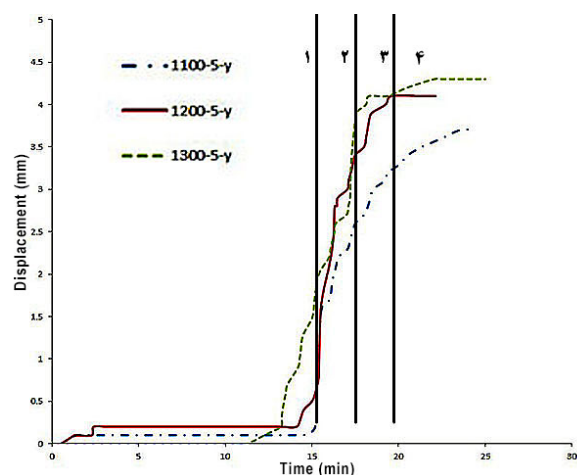
¹ X-Ray Diffraction (XRD)

تفجوشی، سازوکارهای چگال‌شدن را از طریق افزایش تماس بین ذرات و آرایش مجدد مواضع ذرات برای بهبود تراکم تسریع می‌کند. ناحیه ۴، که در نمودار مشخص شده است، مربوط به زمان نگهداری در دمای نهایی است. در این ناحیه، نمونه‌ها به دمای نهایی موردنظر رسیده‌اند و فشار ۳۰ مگاپاسکالی روی آن‌ها اعمال شده است. همان‌طور که ملاحظه می‌شود، در این ناحیه، هنوز با گذشت زمان، تغییرات جابه‌جایی ادامه دارد، ولی مقدار آن در مقایسه با دو مرحله قبل کم است و درواقع شیب آن کم است. بنابراین می‌توان این تغییرات را به حذف بیشتر تخلخل‌ها به دلیل رشد دانه‌ها نسبت داد؛ چراکه، در این مرحله، زمان کافی برای پدیده رشد دانه‌ها و حذف تخلخل‌های اضافی وجود دارد. البته این تغییرات در مراحل اولیه این ناحیه رخ داده‌اند و پس از آن، هیچ‌گونه جابه‌جایی دیده نشده است. شایان ذکر است که در این مرحله نمی‌توان حذف تخلخل‌ها را فقط با تغییرات جابه‌جایی معادل دانست؛ چراکه مقدار چگالی قطعات بالاست و حساسیت اندازه‌گیری تغییرات جابه‌جایی آن‌قدر زیاد نیست که مقدار جزئی تغییرات چگالی را ثبت کند. از آنجایی که فشار اعمال‌شده روی نمونه و زمان نگهداری در دمای نهایی برای همه نمونه‌ها ثابت بوده و فقط دمای نمونه‌ها با هم متفاوت است، با توجه به تغییرات میزان جابه‌جایی، می‌توان مقدار متراکم‌شدن قطعات را با هم مقایسه کرد. هرچه دمای تفجوشی بالاتر باشد، میزان جابه‌جایی ثبت‌شده با کنترل‌کننده دستگاه نیز بیشتر است. این امر انقباض بیشتر در نمونه‌ها را آشکار می‌کند. این انقباض بیشتر افزایش مقدار چگالی نمونه‌ها را نشان می‌دهد. بدین‌منظور، چگالی نمونه‌های تفجوشی‌شده، با روش ارشمیدس، اندازه‌گیری شد و، با توجه به چگالی نظریه سیلیس گداخته و زیرکونیا برای هر ترکیب، بسته به درصد فاز زیرکونیا، چگالی قطعات به‌دست آمد.

در جدول ۲، تغییرات چگالی قطعات با ۵ درصد وزنی زیرکونیای پایدارشده برحسب دما ارائه شده است. همان‌طور که مشاهده می‌شود، چگالی این ترکیب‌ها در سه دمای بررسی‌شده ۱۱۰۰، ۱۲۰۰ و ۱۳۰۰ درجه سلسیوس تفاوت‌هایی با یکدیگر دارند. با توجه به جدول ۲، افزایش بیشتر دما برای بهبود چگالی لازم است.

از طرفی، در دماهای بالا، احتمال تشکیل جرقه‌های موضعی و به‌تبع آن، افزایش موضعی دما در نمونه‌ها وجود دارد

آن‌ها و نیز تشکیل گرده‌های اولیه در نقاط تماس بین ذرات انجام می‌شود [۱۰]. این آرایش مجدد شامل حرکت یا چرخش جزئی ذرات مجاور به‌منظور افزایش تعداد نقاط تماس است. برای هر سه نمونه، این تغییرات تا دمای ۱۱۰۰ درجه سلسیوس (پس از ۱۸ دقیقه) تقریباً به‌صورت مشابه رخ داده است و به‌دلیل خطاهای ناشی از اندازه‌گیری زمان و خطاهای دستگاه، نمودارها دقیقاً در این ناحیه روی هم قرار نگرفته‌اند. پس از آن، هرچه دمای تفجوشی بیشتر باشد، تغییرات جابه‌جایی بیشتری در این ناحیه رخ می‌دهد. البته گفتنی است، چون دمای تفجوشی این سه نمونه با هم تفاوت دارد، میزان محدوده نواحی ۲، ۳ و ۴ برای هر نمونه متفاوت خواهد بود.



شکل ۳. تغییرات جابه‌جایی سنبه برحسب زمان برای نمونه‌های سیلیس گداخته شامل ۵ درصد YSZ در دماهای ۱۱۰۰، ۱۲۰۰ و ۱۳۰۰ درجه سلسیوس

با رسیدن هر نمونه به دمای نهایی موردنظر، فشار باقی‌مانده اعمال می‌شود و در نتیجه تغییرات جابه‌جایی به‌تدریج با سرعت بیشتری انجام می‌شوند. این قسمت از نمودار، ناحیه ۳ نام‌گذاری شده است. این ناحیه، همان‌طور که در شکل هم مشخص است، باریک است و نشان می‌دهد که در زمان نسبتاً کوتاه (دو دقیقه) فشار به‌تدریج روی نمونه‌ها افزایش یافته و از طرفی، دمای نمونه‌ها نیز به حد نهایی موردنظر رسیده است. این دو عامل هم‌زمان باعث پیشبرد فرایند تفجوشی و تغییرات شدید در میزان جابه‌جایی می‌شوند و جابه‌جایی چشمگیری در این مرحله رخ می‌دهد. می‌توان گفت، در این مرحله، گرده‌های ایجادشده بین ذرات رشد کرده و بزرگ‌تر می‌شوند و سپس میزان تخلخل‌ها کاهش می‌یابد. اعمال هم‌زمان فشار در دمای

و در دمای ۱۳۰۰ درجه سلسیوس تقریباً به چگالی نظریه می‌رسد. این امر نشان می‌دهد، با افزایش دما، فاصله بین ذرات کمتر، تخلخل‌ها حذف و پیوستگی بین ذرات بیشتر و ساختاری یکپارچه با چگالی بالا ایجاد می‌شود.

که در نتیجه امکان تغییرات فازی افزایش و خواص مکانیکی نمونه‌ها کاهش می‌یابد.

در نمونه‌های سیلیس گداخته با YSZ، افزایش چگالی نمونه‌ها با افزایش دمای تف‌جوشی مشاهده می‌شود، به‌طوری که در دمای ۱۱۰۰ درجه سلسیوس چگالی معادل ۹۵/۶۴ درصد

جدول ۲. تغییرات چگالی قطعات با ۵ درصد وزنی زیرکونیا برحسب دما

نمونه	چگالی نسبی (%)	تخلخل (%)	جذب آب (%)
SPS-1100-5Y	$8/64 \pm 0/95$	$6/88 \pm 0/4$	$4/2 \pm 0/2$
SPS-1200-5Y	$4/61 \pm 0/99$	$2/05 \pm 0/1$	$1/4 \pm 0/0$
SPS-1300-5Y	$1/99 \pm 0/99$	$3/06 \pm 0/1$	$1/3 \pm 0/1$

در جدول ۳، مقادیر استحکام خمشی، سختی و چقرمگی شکست نمونه‌های حاوی ۵ درصد وزنی زیرکونیا پایداری شده با نمونه بدون زیرکونیا مقایسه شده است.

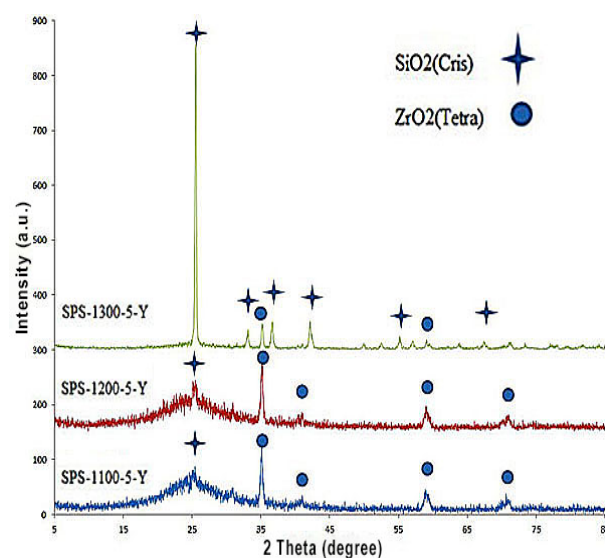
نتایج جدول ۳ نشان می‌دهند نمونه‌های حاوی YSZ، در مقایسه با نمونه بدون YSZ، استحکام بالاتری دارند. همچنین مشاهده می‌شود، با افزایش دمای تف‌جوشی از ۱۱۰۰ تا ۱۲۰۰ درجه سلسیوس، استحکام افزایش می‌یابد که با نتایج آزمون ارشمیدس و الگوی پراش پرتو ایکس (ایجاد کریستوبالیت) مطابقت دارد (جدول ۲). اما، در دمای ۱۳۰۰ درجه سلسیوس، به دلیل تبلور آمورف به کریستوبالیت در سیلیس گداخته، با توجه به اختلاف ضرایب انبساط حرارتی فاز آمورف و کریستوبالیت، این تبلور با تغییر حجم همراه است و به ایجاد ترک و کاهش استحکام خمشی منجر می‌شود.

همان‌گونه که در مراجع ذکر شد، سختی و یکرز سیلیس گداخته برابر با ۶/۶ GPa زیرکونیا با خلوص بالای ۹۸ درصد و سختی ۱۵ GPa است [۱۱ و ۱۲].

با توجه به جدول ۳ ملاحظه می‌شود که سختی نمونه سیلیس گداخته بدون زیرکونیا (SPS-1100-FS) برابر با ۹/۹۵ GPa بوده و بیشترین سختی مربوط به نمونه SPS-1300-5Y است که مقدار آن معادل ۱۳/۴۷ GPa است.

با افزایش دما حین تف‌جوشی، دانه‌ها در نمونه‌ها رشد می‌کنند و میزان سختی کاهش می‌یابد. درواقع می‌توان رشد دانه

در شکل ۴، الگوی پراش پرتو ایکس نمونه‌های تف‌جوشی شده ارائه شده است. ملاحظه می‌شود که، با افزایش دمای تف‌جوشی از ۱۱۰۰ به ۱۲۰۰ درجه سلسیوس، تبلور در سیلیس گداخته کمی افزایش یافته است. که این امر، با توجه به حجم کم تغییر فاز، تأثیر منفی قابل توجهی در خواص فیزیکی و مکانیکی نخواهد داشت. اما، با افزایش دما از ۱۲۰۰ به ۱۳۰۰ درجه سلسیوس، مقدار تبلور سیلیس گداخته افزایش شدیدی می‌یابد و فاز کریستوبالیت^۱ را پدید می‌آورد و باعث ایجاد ترک و افت خواص این کامپوزیت می‌شود.



شکل ۴. الگوی پراش پرتو X نمونه‌های شامل ۵ درصد YSZ تف‌جوشی شده در دماهای مختلف SPS

^۱ Cristobalite

را عامل تضعیف‌کننده خواص مکانیکی مواد مانند سختی و استحکام دانست [۱۳ و ۱۴]. نتایج جدول ۳ نشان می‌دهد، با افزایش دمای تف‌جوشی، سختی نمونه‌ها تا دمای ۱۲۰۰ درجه سلسیوس افزایش می‌یابد. ولی، از دمای ۱۲۰۰ تا ۱۳۰۰ درجه سلسیوس، به دلیل رشد دانه ناشی از دمای بالای تف‌جوشی، سختی مقداری کاهش می‌یابد.

جدول ۳. استحکام خمشی، سختی و چقرمگی شکست نمونه‌های تف‌جوشی شده به روش SPS

نمونه	استحکام خمشی (MPa)	سختی (GPa)	چقرمگی شکست (MPa.m ^{1/2})
SPS-1100-FS	۴/۵ ± ۳/۹۶	۵/۹۵ ± ۰/۹	۲/۸ ± ۰/۱
SPS-1100-5Y	۲/۷۵ ± ۶/۱۱۷	۹/۸۶ ± ۰/۱۱	۶/۴۷ ± ۰/۳
SPS-1200-5Y	۵/۶۶ ± ۹/۱۳۱	۲/۴۰ ± ۱/۱۳	۱/۴۶ ± ۱/۴
SPS-1300-5Y	۹/۶۷ ± ۶/۱۲۷	۳/۴۷ ± ۱/۱۳	۲/۸۷ ± ۱/۴

زمانی که ترکی ساخته می‌شود، ریزترک‌های موجود انرژی آن را جذب و از رشد شدید آن جلوگیری می‌کنند. به طور کلی، چقرمگی شکست کامپوزیت به مدول کشسان، سختی و طول ترک بستگی دارد. نتایج حاصل از نمونه‌های گوناگونی که درصد تخلخل متفاوتی داشتند نشان داد، با افزایش درصد تخلخل، سختی کاهش می‌یابد [۱۵].

همان‌طور که اشاره شد، درصد تخلخل نمونه SPS-1200-5Y کمتر از نمونه سیلیس گداخته بدون YSZ (SPS-1100-FS) است. در این نمونه‌ها، تخلخل از رشد و گسترش ترک‌های ناشی از فرورونده ویکرز جلوگیری می‌کند و چقرمگی شکست را افزایش می‌دهند. چقرمگی شکست در نمونه SPS-1200-5Y برابر با $4/46 \text{ MPa.m}^{1/2}$ است. اگرچه سازوکار رشد دانه چقرمگی را افزایش می‌دهد، با درشت‌شدن بیش از اندازه، تعداد ریزترک‌ها بیشتر می‌شود و به یکدیگر می‌پیوندند. در نتیجه چقرمگی شکست کاهش می‌یابد [۱۵].

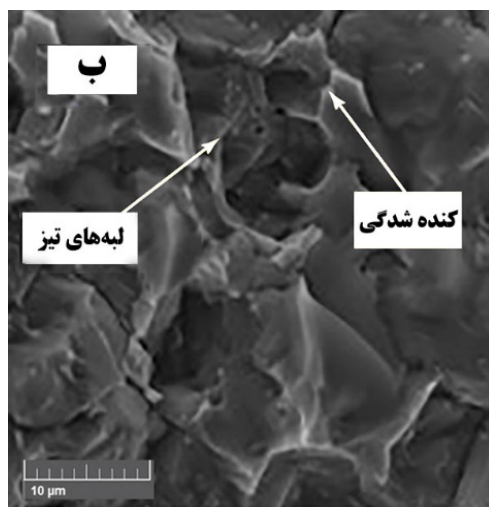
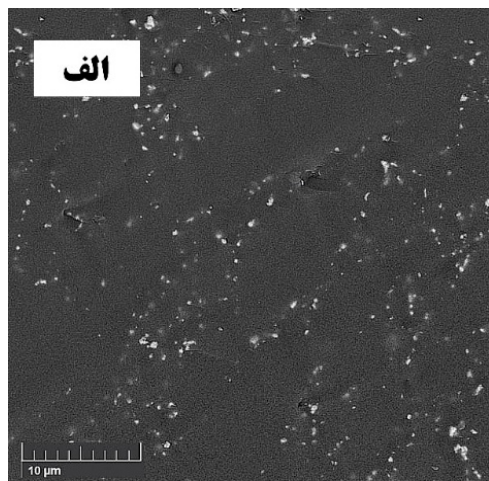
براساس رابطه گریفیث، با افزایش چقرمگی، استحکام افزایش می‌یابد، ولی این افزایش استحکام در صورتی کارساز است که افزایش چقرمگی باعث افزایش عیوب نشود [۱۶]. اعمال تنش و انحراف ترک می‌تواند تأثیر مثبتی در استحکام داشته باشند. از جمله سازوکارهایی که تأثیر منفی در استحکام دارند ایجاد ریزترک است که به دلیل دگرگونی‌های فازی در سیستم به وجود می‌آید و در دماهای پایین تف‌جوشی، این پدیده مشاهده نمی‌شود. گرچه می‌توان ایجاد ترک‌هایی ناشی از اختلاف زیاد ضرایب انبساط حرارتی فازهای سیلیس گداخته و زیرکونیا ($\text{SiO}_2 = 0.55 \times 10^{-6} (1/^\circ\text{C})$ $\text{ZrO}_2 = 10.6 \times 10^{-6} (1/^\circ\text{C})$)

نمونه‌های تف‌جوشی شده در دمای ۱۱۰۰ درجه سلسیوس کمترین مقدار سختی را در بین نمونه‌ها دارند که دلیل آن چگالی کمتر و تف‌جوشی نشدن کامل نمونه‌هاست.

همچنین، در جدول ۳، ملاحظه می‌شود چقرمگی شکست نمونه‌ها نیز با افزایش دمای تف‌جوشی افزایش می‌یابد. چقرمگی شکست نمونه سیلیس گداخته بدون زیرکونیا برابر با $1/8 \text{ MPa.m}^{1/2}$ است. نتایج نشان می‌دهد، با افزایش درصد وزنی زیرکونیا تا ۵ درصد، چقرمگی شکست افزایش می‌یابد و برابر با $3/47 \text{ MPa.m}^{1/2}$ می‌شود. این افزایش چقرمگی به دلیل حضور زیرکونیاست که به شکل تقویت‌کننده عمل می‌کند. با توجه به نوع سیستم در این پژوهش و شباهت آن با دیگر مقالات علمی، به نظر می‌رسد انحراف و انشعاب ترک، سازوکارهای افزایش چقرمگی در نمونه‌های حاوی زیرکونیای تقویت‌کننده هستند [۱۵].

انحراف ترک، با جذب انرژی ترک، باعث بهبود چقرمگی شکست می‌شود. این سازوکار می‌تواند از کرنش پسماند در کامپوزیت و فصل مشترک‌های ضعیف زمینه و فاز ثانویه پدید آید. کرنش پسماند می‌تواند ناشی از ناسازگاری ضریب انبساط حرارتی بین زمینه و فاز ثانویه و ناهمسانی انبساط گرمایی در کامپوزیت باشد [۱۵].

انشعاب ترک نیز سازوکاری است که، با جذب انرژی ترک، باعث بهبود چقرمگی شکست می‌شود. همچنین، با افزایش دمای تف‌جوشی، اندازه دانه‌های سیلیس گداخته نیز افزایش می‌یابد و افزایش اندازه دانه موجب ایجاد ریزترک‌ها می‌شود [۱۵].



شکل ۶. تصاویر سطح شکست نمونه‌های الف) SPS-1200-5Y و ب) SPS-1300-5Y

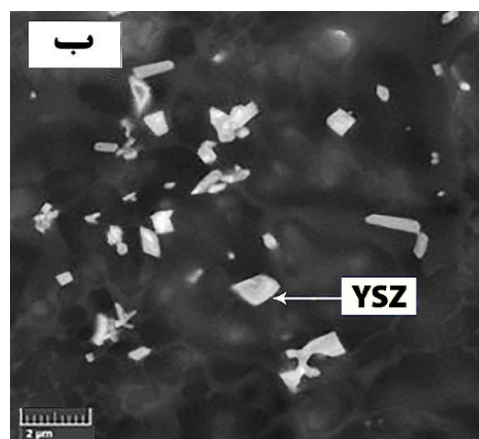
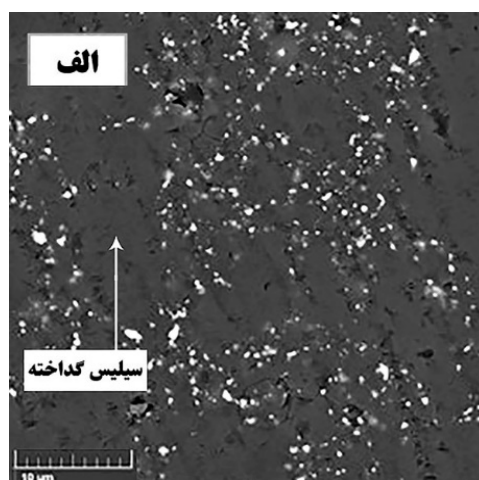
۴- نتیجه‌گیری

در این پژوهش، کامپوزیت‌های سیلیس گداخته-زیرکونیا با ۵ درصد وزنی زیرکونیای پایدارشده، به‌روش جرقه پلاسما (SPS)، تهیه شدند. برای مخلوط کردن پودرها، از آسیای پرانرژی استفاده شد. نمونه‌ها در دماهای ۱۱۰۰، ۱۲۰۰ و ۱۳۰۰ درجه سلسیوس و فشار نهایی ۳۰ MPa تف‌جوشی شدند. نتایج نشان داد که خواص نمونه‌های تف‌جوشی‌شده در دمای ۱۲۰۰ درجه سلسیوس بهتر از سایر نمونه‌هاست. چگالی نسبی، استحکام خمشی، سختی و چقرمگی این نمونه به ترتیب ۹۹/۹۹ درصد، ۱۳/۴۰ GPa، ۱۳۱ MPa و $4/46 \text{ MPa.m}^{1/2}$ به دست آمد.

تصاویر میکروسکوپ الکترونی نشان داد که تف‌جوشی همراه با اعمال فشار در فرایند متراکم‌سازی نمونه‌های کامپوزیت بسیار تأثیرگذار است و بالاترین میزان چگالی به دست می‌آید.

و تفاوت در مقدار انبساط و انقباض در هنگام تف‌جوشی و سرد شدن و همچنین ترک‌های ناشی از استحاله‌های فازی را پیش‌بینی کرد، با توجه به نتایج به دست آمده از استحکام، نمی‌توان اهمیت چندانی برای این پدیده قائل شد.

شکل ۵، ریزساختار کامپوزیت‌های تف‌جوشی‌شده را نشان می‌دهد. در این شکل، توزیع ذرات زیرکونیا در زمینه سیلیس گداخته مشاهده می‌شود. ملاحظه می‌شود که نمونه‌ها چگال و کمترین تخلخل را دارند. سختی پایین فاز سیلیس گداخته، در مقایسه با زیرکونیا، موجب کند شدن این فاز در هنگام عملیات پرداخت می‌شود. به این دلیل، تخلخل‌های روی سطح پرداخت‌شده بیشتر از میزان تخلخل واقعی به نظر می‌رسد.



شکل ۵. تصاویر FESEM نمونه‌های الف) SPS-1200-5Y و ب) SPS-1300-5Y

در شکل ۶، تصاویر سطح شکست نمونه‌های تف‌جوشی‌شده مشاهده می‌شود. با بررسی سطح شکست، مشخص شد شکست این کامپوزیت‌ها به دلیل ایجاد لبه‌های تیز و کندشدگی‌های ایجادشده، از نوع ترد است.

۵- سپاسگزاری

نویسندگان مقاله از کلیه همکاران پژوهشگاه، که در انجام این پژوهش ما را یاری رساندند، کمال تشکر و قدردانی را دارند.

مراجع

- materials: A review of the spark plasma sintering method", *Journal of Materials Science*, Vol. 41, No. 3, (2006), 763-777. <https://doi.org/10.1007/s10853-006-6555-2>
8. Munir, Z. A., Quach, D. V., Ohyanagi, M., "Electric current activation of sintering: A review of the pulsed electric current sintering process", *Journal of the American Ceramic Society*, Vol. 94, No. 1, (2011), 1-19. <https://doi.org/10.1111/j.1551-2916.2010.04210.x>
9. Evans, A. G., "Fracture toughness: The role of indentation techniques", *Fracture Mechanics Applied to Brittle Materials*, ASTM International, (1979).
10. Tokita, M., "Spark Plasma Sintering (SPS) method, systems, and applications", *Handbook of Advanced Ceramics*, (2013), 1149-1177. <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-385469-8.00060-5>
11. Brückner, R., "Properties and structure of vitreous silica", *Journal of Non-Crystalline Solids*, Vol. 5, No. 2, (1970), 123-175. [https://doi.org/10.1016/0022-3093\(70\)90190-0](https://doi.org/10.1016/0022-3093(70)90190-0)
12. Hannink, R. H., Kelly, P. M., Muddle, B. C., "Transformation toughening in zirconia-containing ceramics", *Journal of the American Ceramic Society*, Vol. 83, No. 3, (2000), 461-487. <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.2000.tb01221.x>
13. Wachtman, J. B., Cannon, W. R., Matthewson, M. J., *Mechanical Properties of Ceramics*, John Wiley & Sons, (2009). <https://www.wiley.com/en-us/Mechanical+Properties+of+Ceramics%2C+2nd+Edition-p-9780471735816>
14. Li, Y., Liu, N., Zhang, X., Rong, C., "Effect of Mo addition on the microstructure and mechanical properties of ultra-fine grade TiC-TiN-WC-Mo₂C-Co cermets", *International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*, Vol. 26, No. 3, (2008), 190-196. <https://doi.org/10.1016/j.ijrmhm.2007.05.005>
15. Pokluda, J., Šandera, P., *Micromechanisms of Fracture and Fatigue: in a Multi-Scale Context*, Springer Science & Business Media, (2010). <https://link.springer.com/book/10.1007/978-1-84996-266-7>
16. Lajtai, E., "A theoretical and experimental evaluation of the Griffith theory of brittle fracture", *Tectonophysics*, Vol. 11, No. 2, (1971), 129-156. <https://ur.booksc.eu/book/19784599/73dabb>
1. Chawla, K., "Processing of ceramic matrix composites", *Ceramic Matrix Composites*, Springer, (2003), 107-138. <https://link.springer.com/book/10.1007%2F978-1-4615-1029-1>
2. Sun, G., Wang, W., Bi, J., "High-temperature mechanical behavior of boron nitride nanosheets/fused silica composite", *Ceramic International*, Vol. 46, No. 18, (2021), 29330-29333. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2020.08.035>
3. Sun, G., Bi, J., Wang, W., Zhang, J., "Enhancing mechanical properties of fused silica composites by introducing well-dispersed boron nitride nanosheets", *Ceramic International*, Vol. 44, No. 5, (2018), 5002-5009. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2017.12.096>
4. Wan, W., Huang, C. E., Yang, J., Zeng, J., Qiu, T., "Effect of sintering temperature on the properties of fused silica ceramics prepared by gelcasting", *Journal of Electronic Materials*, Vol. 43, No. 7, (2014), 2566-2572. <https://doi.org/10.1007/s11664-014-3112-7>
5. Wan, W., Feng, Y., Yang, J., Bu, W., Qiu, T., "Microstructure, mechanical and high-temperature dielectric properties of zirconia-reinforced fused silica ceramics", *Ceramics International*, Vol. 42, No. 5, (2016), 6436-6443. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2016.01.063>
6. He, Y. W., Bu, J. L., Wang, R. S., Zhao, D. M., Chen, J. X., Yu, L. X., Wang, Z. F., "Sintering properties of fused silica/nano-zirconia composite ceramic", *Advanced Materials Research*, Vol. 750, (2013), 81-84. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/AMR.750-752.81>
7. Munir, Z., Anselmi-Tamburini, U., Ohyanagi, M., "The effect of electric field and pressure on the synthesis and consolidation of