



Original Research Article - Extended Abstract

Density, Compression, and Mechanical Properties of Silicon Nitride-Based Ceramic Composites

Amir Hossein Kouchaki Foroshani ¹, Aida Faeghinia ^{2*}, Seyed Ali Taiebi Fard ³, Ali Sedaghat Ahangri Hossein Zadeh ⁴, Seyed Salman Seyed Afghahi ⁵

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

⁴ Assistant Professor, Department of Ceramic, Materials and Energy Research Center, Karaj, Iran

⁵ Associate Professor, Faculty of Material Science and Engineering Department of Engineering, Imam Hossein University, Tehran, Tehran, Iran

*Corresponding Author's Email: aida.faeghinia@gmail.com (A. Faeghinia)

Paper History:

Received: 2021-11-23

Revised in revised form: 2022-01-11

Scientific Accepted: 2022-01-31

Keywords:

Si₃N₄,

Eu₂O₃,

SPS,

Mechanical Properties

Abstract In this study, the density, compression, and mechanical properties of the Si₃N₄-SiO₂ composite containing Eu₂O₃ and SiO₂ additives with weight percentages of 7 wt% and 10 wt%, respectively, were studied at different ratios of 0, 3, and 5. The composite ceramics in this study was produced by, first, preparing the powder by mixing and milling for 12 h. Then, they were formed based on cold pressing and cold isostatic pressing methods and finally sintered through spark plasma sintering process. The samples were incubated at 1750 °C for 15 min at the heating rate of 100 °C/min, pressure of 40 MPa, and maximum temperature under vacuum atmosphere. After the grinding process, the particle size of the initial powder mixture was reduced by about 19 %. The results demonstrated that after the cold isostatic pressing process, the relative density of the samples increased up to 14.67 %. The high beta phase amount of the silicon nitride in the 7 % Eu₂O₃ sample confirmed the presence of sufficient amount of liquid phase during the sintering process, improvement in the dissolution, diffusion, and precipitation mechanism, and finally an increase in the rate of phase transformation of alpha to beta. The highest hardness of 21.61 GPa was observed in the 5 % Eu₂O₃ sample, indicating its high density, advancement of dissolution-diffusion mechanism, and deposition of nitride compounds in the sintering process. In this study, due to the presence of glass phase in the Eu₂O₃ sample, its toughness value was a significant amount, i.e., 6.1 MPa.m^{1/2}, compared to that of the other samples.



<https://doi.org/10.30501/jamt.2022.316127.1198>

URL: https://www.jamt.ir/article_144099.html

1. INTRODUCTION

Si₃N₄ ceramics are promising materials for high-temperature applications [1]. Over years, engineering ceramics have had extensive applications in automobile manufacturing, coating industry, structural components, etc. [2] owing to their beneficial properties such as thermal resistance, high-temperature strength, good resistance to the corrosion and high hardness, excellent wear resistance, and low thermal expansion [3, 4].

Different sintering techniques can be used for the expanding the Si₃N₄ applications. The standard sintering techniques are pressureless sintering, hot pressing, and spark plasma sintering [5, 6]. Spark plasma sintering, in comparison with the other conventional methods, enjoys some notable advantages such as easy processing and fast sintering of high energy precision control sintering with the ability to achieve full condensation within a few minutes, to name a few [8, 9]. In addition, spark plasma sintering is known for its high crystal growth and more chemical reaction in ceramics sintering [7]. However, owing to the strong links between Si-N, sintering of Si₃N₄ is problematic because the materials become highly porous after sintering [8].

Meager densification causes heterogeneous grain growth and subsequently forms different crystalline sizes and shapes. Heterogeneous microstructure affects the mechanical properties such as the fracture behavior and reduced material life.

2. MATERIALS AND METHODS

Commercial α-Si₃N₄ powder (α-Si₃N₄ > 95 %, d₅₀ = 0.5 μm, purity of 99.5 %, oxygen content of 0.68 %, Luoyang info technology Co., Ltd., Henan, China) and SiO₂ powder (d₅₀ = < 4 μm, purity of > 99.99 %, Iliya Industry Co., Isfahan, Iran) were used as the raw powders. In addition, Eu₂O₃ powder (d₅₀ = < 4 μm, purity of > 99.99 %, Yunshen Industrial Co., Ltd., Hebei, China) was used as the sintering additive. To fabricate the Si₃N₄ ceramic composite, the composition ratios of the Si₃N₄, SiO₂, and Eu₂O₃ powders that are listed in Table 1 should be taken into account.

The high-energy planetary milling machine was mixed with the raw materials. Next, the raw materials and ethanol were mixed with the Si₃N₄ balls in the milling machine. The slurry was poured into the Teflon cup and milled for 24 h and then dried at 80 °C for 24 h

Please cite this article as: Kouchaki Foroshani, A. H., Faeghinia, A., Taiebi Fard, S. A., Sedaghat Ahangri Hossein Zadeh, A., Seyed Afghahi, S. S., "Density, compression, and mechanical properties of silicon nitride-based ceramic composites", *Journal of Advanced Materials and Technologies (JAMT)*, Vol. 11, No. 4, (2023), 65-85. (<https://doi.org/10.30501/jamt.2022.316127.1198>).



until all of the ethanol was evaporated. After drying, the powder was crushed by a ceramic mortar and passed through a 200-mesh sieve. The obtained powder was granulated for better flowability in the mold for uniform distribution. For the uniaxial press, a steel mold of 25 mm in diameter was used at the pressing pressure of 30 MPa.

Table 1. The composition of samples

Name	Purity %	Particle Size (μm)
Si_3N_4	98 <	0/05
SiO_2	98 <	4 >
Eu_2O_3	98 <	4 >
$\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$	99.7 <	-
PVA	99	-

3. RESULTS AND DISCUSSION

Since the mechanical properties of the engineering ceramics strongly depend on the type of the developed microstructure and nature of the grain boundary phases formed during the sintering process, the microstructure

of the manufactured ceramic parts was investigated and analyzed. The amount, distribution, grain size, and morphology of the alpha and beta particles in the silicon nitride-based ceramics are decisive factors in determining the final properties of the produced parts [9]. Figures 1 and 2 depict the SEM images of the fracture surface and polished surface of the sintered samples. According to the SEM images in Figure 1, upon increasing the amount of the Eu_2O_3 sintering aid, the microstructure of the samples becomes denser and more uniform than before, and the number of pores decreases. Further, upon increasing the amount of the sintering aid, an increase in the relative density and an improvement in the compressibility behavior of the samples can be observed.

As observed in the SEM images illustrated in Figure 2, the samples do not have a uniform microstructure, and their microstructure contains micropores. With an increase in the amount of the sintering aid, the phase transformation from alpha to beta is done through the dissolution progress, diffusion, and precipitation mechanisms, hence formation of rod-shaped grains of beta silicon nitride. In the 7 % Eu_2O_3 sample, a completely rod-shaped microstructure can be observed.

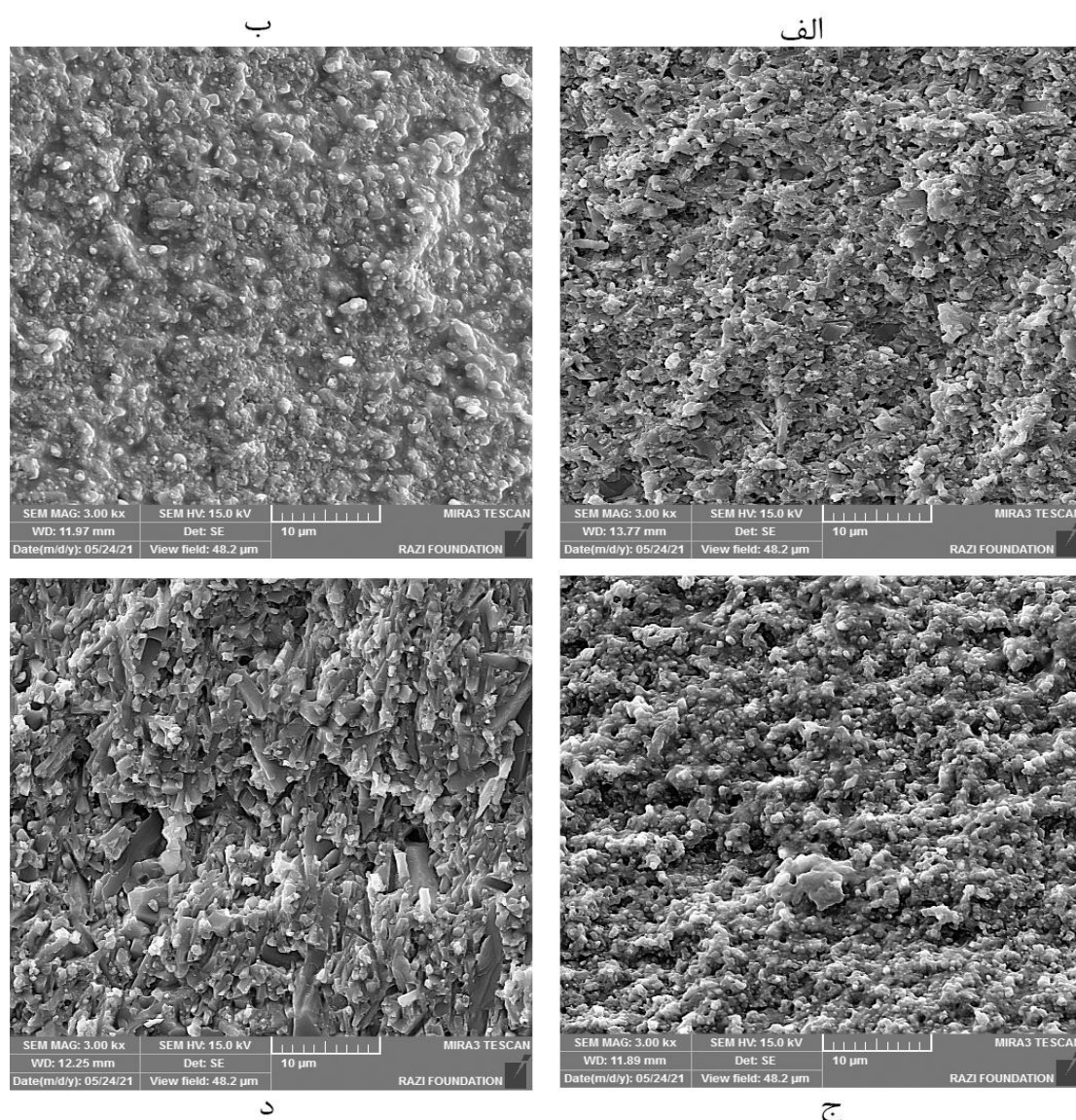


Figure 1. SEM images of fracture surface of sintered samples, a) 0 % by weight Eu_2O_3 , b) 3 % by weight Eu_2O_3 , c) 5 % by weight Eu_2O_3 , and d) 7 % by weight Eu_2O_3

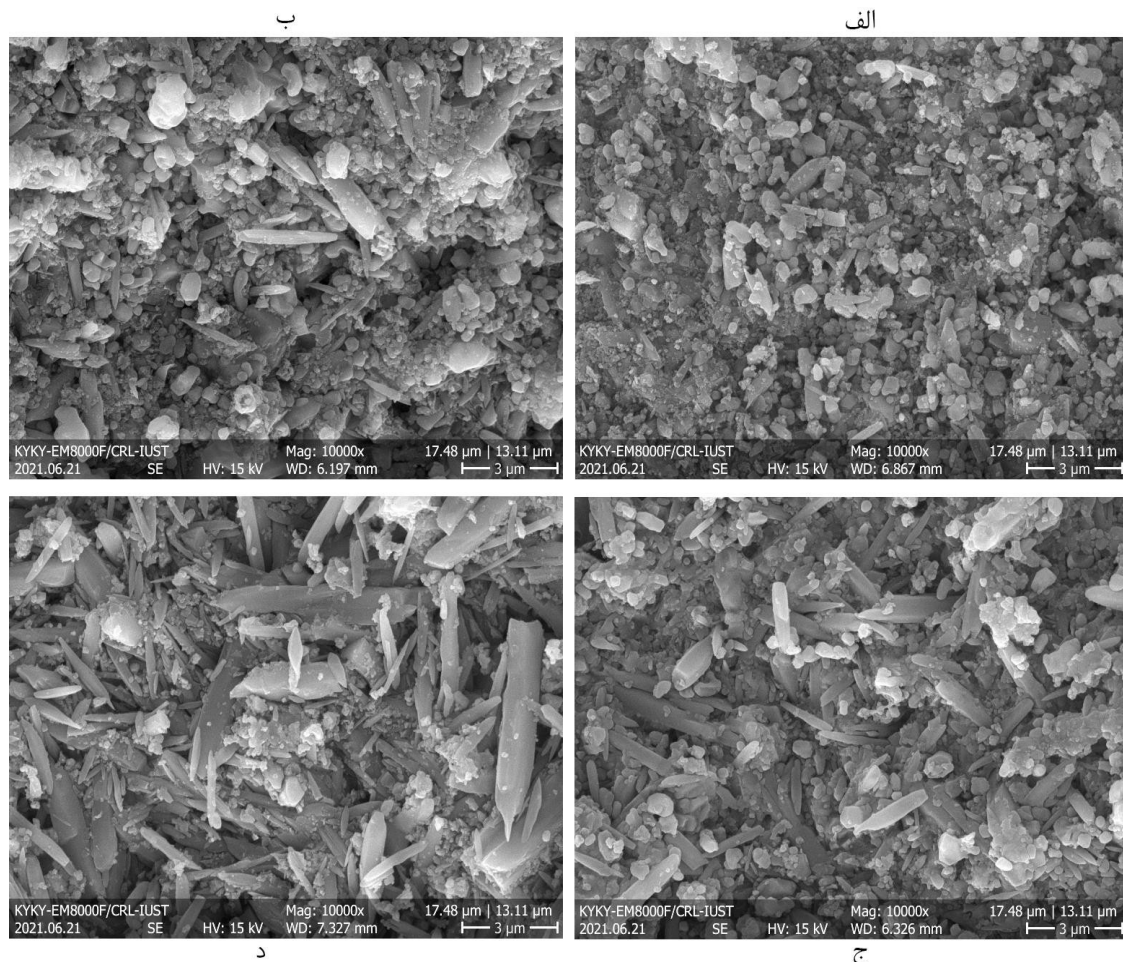


Figure 2. SEM images of the polished surface of sintered samples, a) 0 wt % Eu_2O_3 , b) 3 wt % Eu_2O_3 , c) 5 wt % Eu_2O_3 and d) 7 wt % Eu_2O_3 in one view

4. CONCLUSION

The particle size of the primary powder mixture, after 12 hours of the grinding process through the wet method, became smaller by 19 %. As a result of this particle size reduction, the particle size distribution of the primary powders would become more uniform. In order to obtain the desired mechanical and microstructural properties, appropriate compressibility behavior, and uniform distribution of the primary powder mixture, it is necessary to granulate the silicon nitride primary powder through an energetic milling process. According to the observations, the dimensions of the samples before the cold isostatic pressing process had an average diameter of 24 mm while after the cold isostatic pressing process, they had an average diameter of 21.2 mm. It can be concluded that after cold isostatic pressing in the diameter direction, all the samples experienced an average size reduction of 11.7 %, indicating that in the first stage (uniaxial press), the powders were compressed only in the direction of pressure (thickness direction) while they were compressed in all directions, especially in the diameter direction, in the second stage (cold isostatic press). The results revealed a 14.67 % increase in the relative density that corresponded to a 12 % size reduction in the diameter direction. The high amount of silicon nitride beta phase in the 7 % Eu_2O_3 confirmed the presence of sufficient amount of the liquid phase during the sintering process, progress of the dissolution, penetration, and

precipitation mechanisms, and finally increase in the rate of alpha to beta phase transformation. The highest hardness value of 21.61 GPa was obtained for the 5 % Eu_2O_3 sample, indicating high condensation, progress of dissolution-permeation mechanism, and precipitation of the nitride compounds in sintering as well as high amount of alpha phase. The values of the fracture toughness (varying in the range of 4.9-6.1 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$) of the samples were affected by the growth of the rod-shaped grains of beta silicon nitride and high length/width ratio of the grains.

5. ACKNOWLEDGEMENT

This research was carried out in the form of a master's thesis in collaboration with Imam Hossein University (AS) in the Materials and Energy Research Center. We are very grateful for Mr. Kabiri's cooperation in carrying out SPS.

REFERENCES

1. Klemm, H., "Silicon nitride for high-temperature applications", *Journal of the American Ceramic Society*, Vol. 93, No. 6, (2010), 1501-1522. <https://doi.org/10.1111/j.1551-2916.2010.03839.x>
2. Riley, F. L., "Silicon nitride and related materials", *Journal of the American Ceramic Society*, Vol. 83, No. 2, (2004), 245-265. <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.2000.tb01182.x>
3. Zou, C., Zhang, C., Li, B., Wang, S., Cao, F., "Microstructure and properties of porous silicon nitride ceramics prepared by gel-casting and gas pressure sintering", *Materials & Design*, Vol. 44, (2013), 114-118. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2012.07.056>

4. Greskovich, C., Prochazka, S., "Stability of Si_3N_4 and liquid phase(s) during sintering", *Journal of the American Ceramic Society*, Vol. 64, No. 7, (1981), C-96-C-97. <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1981.tb09885.x>
5. Greskovich, C., Prochazka, S., "Dense and near-net-shape fabrication of Si_3N_4 ceramics", *Materials Science and Engineering: A*, Vol. 500, No. 1-2, (2009), 130-149. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2008.09.015>
6. Manavizadeh, N., Khodayari, A., Asle Soleimani, E., "Deposition and determination of the properties of silicon nitride films in argon and nitrogen atmospheres", *Journal of Advanced Materials and Technologies (JAMT)*, Vol. 3, (2008), 175-182. <https://doi.org/10.30501/JAMT.2010.70135>
7. Miyakawa, N., Sato, H., Maeno, H., Takahashi, H., "Characteristics of reaction-bonded porous silicon nitride honeycomb for DPF substrate", *JSAE Review*, Vol. 24, No. 3, (2003), 269-276. [https://doi.org/10.1016/S0389-4304\(03\)00050-X](https://doi.org/10.1016/S0389-4304(03)00050-X)
8. Miyakawa, N., Sato, H., Maeno, H., Takahashi, H., "Microstructure and mechanical properties of silicon nitride ceramics with controlled porosity", *Journal of the American Ceramic Society*, Vol. 85, No. 6, (2002), 1512-1516. <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.2002.tb00305.x>
9. Jeong, K., Tatami, J., Iijima, M., Nishimura, T., "Spark plasma sintering of silicon nitride using nanocomposite particles", *Advanced Powder Technology*, Vol. 28, No. 1, (2017), 37-42. <https://doi.org/10.1016/j.apt.2016.06.027>



مقاله کامل پژوهشی

بررسی تراکم، فشرده‌سازی و خواص مکانیکی کامپوزیت‌های سرامیکی برپایه نیتريد سيليسيم

امیرحسین کوچکی فروشانی^۱، آیدا فایقی نیا^{۲*}، سید علی طیبی فرد^۳، علی صداقت آهنگری حسین‌زاده^۴، سید سلمان سیدافقهی^۵

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

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

^۳ دانشیار، پژوهشکده نیمه‌هادی‌ها، پژوهشگاه مواد و انرژی، کرج، ایران

^۴ استادیار، پژوهشکده سرامیک، پژوهشگاه مواد و انرژی، کرج، ایران

^۵ دانشیار، مرکز مواد پیشرفته و نانوفناوری دانشکده و پژوهشکده فنی و مهندسی، دانشگاه جامع امام حسین (ع)، تهران، ایران

تاریخچه مقاله:

ثبت اولیه: ۱۴۰۰/۰۹/۰۲

دریافت نسخه اصلاح‌شده: ۱۴۰۰/۱۰/۲۱

پذیرش علمی: ۱۴۰۰/۱۱/۱۱

کلیدواژه‌ها:

نیتريد سيليسيم،

اکسید یوروپیوم،

تف‌جوشی پلاسمای جرقه‌ای،

خواص مکانیکی

چکیده در پژوهش حاضر، تراکم، فشرده‌سازی و خواص مکانیکی کامپوزیت $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-SiO}_2$ با نسبت‌های مختلف ۰، ۳، ۵ و ۷ درصد وزنی Eu_2O_3 و ۱۰ درصد وزنی SiO_2 به‌منزله افزودنی مطالعه و بررسی شدند. تولید سرامیک‌های کامپوزیتی در این پژوهش، ابتدا با آماده‌سازی پودر با استفاده از مخلوط‌سازی و آسیاکاری به‌مدت ۱۲ ساعت، سپس شکل‌دهی با روش پرسکاری سرد و روش پرس ایزواستاتیک سرد و در نهایت تف‌جوشی به‌وسیله فرایند تف‌جوشی پلاسمای جرقه‌ای انجام شد. نمونه‌ها در دمای ۱۷۵۰ درجه سلسیوس، به‌مدت ۱۵ دقیقه با سرعت حرارت‌دهی 100°C/min و اعمال فشار ۴۰ MPa در دمای بیشینه تحت اتمسفر خلأ تف‌جوشی شدند. بعد از فرایند آسیاکاری، اندازه ذرات مخلوط پودر اولیه در حدود ۱۹ درصد کوچک‌تر شده است. نتایج نشان می‌دهند، بعد از فرایند پرس ایزواستاتیک سرد، چگالی نسبی نمونه‌ها ۱۴/۶۷ درصد افزایش یافته است. مقدار بالای فاز بتای نیتريد سيليسيم در نمونه ۷ درصد Eu_2O_3 نشان‌دهنده کافی بودن میزان فاز مایع در حین فرایند تف‌جوشی و پیشرفت سازوکار انحلال، نفوذ و رسوب و در نهایت افزایش سرعت استحاله فازی آلفا به بتاست. بیشترین مقدار سختی ۲۱/۶۱ GPa در نمونه ۵ درصد Eu_2O_3 مشاهده شد که چگالش بالا، پیشرفت سازوکار انحلال، نفوذ و رسوب ترکیبات نیتريدی در تف‌جوشی را نشان می‌دهد. نمونه ۷ درصد Eu_2O_3 به‌دلیل وجود فاز شیشه‌ای با مقادیر بالا، مقدار چقرمگی شکست $6.1 \text{ MPa.m}^{1/2}$ را در مقایسه با سایر نمونه‌ها از خود نشان داد.



<https://doi.org/10.30501/jamt.2022.316127.1198> URL: https://www.jamt.ir/article_144099.html

۱- مقدمه

مقاومت دمایی بالا، مقاومت بالا به اکسایش، مقاومت به سایش و مقادیری خاص برای این ویژگی‌ها در دماهای بالا، سرعت‌های بالا و محیط‌های کاری با خوردندگی بالا را دارد. علاوه بر این، نیتريد سيليسيم خواص عالی دیگری همچون مقاومت به شوک حرارتی و نیز قابلیت عبور امواج الکترومغناطیسی در فرکانس‌های بالا را دارد. این ویژگی‌ها باعث شده در سیستم‌های الکترونیکی فضایی، دریچه‌های شفاف در برابر امواج

نیتريد سيليسيم^۱ (Si_3N_4) ماده سرامیکی چندکاره‌ای است که در سال‌های گذشته کاربردهای گوناگونی داشته است که می‌توان به کاربرد آن در اجزای موتور، فضاپیماها، ابزارهای برش، سیستم‌های الکترونیکی دما بالا و پوشش‌های ضدبازتاب در سلول‌های خورشیدی بس‌کریستال اشاره کرد [۱-۶]. همچنین، نیتريد سيليسيم، خواصی چون استحکام بالا، مدول بالا،

^۱ Silicon Nitride

*عهده دار مکاتبات: آیدا فایقی نیا

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

پیام‌نگار: aida.faeghinia@gmail.com

الکترومغناطیسی در شرایط کاری دما بالا، گندهای راداری و به‌منزله فاز تقویت‌کننده خواص مکانیکی در زمینه‌های فلزی استفاده قرار شود [۲، ۹-۷].

اما نیتريد سيليسيم ثابت دی‌الکتریک نسبتاً بالایی دارد که مقدار آن برای $\alpha\text{-Si}_3\text{N}_4$ برابر با ۵/۶ و برای $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ برابر با ۷/۹ است [۱۰]. به‌منظور کاهش ثابت دی‌الکتریک (ϵ) سرامیک نیتريد سيليسيم، از آنجایی که هوا دارای ثابت دی‌الکتریک کوچک و نزدیک به یک است، یکی از راه‌های ممکن ساخت نمونه‌های سرامیکی نیتريد سيليسيم متخلخل است [۱۱]. روش دیگر وارد کردن فازی با ثابت دی‌الکتریک کمتر و ساخت کامپوزیت‌های پایه نیتريد سيليسيم است که می‌توان به کامپوزیت‌های $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-SiO}_2$ [۱۲ و ۱۳] و $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-BN}$ [۱۴ و ۱۵] اشاره کرد. به‌ویژه سرامیک SiO_2 ، به‌دلیل داشتن خواصی چون ثابت دی‌الکتریک پایین، تانژانت اتلاف پایین ($\tan \delta$)، دمای نرم‌شدگی بالا، ضریب انبساط حرارتی پایین^۱ (TEC)، کاربرد گسترده‌ای در ریدوم‌ها و دریچه‌های آنتن دارد [۱۶ و ۱۷].

خواص دمابالای سرامیک‌های برپایه نیتريد سيليسيم به‌شدت به افزودنی اکسیدی مورد استفاده برای تراکم‌پذیری وابسته است. با این حال، تراکم‌پذیری این سرامیک، به‌دلیل وجود پیوندهای کووالانت بین Si و N، با فرایند تف‌جوشی بدون فشار، نسبتاً دشوار است [۱۸]. استفاده از افزودنی‌های اکسید نادر خاکی، به‌منظور تهیه فاز مذاب حین فرایند تف‌جوشی، برای دستیابی به نیتريد سيليسيم با تراکم بالا مورد نیاز است [۱۹ و ۲۰]. بیشتر پژوهش‌های اخیر کاربرد Y_2O_3 ، La_2O_3 و Lu_2O_3 را بررسی کرده‌اند که این افزودنی‌ها با Al_2O_3 و MgO و دیگر ترکیبات به عنوان افزودنی‌های کامپوزیتی مخلوط شده‌اند [۲۱-۲۴]. علاوه بر این، مطالعات متفاوتی جنبه‌های مختلف فرایند را بررسی کرده‌اند که برای مثال می‌توان به فرایند تف‌جوشی و مقدار افزودنی مورد استفاده اشاره کرد. نتایج مختلفی در خصوص تأثیر اکسیدهای نادر خاکی در ریزساختار، خواص مکانیکی، هدایت حرارتی و خواص دی‌الکتریک سرامیک‌های نیتريد سيليسيم به‌دست آمده است. برای مثال، در پژوهش هان^۲ و همکارانش [۲۵]، سختی و چقرمگی شکست

سرامیک‌های نیتريد سيليسيم همراه با افزودنی Al_2O_3 و Y_2O_3 تهیه‌شده از فرایند پرس‌کاری داغ به‌ترتیب ۱۶/۰۴ GPa و $12/8 \text{ MPa.m}^{1/2}$ گزارش شد. در پژوهشی دیگر، انیل کومارا^۳ و همکارانش [۲۶] اثر افزودنی‌های تف‌جوشی نانوسایز MgO ، Al_2O_3 ، Y_2O_3 و La_2O_3 در ریزساختار و خواص مکانیکی سرامیک نیتريد سيليسيم را بررسی کردند. سرامیک‌های نیتريد سيليسيم تهیه‌شده با افزودنی نانوسایز ($4\text{MgO-4Al}_2\text{O}_3$) بالاترین چقرمگی شکست $8 \text{ MPa.m}^{1/2}$ و با سیستم افزودنی ($4\text{MgO-4Al}_2\text{O}_3\text{-5Y}_2\text{O}_3$) بالاترین میکروسختی ۲۱ GPa را از خود نشان دادند. معمولاً افزودنی‌ها در تف‌جوشی سرامیک‌های نیتريد سيليسيم و به‌منظور تشکیل فاز مایع استفاده می‌شوند، فاز مایع از طریق واکنش شیمیایی بین افزودنی‌ها و SiO_2 موجود در سطح فازهای Si_3N_4 تشکیل می‌شود و می‌تواند به افزایش نفوذ اتم‌ها و کاهش دمای تف‌جوشی منجر شود.

با توجه به پژوهش‌های انجام‌شده سایر پژوهشگران [۲۷ و ۲۸]، سرامیک‌های نیتريد سيليسيم همراه با افزودنی اکسید یوروپیوم^۴ (Eu_2O_3) خواص مکانیکی و تراکم‌پذیری مطلوبی دارند. بنابراین، در این پژوهش، از این اکسید به‌منزله افزودنی در کامپوزیت $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-SiO}_2$ استفاده شد. از طرف دیگر، روش‌های مرسوم متعددی برای تهیه این نوع سرامیک‌ها با چگالی و خواص مکانیکی مطلوب وجود دارد. این روش‌ها شامل پرس ایزواستاتیک داغ^۵ (HIP)، پرسکاری داغ^۶ (HP) و تف‌جوشی تحت فشار (GPS) هستند. با توجه به نتایج پژوهش‌های انجام‌شده در زمینه تف‌جوشی سرامیک نیتريد سيليسيم و خواص مکانیکی و تراکم‌پذیری مطلوب قطعات پخته‌شده با فرایند تف‌جوشی پلاسما جرقه‌ای [۲۹ و ۳۰]، در مقایسه با نتایج سایر روش‌ها مانند تف‌جوشی بدون فشار [۳۱] و پرسکاری داغ [۳۲]، از روش تف‌جوشی پلاسما جرقه‌ای به عنوان فرایند تف‌جوشی استفاده شد. بررسی تراکم‌پذیری، فشردگی و خواص مکانیکی کامپوزیت $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-SiO}_2$ با نسبت‌های مختلف Eu_2O_3 به عنوان هدف اصلی و نوآوری این پژوهش در نظر گرفته شد. مقاله حاضر حاصل فعالیت پژوهشی اصیل (برای اولین بار) نویسنده یا نویسندگان است.

^۴ Europium Oxide

^۵ Hot Isostatic Press (HIP)

^۶ Hot Pressing (HP)

^۱ Thermal Expansion Coefficient (TEC)

^۲ Han

^۳ Anil Kumar

۲- روش تحقیق

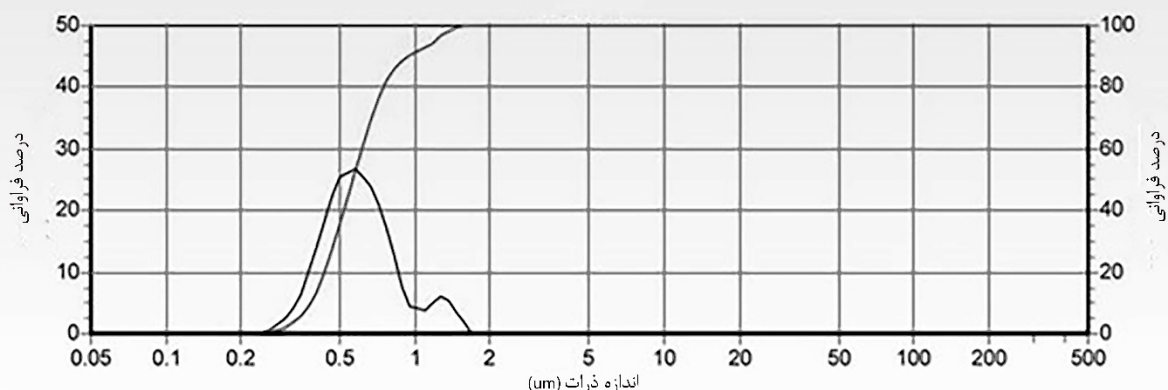
۲-۱- مواد و روش‌های آزمایش

نتایج مربوط به توزیع اندازه ذرات و آنالیز فازی پودر

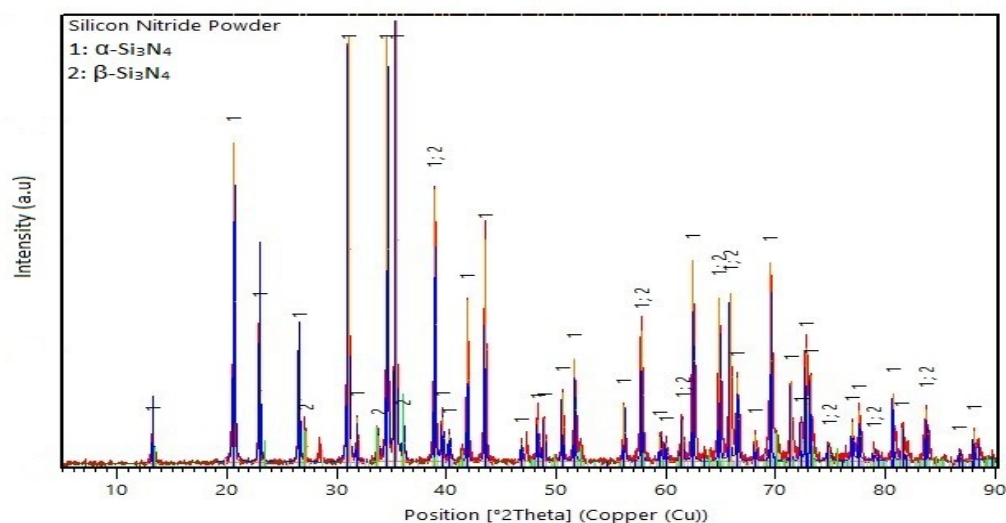
نیتريد سيليسيم برای ساخت نمونه‌های کامپوزیت پایه نیتريد

سيليسيم در شکل ۱ و شکل ۲ گزارش شده‌اند.

D(4,3)	0.62	μm	D 50	0.56	μm	D(3,2)	0.54	μm	S.S.A	11.03	sq.m/c.c.
D 3	0.31	μm	D 10	0.38	μm	D 90	0.95	μm	D 97	1.30	μm



شکل ۱. توزیع اندازه ذرات در پودر اولیه نیتريد سيليسيم



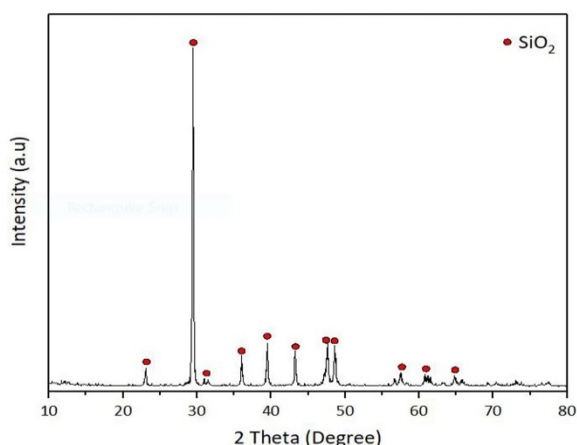
شکل ۲. الگوی پراش پودر نیتريد سيليسيم خریداری شده

با استفاده از آزمون الگوی پراش پرتو ایکس از پودر نیتريد سيليسيم خریداری شده و استفاده از رابطه زیر، که به رابطه گازارا و مسیر [۳۳] معروف است، ترکیب پودر خریداری شده حاوی ۹۵ درصد فاز آلفا و ۵ درصد فاز بتاست، و از آنجایی که فاز آلفا قابلیت تفجوشی بهتری از حیث شرایط ترمودینامیکی و میزان حلالیت بالا برای پیشرفت سازوکار انحلال - نفوذ و رسوب گذاری دارد، پودر خریداری شده، از نظر فازی، برای ساخت نمونه‌های سرامیکی مطلوب است. در شکل

در جدول ۱ نتایج مربوط به خلوص پودر نیتريد سيليسيم خریداری شده که توسط آنالیز عنصری ICP اندازه گیری شده، ارائه شده است.

جدول ۱. عناصر ناخالصی موجود در پودر نیتريد سيليسيم خریداری شده

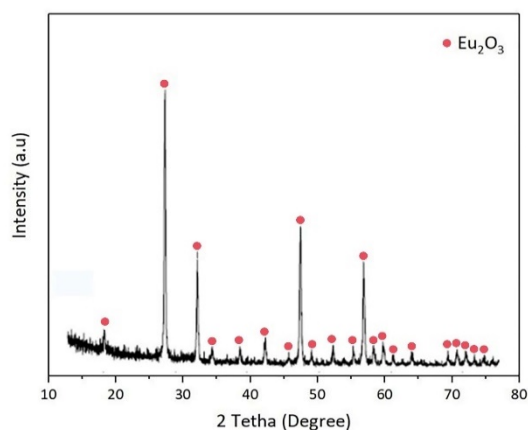
عناصر ناخالصی	Al	Cl	K	Ca	Fe
درصد وزنی	۰/۱۵	۰/۰۷	۰/۰۴	۰/۰۱	۰/۱



شکل ۴. الگوی پراش پرتو ایکس پودر کوارتز

۳ و شکل ۴، الگوی پراش پرتو ایکس پودرهای اکسید یوروپیوم و اکسید سیلیسیم ارائه شده است. فاز اکسید یوروپیوم و اکسید سیلیسیم در هر دو الگوی پراش در قله‌های اصلی با شدت بالا مشاهده می‌شود.

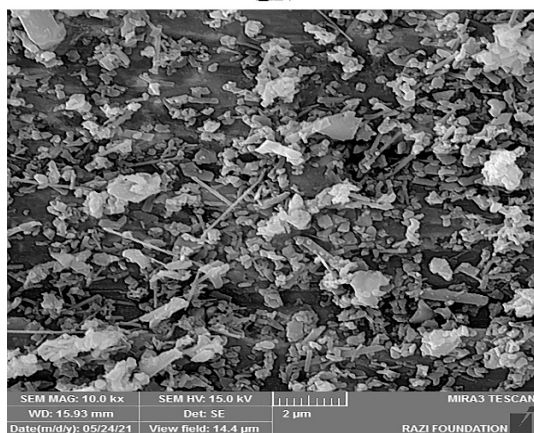
$$\beta - \text{Si}_3\text{N}_4 \text{ (wt\%)} = \frac{I_{\beta(101)} + I_{\beta(210)}}{I_{\beta(101)} + I_{\beta(210)} + I_{\alpha(210)} + I_{\alpha(102)}} \quad (1)$$



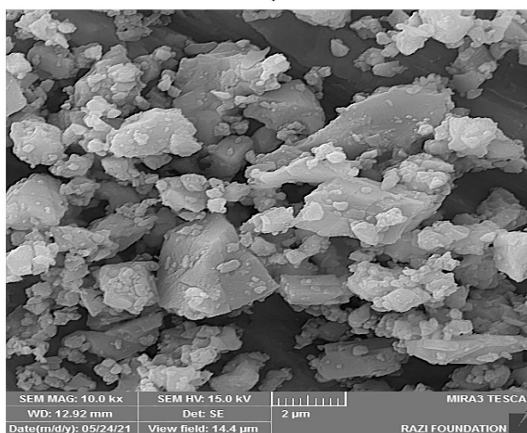
شکل ۳. الگوی پراش پرتو ایکس پودر Eu_2O_3

در شکل ۵، تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی^۱ (SEM) پودرهای اولیه ارائه شده است. با توجه به تصاویر ارائه شده در شکل ۵، پودر نیتريد سیلیسیم (شکل ۵ الف)) دارای ریخت‌شناسی سوزی و صفحه‌ای شکل، پودر اکسید سیلیسیم (شکل ۵ ب)) و اکسید یوروپیوم (شکل ۵ ج)) دارای ریخت‌شناسی بی‌شکل‌اند.

الف



ب



ج



شکل ۵. تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی پودرهای اولیه (الف) نیتريد سیلیسیم، (ب) اکسید سیلیسیم (کوارتز) و (ج) اکسید یوروپیوم

^۱ Scanning Electron Microscope (SEM)

مواد اولیه استفاده شده در این پژوهش به همراه سایر مشخصات آن ها در جدول ۲ ارائه شده اند.

در مسیر ساخت نمونه کامپوزیت سرامیکی، ابتدا پودر Si_3N_4 و SiO_2 با کمک تفجوش Eu_2O_3 با نسبت های وزنی مختلف، مطابق جدول ۳، توزین و در داخل اتانول ریخته شد. در مرحله دوم، به منظور آسیاکاری و مخلوط سازی مواد

اولیه، از دستگاه آسیاکاری مکانیکی پرانرژی سیاره ای استفاده شد. مخلوط مواد اولیه و اتانول همراه با گلوله های نیتريد سیلیسیم داخل ظرف تفلونی ضدسایش ریخته و آسیاکاری به مدت ۲۴ ساعت انجام شد. مشخصات و مقادیر مواد اولیه و فاکتورهای اصلی برای آسیاکاری مکانیکی در جدول ۴ ارائه شده اند.

جدول ۲. مشخصات مواد اولیه مورد استفاده در پژوهش حاضر

ماده	سایز ذرات (μm)	خلوص (%)	نماد شیمیایی
نیتريد سیلیسیم	۰/۵	۹۸ <	Si_3N_4
اکسید سیلیسیم	۴ >	۹۸ <	SiO_2
اکسید یوروپیم	۴ >	۹۸ <	Eu_2O_3
اتانول	-	۹۹/۷	$\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$
پلی وینیل الکل	-	۹۹	PVA

جدول ۳. ترکیب شیمیایی نمونه های کامپوزیتی نیتريد سیلیسیم

بر حسب درصد وزنی			کد نمونه/ترکیب
SiO_2	Eu_2O_3	Si_3N_4	
۱۰	۰	۹۰	% ۰ Eu_2O_3
۱۰	۳	۸۷	% ۳ Eu_2O_3
۱۰	۵	۸۵	% ۵ Eu_2O_3
۱۰	۷	۸۳	% ۷ Eu_2O_3

جدول ۴. مشخصات و مقادیر مواد اولیه و فاکتورهای اصلی برای آسیاکاری مکانیکی

نسبت پودر، گلوله و اتانول	زمان آسیا (h)	محیط آسیا	نسبت گلوله بزرگ به کوچک	اندازه گلوله ها (mm)	جنس گلوله
۱:۴:۸	۱۲	اتانول ۹۹/۸	۴	۱۰ و ۵	نیتريد سیلیسیم خلوص بالا

بعد از اتمام فرایند اختلاط دوغاب فوق به داخل بشر ریخته شد و در دمای ۸۰ درجه سلسیوس به مدت ۲۴ ساعت خشک شد تا تمامی اتانول موجود در پودر تبخیر شود. بعد از عملیات خشک کردن، پودر فوق در هاون سرامیکی خرد و از الک با مش ۲۰۰ عبور داده شد.

پودر به دست آمده از مرحله قبل، قبل از پرس شدن برای جریان پذیری بهتر در قالب و توزیع یکنواخت مواد اولیه، با

استفاده از روش گریز از مرکز گرانوله شد. مرحله بعد، برای پرس تک محوره، از قالب فولادی با قطر ۲۵ میلی متر استفاده شد. فرایند پرس تک محوره با فشار ۳۰ MPa و زمان اعمال فشار بیشینه ۵ s انجام شد. نمونه های دیسکی شکل دهی شده دارای ابعادی با قطر ۲۵ میلی متر و ضخامت ۵ میلی مترند. در مرحله بعد، نمونه های شکل دهی شده توسط پرس تک محوره، به منظور افزایش چگالی نسبی خام، تحت فرایند پرس ایزواستاتیک سرد

Kgf و d میانگین قطرهای مربع برحسب میلی‌متر است. همچنین، در این روش، برای اندازه‌گیری چقرمگی شکست نمونه‌ها از رابطه ۳ استفاده شد:

$$k_{IC} = 0.16 \left(\frac{C}{a} \right)^{-1.5} (Ha^{1/2}) \quad (3)$$

در این رابطه، KIC چقرمگی شکست برحسب MPa.m^{1/2}، H سختی ویکرز برحسب MPa، c میانگین طول ترک‌های ایجادشده در نوک اثر فرورونده ویکرز برحسب um هستند و a میانگین نصف طول قطر اثر فرورونده ویکرز برحسب um است.

در این پژوهش، از دستگاه میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی به‌منظور بررسی ریخت‌شناسی و چگونگی پراکندگی ذرات و همچنین بررسی ریزساختار قطعات تفجوشی‌شده استفاده شد. نمونه‌ها قبل از قرارگرفتن در زیر میکروسکوپ، به‌دلیل نارسا بودن، پوشش طلا روی آن‌ها اعمال شد. در این پژوهش، از میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی مدل "TESCAN mira3" با ولتاژ کاری 15 kV ساخت کشور چک استفاده شد.

۳- نتایج و بحث

۳-۱- فرایند آسیاکاری پودر

در شکل ۶ و شکل ۸ الف، به‌ترتیب، آنالیز توزیع اندازه ذرات و تصویر میکروسکوپ الکترونی روبشی مخلوط پودر اولیه قبل از آسیاکاری ارائه شده است. پودر نیتريد سیلیسیم اولیه قبل از آسیاکاری دارای توزیع اندازه ذرات باریک و میانگین قطر ذرات کوچک است. با توجه به شکل ۶، می‌توان گفت میانگین قطر اندازه ذرات مخلوط پودرهای اولیه ۰/۷۶۹ میکرومتر است. شکل ۷ و شکل ۸ ب، به‌ترتیب، آنالیز توزیع اندازه ذرات و تصویر میکروسکوپ الکترونی روبشی مخلوط پودر اولیه بعد از فرایند آسیاکاری به‌مدت ۱۲ ساعت را نشان می‌دهند. بعد از فرایند آسیاکاری، در دامنه توزیع اندازه ذرات تغییری حاصل نمی‌شود و میانگین قطر اندازه ذرات کاهش می‌یابد. همان‌طور که مشخص است، میانگین اندازه ذرات (D50) برابر با ۰/۶۲۴ میکرومتر است. با مقایسه آنالیز توزیع اندازه ذرات و تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی قبل و بعد فرایند آسیاکاری

قرار گرفتند. فرایند پرس ایزواستاتیک سرد با فشار ۲۵۰ MPa به‌مدت ۳۰ ثانیه انجام شد. همه نمونه‌ها قبل از انجام فرایند، برای جلوگیری از نفوذ روغن دستگاه پرس ایزواستاتیک سرد، توسط نایلون آب‌بندی شدند. بعد از آن، نمونه‌های خام پرس ایزواستاتیک شده با هدف حذف چسب اضافه شده در مرحله تولید پودر گرانوله، در دمای ۷۰۰ درجه سلسیوس به‌مدت ۲ ساعت در کوره الکتریکی کلسینه شدند.

پس از فرایند کلسیناسیون نوبت به فرایند تفجوشی نمونه‌ها رسید. همه نمونه‌ها داخل قالب و سنبه گرافیتی به قطر ۲۵ میلی‌متر در دمای ۱۷۵۰ درجه سلسیوس به‌مدت ۱۵ دقیقه به روش تفجوشی پلاسمای جرقه‌ای با سرعت حرارت‌دهی ۱۰۰ °C/min و اعمال فشار ۴۰ MPa در دمای بیشینه تفجوشی شدند.

۲-۲- آزمون‌های مشخصه‌یابی

میزان چگالی و تخلخل نمونه‌ها براساس استاندارد ASTM C 373 و با استفاده از روش ارشمیدس محاسبه شد. برای اندازه‌گیری چگالی نظریه نمونه‌های کامپوزیتی، از دستگاه پیکنومتر گازی مدل "Accupyc 1330" ساخت شرکت Micromeritics آمریکا استفاده شد. به‌منظور اندازه‌گیری میانگین اندازه ذرات پودرهای اولیه، از دستگاه اندازه‌گیری اندازه ذرات پودر مدل "Fritsch Particle Sizer analysette 22" ساخت کشور آلمان استفاده شد. آزمایش سختی‌سنجی با استفاده از دستگاه سختی‌سنجی مدل "یونیورسال UVI" ساخت شرکت KOOPA ایران، به‌روش ویکرز، انجام شد. برای اندازه‌گیری سختی، ابتدا نمونه‌های برش‌داده‌شده مانت سرد شدند. سطح نمونه‌های مانت‌شده سنباده‌زنی و پولیش شدند و سپس سختی‌سنجی انجام شد. برای هر نمونه، حداقل ۳ بار، مناطقی با فاصله معین از محل‌های قبلی اندازه‌گیری شدند و میانگین اعداد به‌دست‌آمده گزارش شد.

در این روش، با استفاده از فرمول ۲، مقدار سختی نمونه‌ها محاسبه شد:

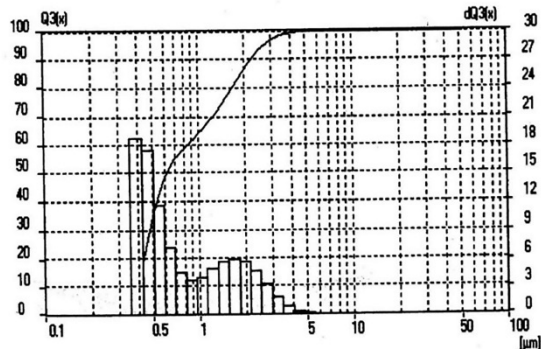
$$H_v = 1.854 \frac{F}{d^2} \quad (2)$$

در این رابطه، Hv سختی ویکرز، F مقدار بار برحسب

خواص مکانیکی سرامیک نیتريد سيليسيم افزايش يافته است و سرامیک‌هایی که به وسیله پودرهای ریز تهیه می‌شوند دارای تخلخل کمتر و دانه‌بندی یکنواخت‌تری هستند. همچنین، برای سرامیک‌های نیتريد سيليسيم، فرایند آسیاکاری سیاره‌ای پرانرژی، با هدف تولید مخلوط پودر با درصد یکنواختی بالا و ریزدانه‌گی بیشتر و در نتیجه دستیابی به ریزساختاری همگن و خواص مکانیکی مطلوب، فرایند مناسبی است.

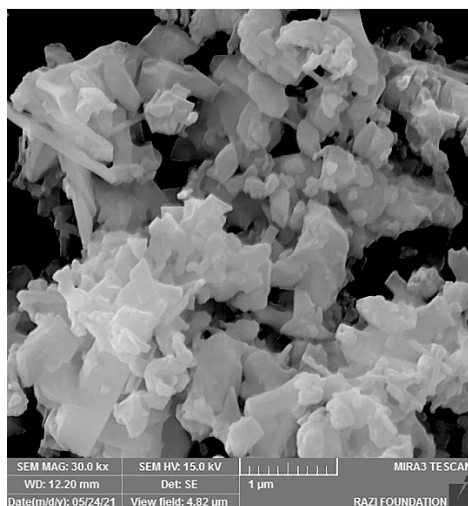
Interpolation Values... C:\Program Files\22_32\Fritsch\HIMNT 1.FPS									
63.8 %	<=	1.000 µm	99.9 %	<=	5.000 µm	100.0 %	<=	10.000 µm	
100.0 %	<=	30.000 µm	100.0 %	<=	50.000 µm	***** %	<=	100.000 µm	
***** %	<=	150.000 µm	***** %	<=	200.000 µm	***** %	<=	250.000 µm	
***** %	<=	300.000 µm	***** %	<=	350.000 µm	***** %	<=	400.000 µm	
***** %	<=	450.000 µm	***** %	<=	500.000 µm	***** %	<=	600.000 µm	
***** %	<=	700.000 µm	***** %	<=	800.000 µm	***** %	<=	900.000 µm	

Interpolation Values... C:\Program Files\22_32\Fritsch\10_90.FPV									
10.0 %	<=	0.434 µm	20.0 %	<=	0.456 µm	30.0 %	<=	0.510 µm	
40.0 %	<=	0.533 µm	50.0 %	<=	0.624 µm	65.0 %	<=	1.171 µm	
70.0 %	<=	1.247 µm	80.0 %	<=	1.664 µm	90.0 %	<=	1.934 µm	
100.0 %	<=	34.025 µm							



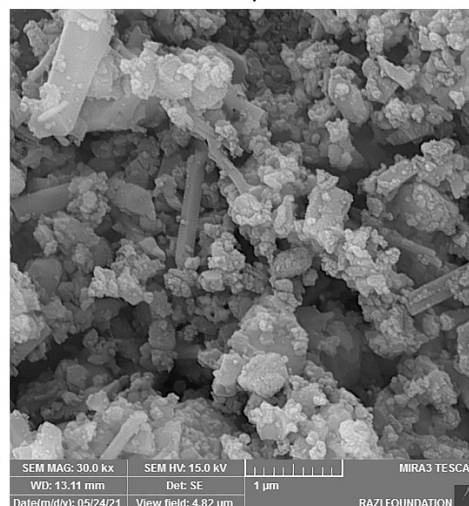
شکل ۷. آنالیز اندازه ذرات مخلوط پودر اولیه بعد از فرایند آسیاکاری به مدت ۱۲ ساعت

الف



شکل ۸. تصاویر SEM (الف) قبل از فرایند آسیاکاری و (ب) بعد از فرایند آسیاکاری

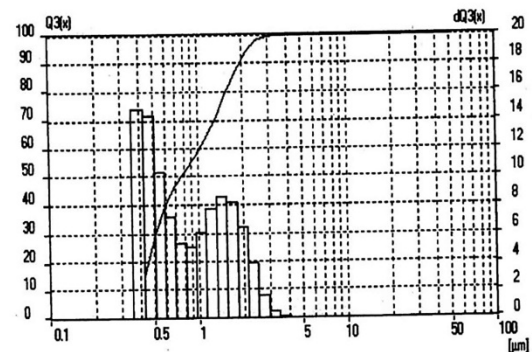
ب



مخلوط پودر اولیه، می‌توان ادعا کرد که اندازه ذرات، بعد از ۱۲ ساعت فرایند آسیاکاری به روش تر، حدود ۰/۱۴۵ میکرومتر (در حدود ۱۹ درصد) کوچک‌تر می‌شوند و از نظر ریخت‌شناسی شاهد کوچک‌تر شدن اندازه ذرات و یکنواخت‌تر شدن توزیع اندازه ذرات پودرهای اولیه هستیم.

Interpolation Values... C:\Program Files\22_32\Fritsch\HIMNT 1.FPS									
58.8 %	<=	1.000 µm	100.0 %	<=	5.000 µm	100.0 %	<=	10.000 µm	
100.0 %	<=	30.000 µm	100.0 %	<=	50.000 µm	***** %	<=	100.000 µm	
***** %	<=	150.000 µm	***** %	<=	200.000 µm	***** %	<=	250.000 µm	
***** %	<=	300.000 µm	***** %	<=	350.000 µm	***** %	<=	400.000 µm	
***** %	<=	450.000 µm	***** %	<=	500.000 µm	***** %	<=	600.000 µm	
***** %	<=	700.000 µm	***** %	<=	800.000 µm	***** %	<=	900.000 µm	

Interpolation Values... C:\Program Files\22_32\Fritsch\10_90.FPV									
10.0 %	<=	0.434 µm	20.0 %	<=	0.456 µm	30.0 %	<=	0.510 µm	
40.0 %	<=	0.533 µm	50.0 %	<=	0.624 µm	65.0 %	<=	1.171 µm	
70.0 %	<=	1.247 µm	80.0 %	<=	1.664 µm	90.0 %	<=	1.934 µm	
100.0 %	<=	34.025 µm							



شکل ۶. آنالیز اندازه ذرات مخلوط پودر اولیه قبل از آسیاکاری

نتایج پژوهشگران [۳۴-۳۶] در این زمینه نشان می‌دهد،

با کاهش اندازه ذرات پودر نیتريد سيليسيم، چگالی نسبی و

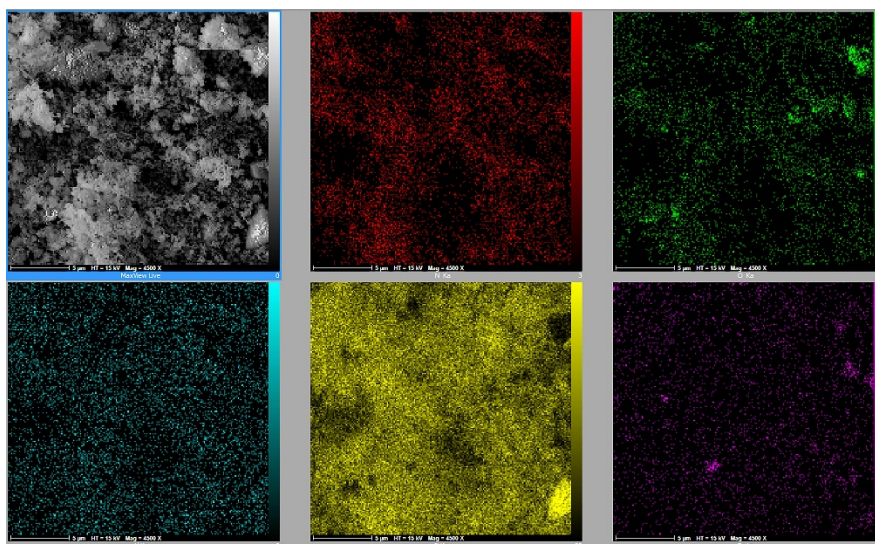
را نشان می‌دهند، در شکل ۱۰، نسبتاً تیرگی کمتری دارند که نشان‌دهنده حضور این عنصر (که با رنگ صورتی نشان داده شده) است. با توجه به شکل ۷، می‌توان گفت که فرایند

در شکل ۹ و شکل ۱۰، تصویر SEM از نقشه توزیع

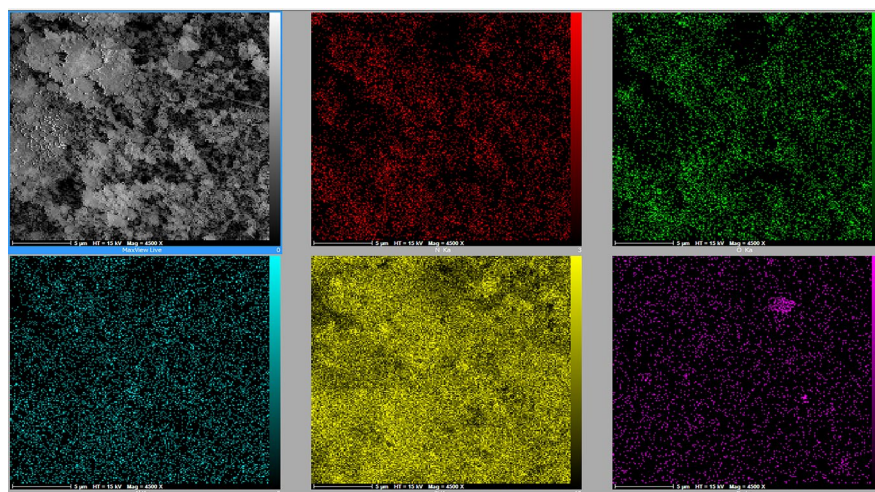
عناصر (MAP) مخلوط پودر اولیه قبل و بعد از فرایند آسیاکاری ارائه شده است. نواحی نسبتاً تیره در شکل ۹، که نبود یوروپیم

مخلوط پودر اولیه توسط پژوهش‌های ذکرشده و پژوهش حاضر، می‌توان گفت، برای حصول خواص مکانیکی مطلوب ریزساختاری همگن، رفتار تراکم‌پذیری مناسب و توزیع یکنواخت مخلوط پودر اولیه به ریزدانه‌شدن پودر اولیه نیتريد سيليسيم به‌وسیله فرایند آسیاکاری پراثری نیاز خواهیم داشت.

آسیاکاری از طریق سازوکارهایی مانند خردایش و بازتوزیع مخلوط پودر اولیه به حضور این عنصر در نقاط بیشتری منجر شده است و روشن‌تر شدن زمینه تیره در شکل ۱۰ نشان از توزیع ذرات حاوی $1\text{ }\mu\text{m}$ عنصر یوروپیوم دارد. با توجه به نتایج به‌دست‌آمده در خصوص اندازه ذرات



شکل ۹. تصویر SEM از مخلوط پودر اولیه قبل از فرایند آسیاکاری



شکل ۱۰. تصویر MAP از مخلوط پودر اولیه بعد از فرایند آسیاکاری به مدت ۱۲ ساعت

۲-۳- چگالش و تراکم‌پذیری

۳-۲-۱- چگالی نمونه‌ها قبل از فرایند پخت

در جدول ۵، چگالی نسبی نمونه‌های خام، قبل و بعد از فرایند پرس ایزواستاتیک سرد، ارائه شده است. همان‌طور که مشخص است، چگالی نسبی نمونه‌های خام، بعد از فرایند پرس ایزواستاتیک سرد، به‌طور میانگین به میزان $14/67\%$ درصد افزایش یافته است. مزیت فرایند پرس ایزواستاتیک سرد بر پرس

تک‌محوره این است که در این روش، چون از همه جهات اعمال فشار وجود دارد، قطعه از تمام جهات یکسان تحت فشار قرار می‌گیرد و سبب دسترسی به قطعه‌ای با توزیع یکسان چگالی و خواص مکانیکی بهتر می‌شود. از این‌رو، از این روش برای دستیابی به قطعاتی با چگالی بالاتر (نزدیک به چگالی نظریه) استفاده می‌شود. با توجه به ابعاد نمونه‌ها قبل از انجام فرایند پرس ایزواستاتیک سرد با قطر متوسط 24 mm و ضخامت 5 mm

فرایند پرس ایزواستاتیک سرد، موجب دستیابی به چگالی 2 g/cm^3 و استفاده از این فرایند موجب افزایش مقدار چگالی تا حدود $2/97 \text{ g/cm}^3$ بعد از فرایند تفجوشی می‌شود. همچنین، جوانتینگ لو^۲ و همکارانش [۳۸] در پژوهش خود بیان کرده‌اند که چگالی نسبی و اندازه حفرات سرامیک‌های نیتريد سیلیسیم تفجوشی شده با افزایش فشار پرس ایزواستاتیک سرد به ترتیب افزایش و کاهش می‌یابد. با توجه به نتایج به دست آمده در خصوص فرایند پرس ایزواستاتیک سرد در این پژوهش و مقایسه آن با نتایج سایر پژوهشگران در این زمینه، می‌توان گفت که فرایند پرس ایزواستاتیک سرد موجب افزایش چگالی نسبی نمونه‌های خام، توزیع یکنواختی از حفرات و کاهش اندازه آن‌ها می‌شود و در نهایت به دستیابی به چگالی نسبی نزدیک به چگالی نظریه بعد از فرایند تفجوشی می‌انجامد.

میلی‌متر و بعد از فرایند پرس ایزواستاتیک سرد با قطر متوسط $21/2$ میلی‌متر و ضخامت $4/8$ میلی‌متر، می‌توان گفت همه نمونه‌ها، بعد از پرس ایزواستاتیک سرد در جهت قطر و ضخامت، به ترتیب به طور متوسط با کاهش اندازه $11/7$ درصد و $2/7$ درصد مواجه شدند که این امر نشان می‌دهد، در مرحله اول (پرس تک‌محوره)، پودرها فقط در جهت اعمال فشار (جهت ضخامت) فشرده شدند و در مرحله دوم (پرس ایزواستاتیک سرد)، در تمامی جهات و به ویژه در جهت قطر فشرده شدند. نتایج نشان می‌دهند که، از $14/67$ درصد افزایش درصد چگالی نسبی نمونه‌های خام، حدود 12 درصد آن سهم کاهش اندازه در جهت قطر و حدود $2/67$ درصد در جهت ضخامت است. بر این اساس، لوکیانووا^۱ و همکارانش [۳۷] در پژوهش خود نشان دادند که تفجوشی سرامیک نیتريد سیلیسیم، بدون استفاده از

جدول ۵. چگالی نسبی نمونه‌های خام قبل و بعد از فرایند پرس ایزواستاتیک سرد

نمونه	چگالی نظریه کامپوزیت (g/cm^3)	چگالی نسبی قبل از CIP (%)	چگالی نسبی بعد از CIP (%)
Eu_2O_3 ۰ %	۳/۳۲۹۵	$38/5 \pm 0/8$	$50/4 \pm 0/8$
Eu_2O_3 ۳ %	۳/۲۴۴۹	$39 \pm 0/9$	$53 \pm 1/1$
Eu_2O_3 ۵ %	۳/۳۲۹۵	$38/5 \pm 0/9$	$55 \pm 0/8$
Eu_2O_3 ۷ %	۳/۴۱۴	$38 \pm 0/8$	$54/3 \pm 0/8$

۳-۲-۲- چگالی نمونه‌های تفجوشی شده

همه‌ی نمونه‌های ساخته شده، پس از انجام پرس ایزواستاتیک سرد، دارای چگالی نسبی خام بالاتر از 50 درصد و استحکام خام کافی هستند. بنابراین، ترک و شکست در حین جابه‌جایی در آن‌ها مشاهده نمی‌شود. در جدول ۶، چگالی نسبی و تخلخل ظاهری نمونه‌ها بعد از فرایند تفجوشی ارائه شده است. با توجه به جدول ۶، نمونه ۵ درصد وزنی Eu_2O_3 و ۷ درصد وزنی Eu_2O_3 با داشتن چگالی نسبی 100 درصد و نمونه صفر درصد وزنی Eu_2O_3 با چگالی نسبی $94/01$ درصد چگالی نظریه، به ترتیب، بیشترین و کمترین درصد چگالی نسبی بعد از فرایند تفجوشی را داشتند. بیشترین درصد تخلخل ظاهری مربوط به نمونه صفر درصد وزنی Eu_2O_3 با $2/72$ درصد تخلخل ظاهری است. در شکل ۱۱، نمودار مقدار چگالی نسبی نمونه‌ها

بعد از فرایند تفجوشی و درصد تخلخل ظاهری آن‌ها نشان داده شده است. در طی فرایند چگال کردن نمونه‌های سرامیکی برپایه نیتريد سیلیسیم توسط عملیات تفجوشی در حضور فاز مایع، عمدتاً نیروی محرکه چگال کردن نمونه‌ها، چیدمان مجدد ذرات ناشی از جریان موینگی فاز مایع است. با مقایسه چگالی نسبی نمونه صفر درصد وزنی Eu_2O_3 با سایر نمونه‌ها، مشاهده می‌شود که غلظت اکسید یورپیوم در تشکیل فاز مایع مؤثر بوده و بر این اساس در نسبت چگالی واقعی به نظریه نمونه‌های کامپوزیتی نیتريد سیلیسیم ساخته شده نیز مؤثر بوده است. همان‌طور که کیتایاما^۳ و همکارانش [۳۹] نشان داده‌اند در فرایند تفجوشی، Re^{+3} (افزودنی‌های نادر خاکی برای مثال Y^{+3}) می‌تواند، با اتصال به سطح و کاهش انرژی سطحی دانه‌های نیتريد سیلیسیم، موجب بهبود سازوکار انحلال و رسوب شود و

³ Kitayama

¹ Lukianova

² Luo

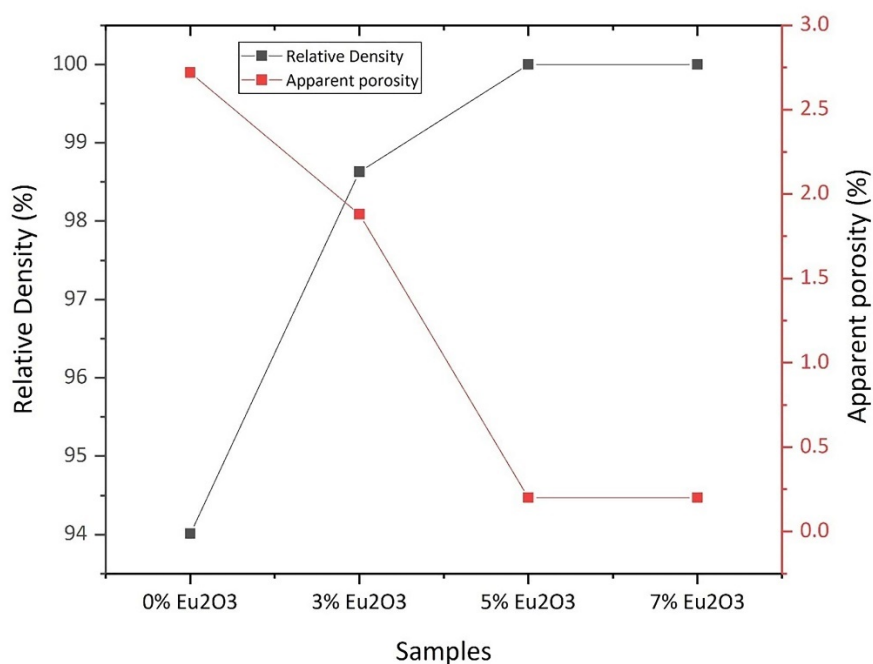
به‌همراه درصدهای بهینه‌ای از اکسیدهای مانند اکسید سیلیسیم، آلومینیوم، منیزیم می‌توانند باعث بهبود سازوکار انحلال، نفوذ و رسوب‌گذاری در تف‌جوشی در حضور فاز مایع سرامیک‌های نیتريد سیلیسیم شوند و درنهایت سرامیک نیتريد سیلیسیم چگال‌شده با چگالی واقعی نزدیک به چگالی نظریه حاصل شود.

بنابراین در متراکم‌سازی سرامیک نیتريد سیلیسیم بسیار تأثیرگذار باشد.

نتایج پژوهش حاضر و نتایج سایر پژوهشگران [۴۰ و ۴۱] تأیید می‌کنند که برای دستیابی به سرامیک نیتريد سیلیسیم با چگالی نسبی بالای ۹۸ درصد، استفاده از افزودنی‌های تف‌جوشی به میزان بهینه ضرورت دارد. افزودنی‌های نادر خاکی

جدول ۶. چگالی نسبی نمونه‌های تف‌جوشی‌شده

نمونه	چگالی بالک (g/cm ³)	تخلخل ظاهری (%)	چگالی نظریه کامپوزیت (g/cm ³)	چگالی نسبی بعد از SPS (%)
۰. % Eu ₂ O ₃	۲/۹۹۹	۲/۷۲	۳/۱۹	۹۴/۰۱ ± ۰/۵۱
۳. % Eu ₂ O ₃	۳/۰۴۹	۱/۸۸	۳/۰۹۱	۹۸/۶۳ ± ۰/۲۳
۵. % Eu ₂ O ₃	۳/۲۱۹	۰/۲	۳/۲۱۷	۱۰۰ ± ۰/۱۲
۷. % Eu ₂ O ₃	۳/۱۷۱	۰/۲	۳/۱۷۲	۱۰۰ ± ۰/۱



شکل ۱۱. نمودار مقدار چگالی و درصد تخلخل ظاهری نمونه‌های تف‌جوشی‌شده

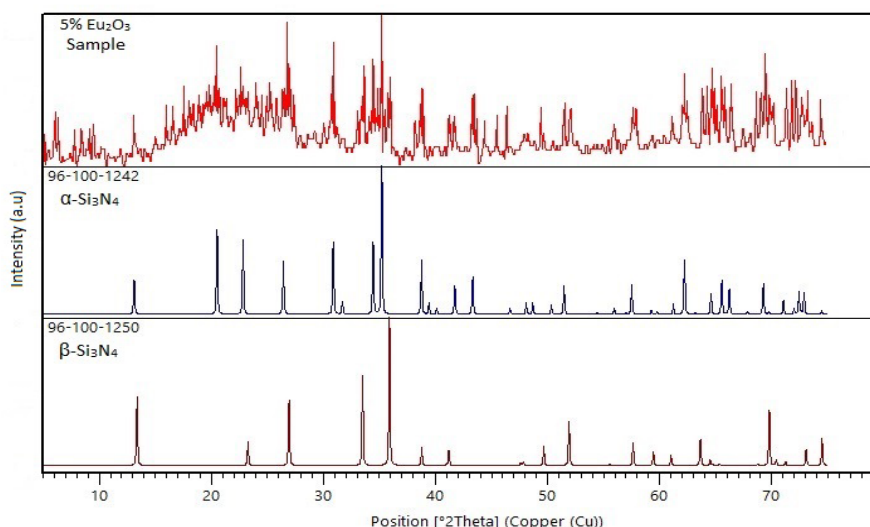
تف‌جوشی‌شده، همه عناصر موجود در پودر اولیه را به صورت‌های مختلف فازی نشان می‌دهند و این بیانگر بلورینه‌شدن عناصر در ساختارهای بلوری مختلف در طی فرایند پلاسما جرقه‌ای است. اما فازهای شیشه‌ای مربوط به سیستم دوتایی SiO₂-Eu₂O₃ یا سیستم سه‌تایی Si₃N₄-SiO₂-Eu₂O₃ با پراش پرتو ایکس قابل‌شناسایی نیستند. در دو الگوی پراش نمونه

۳-۳- شناسایی فازی

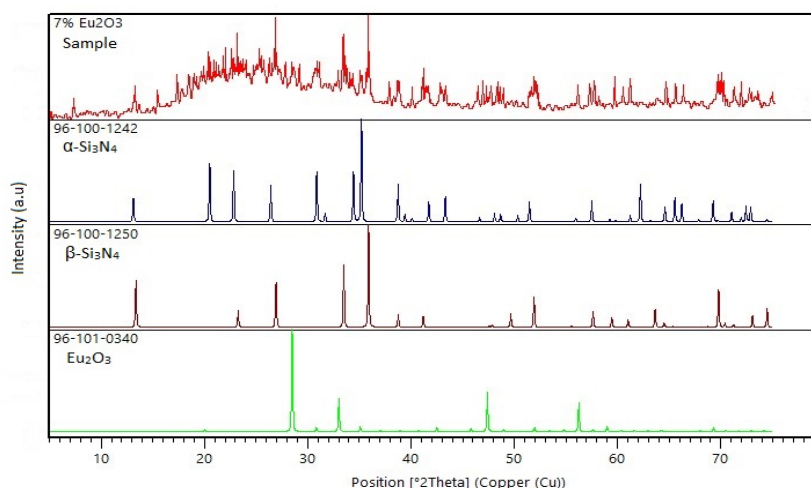
شناسایی فازهای ایجاد شده در نمونه‌های تف‌جوشی‌شده توسط پراش پرتو ایکس در زوایای ۵ تا ۸۰ درجه انجام شده است. در شکل ۱۲ و ۱۳، الگوی پراش پرتو ایکس نمونه‌های تف‌جوشی‌شده ۵ درصد وزنی Eu₂O₃ و ۷ درصد وزنی Eu₂O₃ ارائه شده است. الگوهای پراش حاصل از نمونه‌های گوناگون

فاز بتاست. مقدار بالای فاز بتا نیتريد سيليسيم در نمونه ۷ درصد وزنی Eu_2O_3 نشان‌دهنده کافی بودن میزان فاز مایع حین فرایند تفجوشی و پیشرفت سازوکار انحلال، نفوذ و رسوب (سازوکار SDP^۱: سازوکار محتمل در تفجوشی سرامیک‌های پایه نیتريد سيليسيم) و در نهایت افزایش سرعت استحاله فازی آلفا به بتاست.

۵ درصد وزنی Eu_2O_3 و ۷ درصد وزنی Eu_2O_3 فاز آلفا و بتا نیتريد سيليسيم شناسایی شد. اما در الگوی پراش پرتو ایکس نمونه ۷ درصد وزنی Eu_2O_3 قله‌هایی که بیانگر حضور فاز باقی‌مانده Eu_2O_3 است دیده می‌شود. براساس آنالیز نیمه‌کمی تعیین درصد فازی، میزان فاز آلفا و بتا در نمونه ۵ درصد وزنی Eu_2O_3 برابر با ۶۷ درصد فاز آلفا و ۳۳ درصد فاز بتا و در نمونه ۷ درصد وزنی Eu_2O_3 برابر با ۶۵ درصد فاز آلفا و ۳۵ درصد



شکل ۱۲. الگوی پراش پرتو ایکس نمونه تفجوشی شده ۵ درصد وزنی Eu_2O_3



شکل ۱۳. الگوی پراش پرتو ایکس نمونه تفجوشی شده ۷ درصد وزنی Eu_2O_3

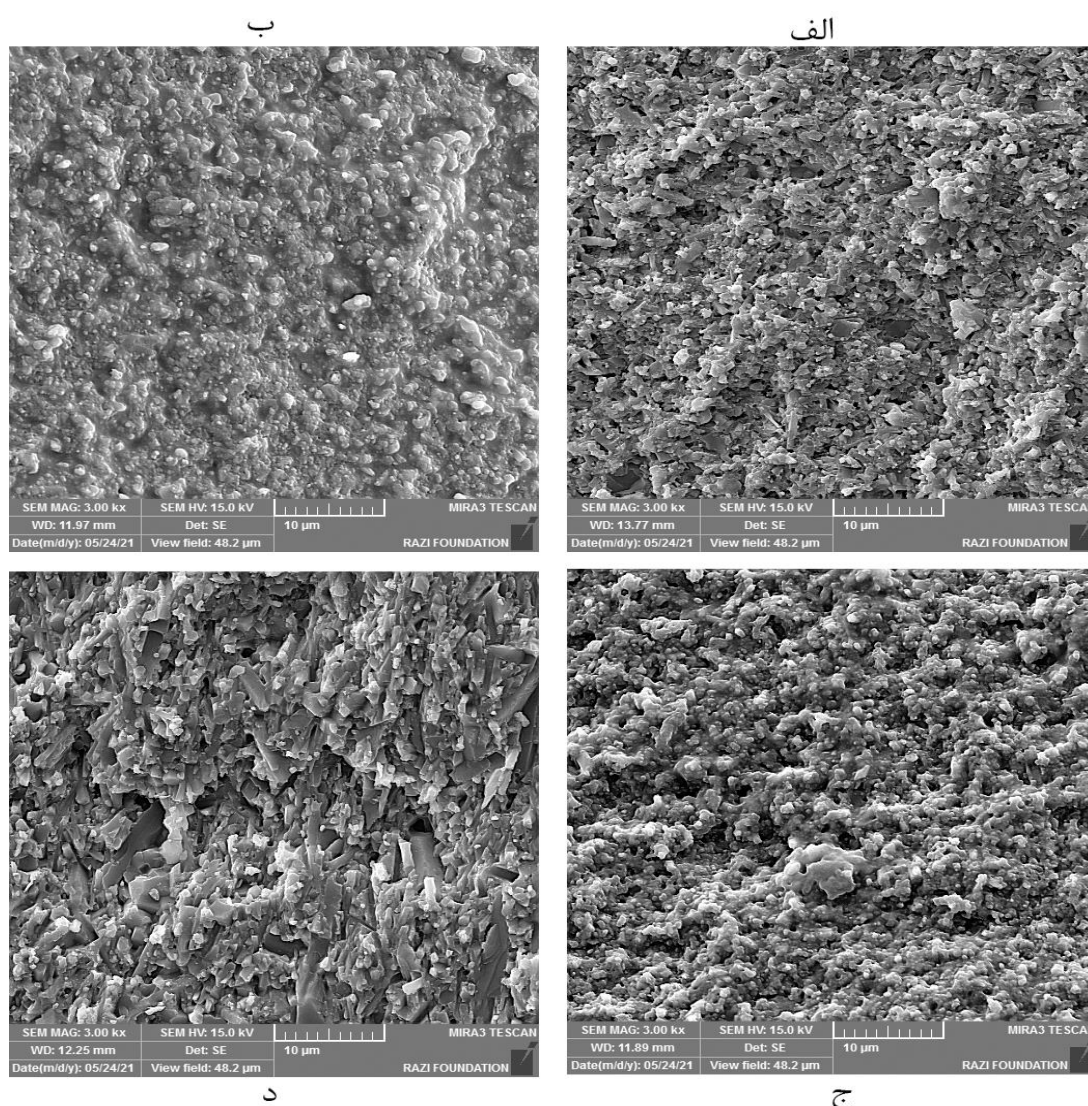
به‌شدت به نوع ریزساختار تحول‌یافته و ماهیت فازهای مرزانه‌ای تشکیل‌شده ضمن فرایند تفجوشی بستگی دارد،

۳-۴- ریزساختار
از آنجا که خواص مکانیکی سرامیک‌های مهندسی

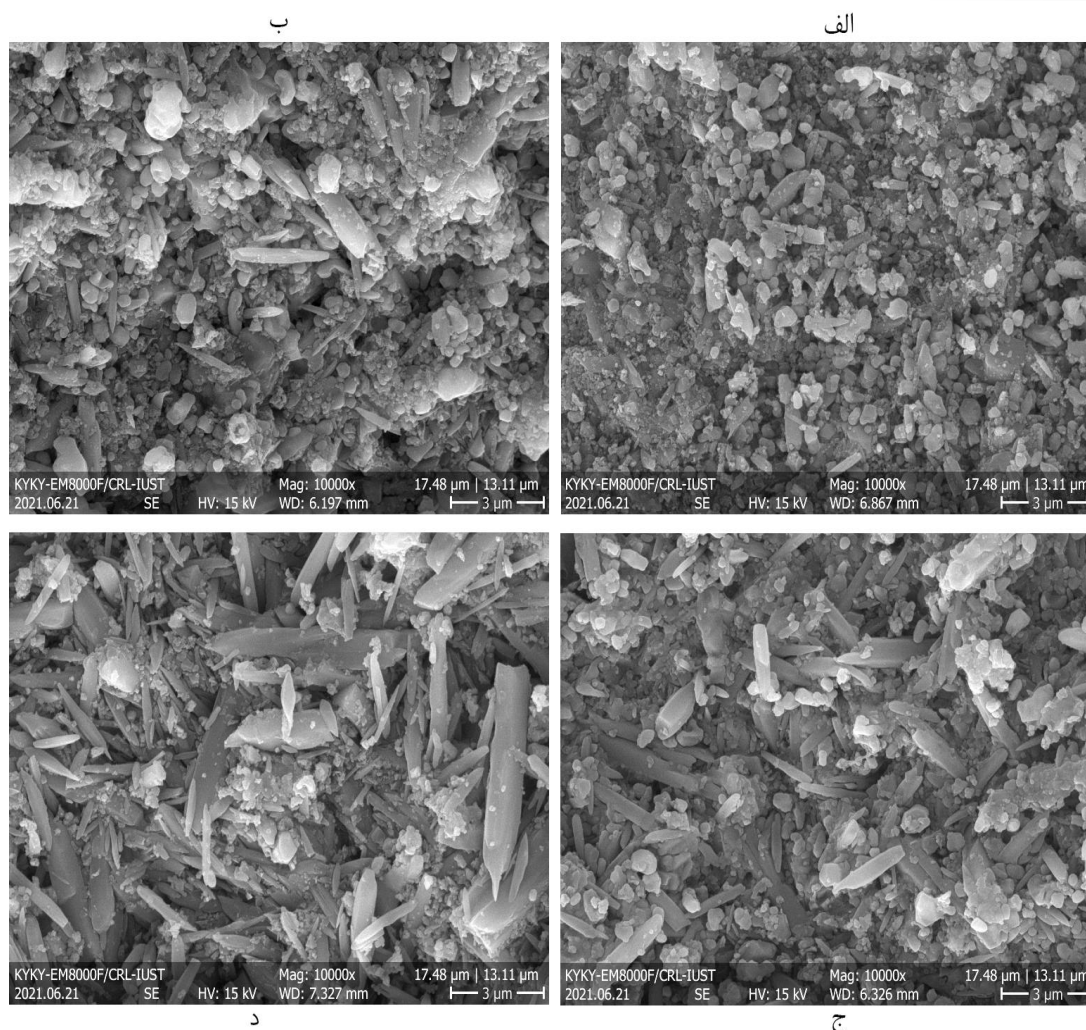
^۱ Solution-Diffusion-Precipitation

دارای ریزساختار واحد نیستند و ریزحفرات در ریزساختار آن‌ها دیده می‌شوند. با افزایش میزان کمک‌تف‌جوش، استحاله فازی آلفا به بتا از طریق پیشرفت سازوکار انحلال، نفوذ و رسوب انجام می‌شود و در نتیجه دانه‌های میله‌ای شکل بتا نیتريد سيليسيم تشکیل می‌شوند و بنابراین، در نمونه ۷ درصد وزنی Eu_2O_3 ، ریزساختاری کاملاً میله‌ای شکل مشاهده می‌شود. در جدول ۷، متوسط اندازه دانه و متوسط نسبت طول/قطر دانه‌های نمونه‌های تف‌جوشی شده ارائه شده است. با افزایش میزان کمک‌تف‌جوش Eu_2O_3 در نمونه‌ها، متوسط اندازه دانه و متوسط نسبت طول/قطر دانه‌ها افزایش یافته است. به‌طور کلی، سازوکار رشد دانه‌های کشیده و میله‌ای بتا نیتريد سيليسيم، نتیجه استحاله فازی آلفا به بتاست و مهاجرت مرزدانه‌ها در ریزساختار به محدود شدن رشد دانه منجر می‌شود [۴۲].

ریزساختار قطعات سرامیکی ساخته‌شده بررسی و تحلیل شد. مقدار، توزیع، اندازه دانه و ریخت‌شناسی ذرات آلفا و بتا، در سرامیک‌های پایه نیتريد سيليسيم، فاکتوری قطعی در تعیین خواص نهایی قطعات تولیدشده هستند. در شکل ۱۴ و ۱۵، تصاویر SEM از سطح شکست و سطح پولیش‌خورده نمونه‌های تف‌جوشی شده ارائه شده است. با مشاهده تصاویر SEM در شکل ۱۴، می‌توان گفت که، با افزایش میزان کمک‌تف‌جوش Eu_2O_3 ، ریزساختار نمونه‌ها متراکم‌تر، یکنواخت‌تر و از میزان ریزحفرات کاسته شده است. این استدلال، با توجه به چگالی نسبی بعد از تف‌جوشی ارائه شده در جدول ۶، توجیه‌پذیر است؛ چراکه، با افزایش میزان کمک‌تف‌جوش، شاهد افزایش چگالی نسبی و بهبود رفتار تراکم‌پذیری در نمونه‌ها هستیم. با توجه به تصاویر SEM ارائه‌شده در شکل ۱۵، می‌توان گفت نمونه‌ها



شکل ۱۴. تصاویر SEM از سطح شکست نمونه‌های تف‌جوشی شده (الف) ۰ درصد وزنی Eu_2O_3 ، (ب) ۳ درصد وزنی Eu_2O_3 ، (ج) ۵ درصد وزنی Eu_2O_3 و (د) ۷ درصد وزنی Eu_2O_3



شکل ۱۵. تصاویر SEM از سطح پولیش‌خورده نمونه‌های تف‌جوشی‌شده (الف) صفر درصد وزنی Eu_2O_3 ، (ب) ۳ درصد وزنی Eu_2O_3 ، (ج) ۵ درصد وزنی Eu_2O_3 و (د) ۷ درصد وزنی Eu_2O_3 در یک نما

جدول ۷. متوسط اندازه دانه و متوسط نسبت طول/قطر دانه‌های نمونه‌های تف‌جوشی

ردیف	نمونه	متوسط اندازه دانه (μm)	متوسط نسبت طول/قطر دانه‌ها (aspect ratio) (μm)
۱	۰٪ Eu_2O_3	۰/۶۸۸	۴/۷۲
۲	۳٪ Eu_2O_3	۰/۸۱۱	۴/۷۹
۳	۵٪ Eu_2O_3	۱/۱۲۹	۵/۴۷
۴	۷٪ Eu_2O_3	۱/۱۵۱	۶/۲۱

۳-۵- خواص مکانیکی

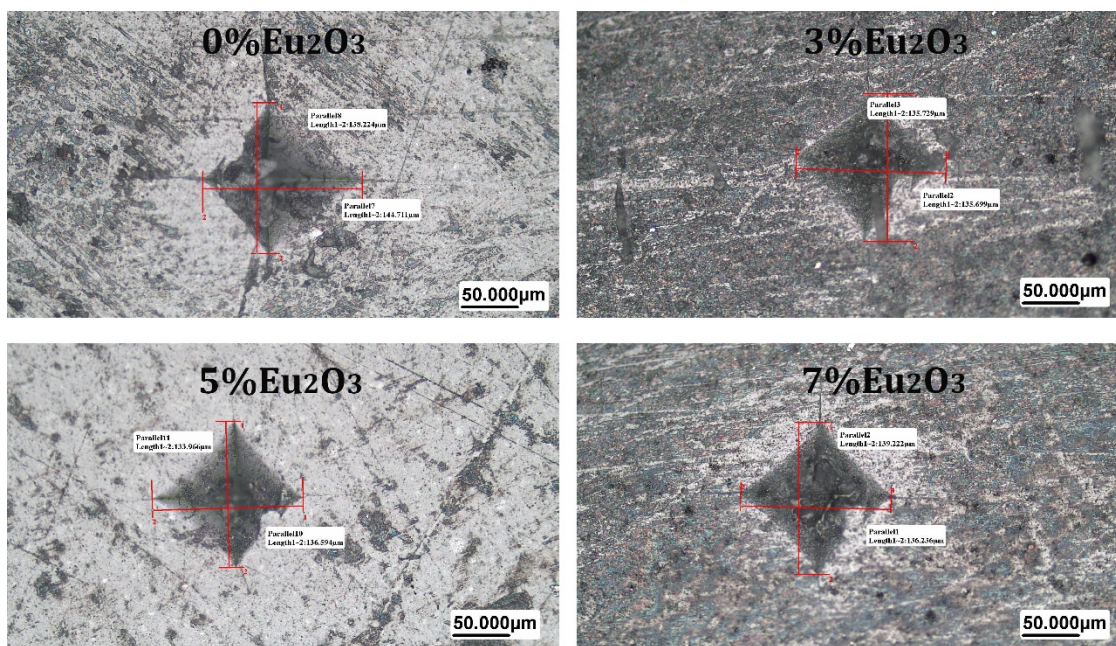
۳-۵-۱- سختی ویکرز

در شکل ۱۶، تصاویر میکروسکوپ نوری و اثر فرورونده در سطح پولیش‌خورده نمونه‌های تف‌جوشی‌شده برای محاسبه سختی ویکرز ارائه شده است. فرورونده، روی هر نمونه، برای محاسبه میانگین قطر فرورونده و در نهایت محاسبه دقیق میزان سختی، سه مرتبه نشانه‌گذاری انجام داد. در جدول ۸، نتایج

سختی سنجی ویکرز نمونه‌های تف‌جوشی‌شده ارائه شده است. بیشترین مقدار سختی ۲۱/۶۱ GPa در نمونه ۵ درصد وزنی Eu_2O_3 مشاهده شد که نشان از چگالش بالا و پیشرفت سازوکار انحلال - نفوذ و رسوب ترکیبات نیتريدی در تف‌جوشی است. علاوه بر این، ترکیب فازی و ریخت‌شناسی از دیگر موارد مؤثر در سختی است. بنابراین، مشاهده می‌شود در نمونه ۷ درصد وزنی Eu_2O_3 ، به دلیل وجود فاز شیشه‌ای بالا، مقدار سختی نسبت

سرامیک‌ها بالاتر از سختی سرامیک‌های معمول با ریزساختار $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ است. از این رو، نمونه ۵ درصد وزنی Eu_2O_3 ، به دلیل داشتن فاز آلفا، در مقایسه با نمونه ۷ درصد وزنی Eu_2O_3 ، سختی بالاتری از خود نشان می‌دهد. در سرامیک‌های نیتريد سیلیسیم به وضوح می‌توان دید که مقدار سختی به مقدار فاز آلفا و چگالی نسبی وابسته است. کاردناس^۲ و همکارانش [۴۴]، برای نیتريد سیلیسیم به همراه افزودنی‌های ایتريا و آلومینا که تحت فرایند SPS و به مدت بیش از یک ساعت تحت فرایند تفجوشی قرار گرفته‌اند، میزان سختی ۱۶۰۰ ویکرز را گزارش کرده‌اند. درحالی‌که، در پژوهش حاضر، این میزان سختی و مقادیر بالاتر از آن با انجام فرایند تفجوشی در زمانی برابر با یک‌چهارم زمان اعمالی در نمونه‌های ساخته‌شده توسط اسمیت و همکارانش حاصل شده است.

به نمونه ۵ Eu_2O_3 درصد با مقدار فاز شیشه‌ای کمتر کاهش یافته است. با توجه به این‌که در روش تفجوشی پلاسمای جرقه‌ای زمان تفجوشی کوتاه است، بهتر می‌توان بر رشد دانه نظارت کرد و به توزیع اندازه دانه کوچک‌تر و در نهایت سختی بالاتر رسید. همراه شدن فشار، سبب بهبود چگالش و حذف تخلخل در این فرایند می‌شود. با توجه به نتایج، مشاهده می‌شود که نمونه‌های حاوی درصد بالایی از فاز آلفا سختی بیشتری در مقایسه با نمونه‌هایی دارند که درصد فاز آلفا در آن‌ها پایین‌تر است و پژوهش‌های سایر پژوهشگران این نتایج را تأیید می‌کنند. برای نمونه، گای هو^۱ و همکاران [۴۳] گزارش کرده‌اند که سخت‌ترین کامپوزیت حاوی فازهای آلفا و بتا نیتريد سیلیسیم مربوط به نمونه‌هایی است که حداقل ۷۹ درصد از فاز آلفا را حفظ کرده‌اند و سختی آن‌ها با سختی سرامیک‌های حاوی $\alpha\text{-Sialon}$ قابل مقایسه است و گزارش کرده‌اند که سختی این



شکل ۱۶. تصویر میکروسکوپ نوری و اثر فرورونده در سطح پولیش‌خورده نمونه‌های تفجوشی‌شده برای محاسبه سختی ویکرز

جدول ۸. نتایج سختی‌سنجی ویکرز و چقرمگی شکست نمونه‌های تفجوشی‌شده

ردیف	نمونه	سختی (GPa)	چقرمگی ($\text{MPa.m}^{1/2}$)
۱	۰ Eu_2O_3 %	$11/8 \pm 1/7$	$7/6 \pm 0/1$
۲	۳ Eu_2O_3 %	$21/3 \pm 1/4$	$9/4 \pm 0/2$
۳	۵ Eu_2O_3 %	$21/6 \pm 1/6$	$7/2 \pm 0/1$
۴	۷ Eu_2O_3 %	$19/4 \pm 1/3$	$7/1 \pm 0/1$

² Cardenas

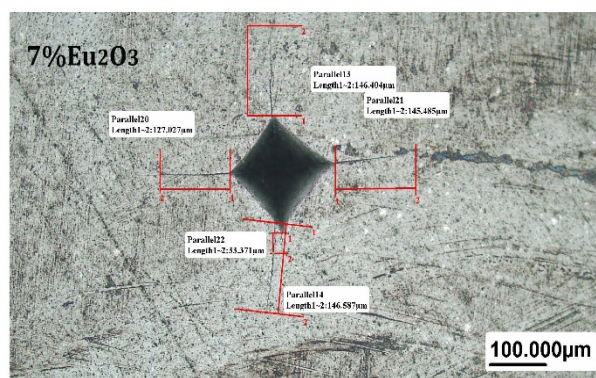
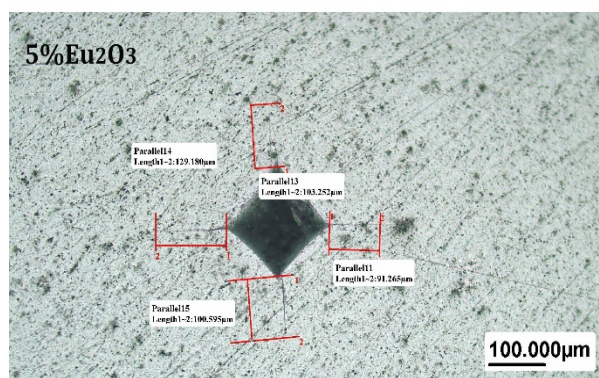
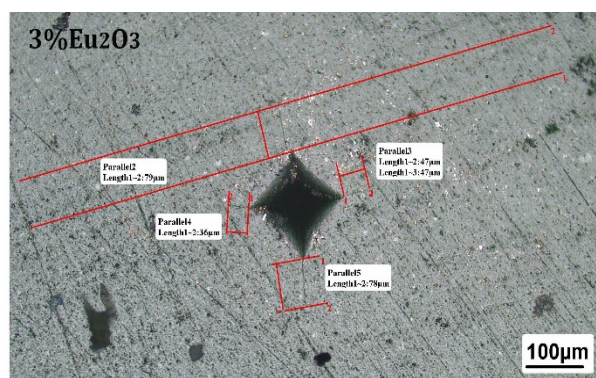
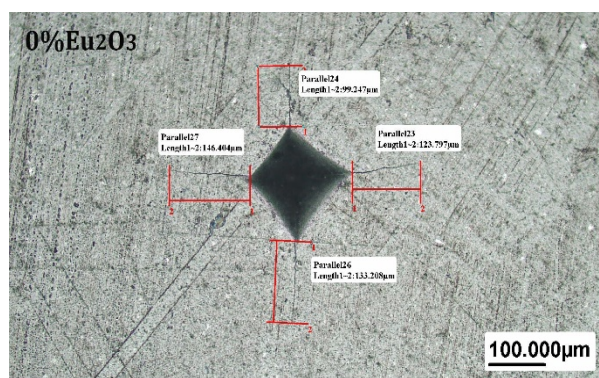
¹ Gui hua

۳-۵-۲- چقرمگی شکست

در جدول ۸ و شکل ۱۷، به ترتیب، نتایج چقرمگی شکست و تصاویر میکروسکوپ نوری با اثر فرورونده برای محاسبه چقرمگی شکست نمونه های تفجوشی شده ارائه شده است. مقادیر چقرمگی شکست نمونه ها، روند معناداری از خود نشان ندادند و به طور کلی در بازه $(9/4 - 6/1 \text{ MPa.m}^{1/2})$ متغیر بودند. بهبود چقرمگی شکست در سرامیک های نیتريد سيليسيم از طريق افزايش تعداد و رشد دانه های بتا نیتريد سيليسيم حاصل می شود؛ چراکه، با وجود این دانه ها، سازوکار انحراف ترک و پل زدن دانه فعال [۴۵] و تشکیل ریزساختار تقویت شده با دانه های کشیده به افزایش چقرمگی شکست منجر می شود. سازوکار انحراف ترک بیشتر به فاز بتا نیتريد سيليسيم با قطر بزرگ تر از $1 \mu\text{m}$ وابسته است و بیشتر در ریزساختارهایی با دانه های بزرگ فعال می شود، اما سازوکارهای چقرمه شدن براساس پل زنی و بیشتر در ریزساختارهای ریزدانه با دانه های بتا

نیتريد سيليسيم با قطر کوچک تر از $1 \mu\text{m}$ مشاهده می شود [۴۶]. از طرف دیگر، فاکتور چقرمگی شکست تنها به شکل و اندازه دانه ها وابسته نیست و ترکیب فاز مرزدانه و آمورف در آن تأثیرگذار است [۴۷]. علاوه بر این، وقتی نسبت طول/قطر دانه ها بالاتر از ۴ باشد، نسبت بالاتری از نازک ترین یا ضخیم ترین دانه های میله ای شکل نیتريد سيليسيم به چقرمگی شکست بالاتر منجر می شود.

با توجه به نتایج به دست آمده در این پژوهش در خصوص چقرمگی شکست سرامیک های کامپوزیتی نیتريد سيليسيم و نتایج سایر پژوهشگران در زمینه سازوکارهای چقرمه شدن سرامیک های نیتريد سيليسيم، می توان گفت نمونه های تفجوشی شده در پژوهش حاضر از خود چقرمگی شکست قابل قبولی ارائه دادند که متأثر از افزایش تعداد و رشد دانه های میله ای شکل بتا نیتريد سيليسيم و بالابودن نسبت طول/قطر دانه هاست.



شکل ۱۷. تصویر میکروسکوپ نوری و اثر فرورونده در سطح پولیش خورده نمونه های تفجوشی شده برای محاسبه چقرمگی شکست

۴- نتیجه گیری

شدن توزیع اندازه ذرات پودرهای اولیه هستیم. می توان گفت، برای حصول خواص مکانیکی و ریزساختاری مطلوب، رفتار تراکم پذیری مناسب و توزیع یکنواخت مخلوط پودر اولیه به ریزدانه شدن پودر اولیه نیتريد سيليسيم به وسیله فرایند آسیاکاری

اندازه ذرات مخلوط پودر اولیه، بعد از ۱۲ ساعت فرایند آسیاکاری به روش تر، حدود ۱۹ درصد کوچک تر شد و، از نظر ریخت شناسی، شاهد کوچک تر شدن اندازه ذرات و یکنواخت تر

3. Zou, C., Zhang, C., Li, B., Wang, S., Cao, F., "Microstructure and properties of porous Silicon nitride ceramics prepared by gel-casting and gas pressure sintering", *Materials & Design*, Vol. 44, (2013), 114-118. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2012.07.056>
 4. Greskovich, C., Prochazka, S., "Stability of Si_3N_4 and liquid phase(s) during sintering", *Journal of the American Ceramic Society*, Vol. 64, No. 7, (1981), C-96-C-97. <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1981.tb09885.x>
 5. Greskovich, C., Prochazka, S., "Dense and near-net-shape fabrication of Si_3N_4 ceramics", *Materials Science and Engineering: A*, Vol. 500, No. 1-2, (2009), 130-149. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2008.09.015>
 6. Manavizadeh, N., Khodayari, A., Asle Soleimani, E., "Deposition and determination of the properties of silicon nitride films in argon and nitrogen atmospheres", *Journal of Advanced Materials and Technologi (JAMT)*, Vol. 3, (2008), 175-182. <https://doi.org/10.30501/JAMT.2010.70135>
 7. Miyakawa, N., Sato, H., Maeno, H., Takahashi, H., "Characteristics of reaction-bonded porous silicon nitride honeycomb for DPF substrate", *JSAE Review*, Vol. 24, No. 3, (2003), 269-276. [https://doi.org/10.1016/S0389-4304\(03\)00050-X](https://doi.org/10.1016/S0389-4304(03)00050-X)
 8. Miyakawa, N., Sato, H., Maeno, H., Takahashi, H., "Microstructure and mechanical properties of silicon nitride ceramics with controlled porosity", *Journal of the American Ceramic Society*, Vol. 85, No. 6, (2002), 1512-1516. <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.2002.tb00305.x>
 9. Alizadeh, M., Soltani, M., Kazemzadeh, A., Ebadzadeh, T., "Investigation of addition of CNT and sintering process on microstructure and mechanical properties of $\text{Al-Si}_3\text{N}_4\text{-CNT}$ nano composite", *Journal of Advanced Materials and Technologi (JAMT)*, Vol. 9, No. 1, (2020), 39-48. <https://doi.org/10.30501/JAMT.2019.99427>
 10. Ganesh, I., "Development of $\beta\text{-SiAlON}$ based ceramics for radome applications", *Processing and Application of Ceramics*, Vol. 5, No. 3, (2011), 113-138. <https://doi.org/10.2298/PAC1103113G>
 11. Lukianova, O. A., Sirota, V. V., "Dielectric properties of silicon nitride ceramics produced by free sintering", *Ceramics International*, Vol. 43, No. 11, (2017), 8284-8288. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2017.03.161>
 12. Li, X., Yin, X., Zhang, L., Cheng, L., Qi, Y., "Mechanical and dielectric properties of porous $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-SiO}_2$ composite Ceramics", *Materials Science and Engineering*, Vol. 500, No. 1-2, (2009), 63-69. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2008.09.066>
 13. ShuQin, L., YuChen, P., ChangQing, Y., JiaLu, L., "Mechanical and dielectric properties of porous $\text{Si}_2\text{N}_2\text{O-Si}_3\text{N}_4$ in situ composites", *Ceramics International*, Vol. 35, No. 5, (2009), 1851-1854. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2008.10.021>
 14. Liang, G., Sun, G., Bi, J., Wang, W., Yang, X., Li, Y., "Mechanical and dielectric properties of functionalized boron nitride nanosheets/silicon nitride composites", *Ceramics International*, Vol. 47, No. 2, (2021), 2058-2067. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2020.09.038>
 15. Yuan, B., Wang, G., "Preparation and properties of $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{BN}$ ceramic composites", *Procedia Engineering*, Vol. 27, (2012), 1292-1298. <https://doi.org/10.1016/j.proeng.2011.12.584>
 16. Jia, D. C., Zhou, Y., Lei, T. C., "Ambient and elevated temperature mechanical properties of hot-pressed fused silica matrix composite", *Journal of the European Ceramic Society*, Vol. 23, No. 5, (2003), 801-808. [https://doi.org/10.1016/S0955-2219\(02\)00156-5](https://doi.org/10.1016/S0955-2219(02)00156-5)
 17. Kićević, D., Gašić, M., Marković, D., "A statistical analysis of the influence of processing conditions on the properties of fused silica", *Journal of the European Ceramic Society*, Vol. 16, No. 8, (1996), 857-864. [https://doi.org/10.1016/0955-2219\(96\)80453-5](https://doi.org/10.1016/0955-2219(96)80453-5)
 18. Rhee, S. H., Do Lee, J., Kim, D. Y., "Effect of $\alpha\text{-Si}_3\text{N}_4$ initial powder size on the microstructural evolution and phase transformation during sintering of Si_3N_4 ceramics", *Journal of the European Ceramic Society*, Vol. 20, No. 11, (2000), 1787-1794. [https://doi.org/10.1016/S0955-2219\(00\)00053-4](https://doi.org/10.1016/S0955-2219(00)00053-4)
 19. Abe, H., Hotta, T., Naito, M., Shinohara, N., Okumiya, M., Kamiya, H., Uematsu, K., "Origin of strength variation of silicon nitride ceramics with CIP condition in a powder compaction process", *Powder Technology*, Vol. 119, No. 203, (2001), 194-200. [https://doi.org/10.1016/S0032-5910\(00\)00421-6](https://doi.org/10.1016/S0032-5910(00)00421-6)
- پرانرژی نیاز خواهیم داشت.
- با توجه به ابعاد نمونه‌ها قبل از انجام فرایند پرس ایزواستاتیک سرد با قطر متوسط ۲۴ میلی‌متر و بعد از فرایند پرس ایزواستاتیک سرد با قطر متوسط ۲۱/۲ میلی‌متر، می‌توان گفت همه نمونه‌ها، بعد از پرس ایزواستاتیک سرد در جهت قطر، به‌طور متوسط با کاهش اندازه ۱۱/۷ درصد مواجه شدند که این موضوع نشان‌دهنده این است که در مرحله اول (پرس تک‌محوره)، پودرها فقط در جهت اعمال فشار (جهت ضخامت) فشرده شدند و در مرحله دوم (پرس ایزواستاتیک سرد)، در تمامی جهات و به‌ویژه در جهت قطر فشرده شدند. نتایج آشکار می‌کنند که، از ۱۴/۶۷ درصد افزایش درصد چگالی نسبی نمونه‌ها، حدود ۱۲ درصد سهم کاهش اندازه در جهت قطر است.
- مقدار بالای فاز بتا نیتريد سيليسيم در نمونه ۷ درصد وزنی Eu_2O_3 نشان‌دهنده کافی بودن میزان فاز مایع حین فرایند تف‌جوشی و پیشرفت سازوکار انحلال، نفوذ و رسوب و در نهایت افزایش سرعت استحاله‌فازی آلفا به بتاست.
- بیشترین مقدار سختی ۲۱/۶۱ GPa در نمونه ۵ درصد وزنی Eu_2O_3 مشاهده شد که نشان از چگالش بالا، پیشرفت سازوکار انحلال-نفوذ و رسوب ترکیبات نیتريدی در تف‌جوشی و میزان بالای فاز آلفاست. مقادیر چقرمگی شکست نمونه‌ها متأثر از رشد دانه‌های میله‌ای شکل بتا نیتريد سيليسيم و بالا بودن نسبت طول/عرض دانه‌ها و در بازه $(9/4 - 6/1 \text{ MPa.m}^{1/2})$ متغیر است.
- ### ۵- سپاسگزاری
- این پژوهش در قالب پایان‌نامه کارشناسی ارشد با همکاری دانشگاه امام حسین (ع) در پژوهشگاه مواد و انرژی انجام شده است. از همکاری آقای کبیری برای انجام SPS کمال تشکر و قدردانی را داریم.
- ### مراجع
1. Klemm, H., "Silicon nitride for high-temperature applications", *Journal of the American Ceramic Society*, Vol. 93, No. 6, (2010), 1501-1522. <https://doi.org/10.1111/j.1551-2916.2010.03839.x>
 2. Riley, F. L., "Silicon nitride and related materials", *Journal of the American Ceramic Society*, Vol. 83, No. 2, (2004), 245-265. <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.2000.tb01182.x>

34. Liu, X. J., Huang, Z. Y., Pu, X. P., Sun, X. W., Huang, L. P., "Influence of planetary high-energy ball milling on microstructure and mechanical properties of silicon nitride ceramics", *Journal of the American Ceramic Society*, Vol. 88, No. 5, (2005), 1323-1326. <https://doi.org/10.1111/j.1551-2916.2005.00227.x>
35. Li, H., Sun, F., Dong, T., Xu, X., "The effect of particle size of silicon nitride powder on properties of silicon nitride ceramic balls", *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*, Vol. 678, No. 1, (2019), 012041. <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/1757-899X/678/1/012041/pdf>
36. Wang, L. J., Yang, X., Liu, X. J., Jiao, Z., Huang, Z. R., "Effects of particle size on densification behavior of Si_3N_4 ceramics", *Key Engineering Materials*, Vol. 697, (2016), 182-187. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/KEM.6>
37. Lukianova, O. A., Sirota, V. V., "Dielectric properties of silicon nitride ceramics produced by free sintering", *Ceramics International*, Vol. 43, No. 11, (2017), 8284-8288. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2017.03.161>
38. Luo, J. T., Zhang, C. X., Ma, H. F., Wang, G., "Cold isostatic pressing-normal pressure sintering behavior of amorphous nano-sized silicon nitride powders", *Advanced Materials Research*, Vol. 454, (2012), 17-20. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/AMR.454.17>
39. Kitayama, M., Hirao, K., Kanzaki, S., "Effect of rare earth oxide additives on the phase transformation rates of Si_3N_4 ", *Journal of the American Ceramic Society*, Vol. 89, No. 8, (2006), 2612-2618. <https://doi.org/10.1111/j.1551-2916.2006.01106.x>
40. Liu, W., Tong, W., Lu, X., Wu, S., "Effects of different types of rare earth oxide additives on the properties of silicon nitride ceramic substrates", *Ceramics International*, Vol. 45, No. 9, (2019), 12436-12442. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2019.03.176>
41. Wang, Z. H., Bai, B., Ning, X. S., "Effect of rare earth additives on properties of silicon nitride ceramics", *Advances in Applied Ceramics*, Vol. 113, No. 3, (2014), 173-177. <https://doi.org/10.1179/1743676113Y.0000000138>
42. Jeong, K., Tatami, J., Iijima, M., Nishimura, T., "Spark plasma sintering of silicon nitride using nanocomposite particles", *Advanced Powder Technology*, Vol. 28, No. 1, (2017), 37-42. <https://doi.org/10.1016/j.appt.2016.06.027>
43. Peng, G. H., Li, X. G., Liang, M., Liang, Z. H., Liu, Q., Li, W. L., "Spark plasma sintered high hardness α/β Si_3N_4 composites with MgSiN_2 as additives", *Scripta Materialia*, Vol. 61, No. 4, (2009), 347-350. <https://doi.org/10.1016/j.scriptamat.2009.04.007>
44. Ceja-Cárdenas, L., Lemus-Ruiz, J., Jaramillo-Vigueras, D., De La Torre, S. D., "Spark plasma sintering of α - Si_3N_4 ceramics with Al_2O_3 and Y_2O_3 as additives and its morphology transformation", *Journal of Alloys and Compounds*, Vol. 501, No. 2, (2010), 345-351. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2010.04.102>
45. Kawashima, T., Okamoto, H., Yamamoto, H., Kitamura, A., "Grain size dependence of the fracture toughness of silicon nitride ceramics", *Journal of the Ceramic Society of Japan*, Vol. 99, No. 1148, (1991), 320-323. <https://doi.org/10.2109/jcersj.99.320>
46. Luo, S. C., Guo, W. M., Plucknett, K., Lin, H. T., "Improved toughness of spark-plasma-sintered Si_3N_4 ceramics by adding HfB_2 ", *Ceramics International*, Vol. 47, No. 6, (2021), 8717-8721. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2020.11.201>
47. Šajgalik, P., Dusza, J., Hoffmann, M. J., "Relationship between microstructure, toughening mechanisms, and fracture toughness of reinforced silicon nitride ceramics", *Journal of the American Ceramic Society*, Vol. 78, No. 10, (1995), 2619-2624. <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1995.tb08031.x>
20. Ling, G., Yang, H., "Pressureless sintering of silicon nitride with magnesia and yttria", *Materials Chemistry and Physics*, Vol. 90, No. 1, (2005), 31-34. <https://doi.org/10.1016/j.matchemphys.2004.08.041>
21. Li, Y., Kim, H. N., Wu, H., Kim, M. J., Ko, J. W., Park, Y. J., Huang, Z., Kim, H. D., "Microstructure and thermal conductivity of gas-pressure-sintered Si_3N_4 ceramic: The effects of Y_2O_3 additive content", *Journal of the European Ceramic Society*, Vol. 41, No. 1, (2021), 274-283. <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2020.08.035>
22. Liao, S., Zhou, L., Jiang, C., Wang, J., Zhuang, Y., Li, S., "Thermal conductivity and mechanical properties of Si_3N_4 ceramics with binary fluoride sintering additives", *Journal of the European Ceramic Society*, Vol. 41, No. 14, (2021), 6971-6982. <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2021.07.035>
23. Lu, T., Wang, T., Jia, Y., Ding, M., Shi, Y., Xie, J., Fan, L., "Fabrication of high thermal conductivity silicon nitride ceramics by pressureless sintering with MgO and Y_2O_3 as sintering additives", *Ceramics International*, Vol. 46, No. 17, (2020), 27175-27183. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2020.07.198>
24. Zhang, Y., Yao, D., Zuo, K., Xia, Y., Yin, J., Liang, H., Zeng, Y. P., "Effects of different types of sintering additives and post-heat treatment (PHT) on the mechanical properties of SHS-fabricated Si_3N_4 ceramics", *Ceramics International*, Vol. 47, No. 16, (2021), 22461-22467. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2021.04.255>
25. Han, Y., Xie, Z., Li, S., Zhu, T., Wu, W., An, D., Zhai, F., "Optimum sintering temperature of high quality silicon nitride ceramics under oscillatory pressure", *Ceramics International*, Vol. 44, No. 6, (2018), 6949-6952. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2018.01.126>
26. Kumar, A., Gokhale, A., Ghosh, S., Aravindan, S., "Effect of nano-sized sintering additives on microstructure and mechanical properties of Si_3N_4 ceramics", *Materials Science and Engineering*, Vol. 750, (2019), 132-140. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2019.02.020>
27. Liu, W., Tong, W., Lu, X., Wu, S., "Effects of different types of rare earth oxide additives on the properties of silicon nitride ceramic substrates", *Ceramics International*, Vol. 45, No. 9, (2019), 12436-12442. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2019.03.176>
28. Yu, F., Yang, J., Delsing, A. C., Hintzen, B. H., "Preparation, characterization and luminescence properties of porous Si_3N_4 ceramics with Eu_2O_3 as sintering additive", *Journal of Luminescence*, Vol. 130, No. 12, (2010), 2298-2304. <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2010.07.008>
29. Jeong, K., Tatami, J., Iijima, M., Nishimura, T., "Spark plasma sintering of silicon nitride using nanocomposite particles", *Advanced Powder Technology*, Vol. 28, No. 1, (2017), 37-42. <https://doi.org/10.1016/j.appt.2016.06.027>
30. Lukianova, O. A., Novikov, V. Y., Parkhomenko, A. A., Sirota, V. V., Krasilnikov, V. V., "Microstructure of spark plasma-sintered silicon nitride ceramics", *Nanoscale Research Letters*, Vol. 12, No. 1, (2017), 293. <https://doi.org/10.1186/s11671-017-2067-z>
31. Yang, J., Yang, J. F., Shan, S. Y., Gao, J. Q., Ohji, T., "Effect of sintering additives on microstructure and mechanical properties of porous silicon nitride ceramics", *Journal of the American Ceramic Society*, Vol. 89, No. 12, (2006), 3843-3845. <https://doi.org/10.1111/j.1551-2916.2006.01294.x>
32. Han, W., Li, Y., Chen, G., Yang, Q., "Effect of sintering additive composition on microstructure and mechanical properties of silicon nitride", *Materials Science and Engineering*: Vol. 700, (2017), 19-24. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2017.05.100>
33. Park, C., Bang, K. S., Park, D. S., Kim, H. D., Danyluk, S., "Pressureless-sintering of reaction bonded silicon nitride containing cordierite", *Journal of Ceramic Processing Research*, Vol. 13, No. 3, (2012), 226-230. <http://www.jcpr.or.kr/journal/archive/view/1127>