



Journal Home Page: www.jmatpro.ir

Formation of in Situ Si_3N_4 in the Cordierite- Si_3N_4 Composite Produced by Nano and Micro Silicon Particles

Somayeh Sharafi Zamir^{1*}, Majid Jafari¹, Amir Abas Nourbakhsh², Ahmad Monshi³

1- Department of Materials Engineering, Islamic Azad University, Najafabad branch, Isfahan, Iran

2- Department of Engineering, Islamic Azad University, Shahreza branch, Isfahan, Iran

3- Department of Materials Engineering, Isfahan University of Technology, Isfahan, Iran

ARTICLE INFO

Article history:

Received: 14 Apr. 2010

Accepted: 18 Jul. 2010

Keywords:

Cordierite
Silicon nitride
Microstructure
Composite pore size
Nano silicon particles

ABSTRACT

In this study the effect of in situ Si_3N_4 formation in the microstructure of a Cordierite- Si_3N_4 composite using micro and nano silicon particles was investigated. It was found that micro and nano silicon particles have different reaction with the nitrogen in the matrix of cordierite at various temperatures. Result showed that using nano size silicon powder and increasing surface area formation of silicon nitride bonding will be increased which should be related to Si_3N_4 formation in low temperature and prevent to reacting with cordierite to form liquid phase during sintering. Additionally it was found that, it is possible to synthesis high porosity cordierite- Si_3N_4 composite with a good thermal shock resistance.

*Corresponding author: Somayeh Sharafi Zamir, sharafi1413@yahoo.com



تشکیل Si_3N_4 به صورت درجا در کامپوزیت کوردیریت- Si_3N_4 سنتز شده با استفاده از نانو و میکرو ذرات سیلیکون

سمیه شرفی ضمیر^{۱*}، مجید جعفری^۱، امیر عباس نور بخش^۲، احمد منشی^۳

۱- دانشکده مهندسی مواد، دانشگاه آزاد اسلامی واحد نجف آباد

۲- دانشکده مهندسی، دانشگاه آزاد اسلامی واحد شهرضا

۳- دانشکده مهندسی مواد، دانشگاه صنعتی اصفهان

چکیده	اطلاعات مقاله
<p>در این تحقیق تاثیر تشکیل Si_3N_4 به صورت درجا با استفاده از نانو و میکرو ذرات سیلیکون بر روی بدنه‌های کوردیریتی مورد بررسی قرار گرفته است. نتایج حاصله نشان دادند که واکنش نانو ذرات سیلیکون با نیتروژن متفاوت از میکرو ذرات سیلیکون در دماهای مختلف می‌باشد. با کاهش اندازه ذرات سیلیکون در ابعاد نانو و افزایش سطح ویژه ذرات، منجر به کاهش دمای تشکیل سیلیکون نایتراید در کوردیریت سنتز شده می‌گردد، بنابراین مانع از تشکیل فاز مذاب کوردیریت در حین تفجوشی و موجب نزدیکی دمای تشکیل دو فاز می‌شود. همچنین، امکان تشکیل یک بدنه متخلخل ساخته شده از کامپوزیت کوردیریت-Si_3N_4 با شوک پذیری مناسب وجود دارد.</p>	<p>تاریخ دریافت: ۱۳۸۹/۱/۲۵ تاریخ پذیرش: ۱۳۸۹/۴/۲۷</p> <p>واژگان کلیدی: کوردیریت سیلیکون نایتراید ریزساختار تخلخل نانوذرات سیلیکون</p>

۱- مقدمه

با میکرو ذرات سیلیکون می‌باشد. همچنین تاثیر تغییرات نیتريداسیون که وابسته به اندازه ذرات سیلیکون و دمای واکنش می‌باشد، مورد بررسی قرار گرفته است. تشکیل Si_3N_4 بصورت درجا در ماتریس کوردیریت بوسیله آنالیز تفرق اشعه ایکس (XRD)، ویژگی‌های حرارتی توسط آنالیز حرارتی همزمان (STA) و ویژگیهای ریزساختاری کامپوزیت کوردیریت- Si_3N_4 بوسیله میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) بررسی گردید. نتایج حاصله نشان دادند که استفاده از نانوذرات سیلیکون موجب تشکیل باندهای نیتريدی و افزایش آن با افزایش درجه حرارت می‌باشد، که این موضوع بدلیل کاهش درجه حرارت تشکیل فاز نیتريدی قبل از تشکیل فاز مذاب کوردیریت می‌باشد. همچنین نتایج نشان دادند که با استفاده از نانو ذرات سیلیکون، امکان دستیابی به بدنه متخلخل با شوک‌پذیری مناسب وجود دارد.

۲- مواد و روشها

۲-۱- تهیه شاموت کوردیریت

مواد خام برای تهیه شاموت کوردیریت، شامل کائولن (Z.lids) با متوسط اندازه دانه ۵ میکرومتر، تالک (جندق) با متوسط اندازه دانه ۱۵ میکرومتر و Al_2O_3 (Nabalox) با اندازه دانه کمتر از ۵ μm و خلوص ۹۹/۸ درصد می‌باشد. آنالیز شیمیایی مواد خام برای تهیه شاموت کوردیریت در جدول ۱ آورده شده است. ترکیب مواد مورد نیاز جهت ساخت شاموت کوردیریت بر اساس ترکیب استوکيومتریکی برای ساخت کوردیریت (wt.% $\text{MgO}=۱۳/۸$ ، wt.% $\text{SiO}_2=۳۴/۸$ و wt.% $\text{Al}_2\text{O}_3=۵۱/۴$) تهیه و سپس بمنظور افزایش دیرگدازی فاز مذاب همراه کوردیریت از آلومینا استفاده گردید.

در دهه اخیر کامپوزیت‌های پایه کوردیریتی توجه بسیاری از محققین را به خود جلب کرده است. کوردیریت $(2\text{MgO} \cdot 2\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 5\text{SiO}_2)$ بدلیل ضریب انبساط حرارتی پایین، و مقاومت به شوک حرارتی بالا، ثابت دی‌الکتریک کم ($\epsilon=۵-۶$) و پایداری حرارتی و شیمیایی بالا در بسیاری از کاربردهای صنعتی مانند: دیرگدازها، عایق‌های حرارتی و صوتی، فیلترها، ممبرانها، المنت‌های حرارتی، مبدل‌های کاتالستی و زیر پایه‌های چند لایه‌ای بکار می‌رود [۴-۱]. اما بدلیل محدوده پخت باریک کوردیریت امکان استفاده از این سرامیک را در دمای بالا محدود می‌کند [۵-۶].

سیلیکون نایتراید (Si_3N_4) بدلیل خواص مکانیکی و ترمومکانیکی خوب در دمای بالا می‌تواند یکی از مناسبترین مواد به عنوان آگریگیت و فاز اتصال در کامپوزیت‌های پایه کوردیریتی باشد [۷-۸]. بخصوص اینکه Si_3N_4 دارای استحکام بالا در دمای بالا، مقاومت به تنش حرارتی خوب، که باعث ضریب انبساط حرارتی پایین در مقایسه با سایر مواد دما بالا می‌باشد [۹-۱۰].

در سال ۱۸۹۸، مطالعاتی بر روی سنتز کامپوزیت کوردیریت- Si_3N_4 مناسب برای موتورهای دیزل انجام شد [۱۴]. تحقیقات انجام شده نشان داد که، هدایت حرارتی این کامپوزیت کمتر از هدایت حرارتی Si_3N_4 تف‌جوشی شده (SSN) می‌باشد. همچنین کامپوزیت کوردیریت- Si_3N_4 سنتز شده ضریب انبساط حرارتی پایین‌تر و کاهش کمتری در استحکام و چقرمگی نسبت به Si_3N_4 تف‌جوشی شده دارد [۱۴].

هدف از این تحقیق تشکیل Si_3N_4 بصورت درجا در ماتریس کوردیریت قبل از تشکیل فاز مذاب همراه کوردیریت با استفاده از نانو ذرات سیلیکون و مقایسه آن

جدول ۱- آنالیز شیمیایی مواد خام

Table 1. Chemical composition of raw materials

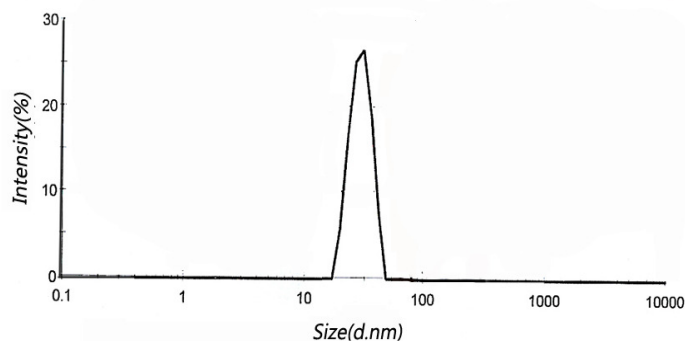
L.O.I	Na ₂ O	K ₂ O	CaO	Mgo	TiO ₂	Fe ₂ O ₃	Al ₂ O ₃	SiO ₂	Raw materials
13.25	0.03	1.02	0.36	0.25	0.17	0.85	36.7	47.1	Kolin (Z.lids)
7	0.12	0.46	0.85	31.5	0.08	0.5	25	57.5	Talc (Gndagh)
3.45	-	-	-	-	-	0.03	99.5	0.01	Alumina (Nabalox)

ترکیب به مدت ۳ ساعت در دماهای مختلف پخت و به منظور تعیین انتخاب بهترین نمونه با بیشترین دانسیته از روش ارشمیدس استفاده شد. فازهای کریستالی نمونه‌های کوردیریت تفجوشی شده به وسیله آنالیز تفرق اشعه ایکس (Philips PW3710) در ۴۰kV و ۳۰mA با استفاده از CuK_{α} مشخص گردید.

ابتدا مواد اولیه برای تهیه شاموت کوردیریت، پس از توزین، در آسیاب گلوله‌ای با گلوله های از جنس آلومینا به مدت ۲۴ ساعت به صورت تر آسیا شدند. دوغاب بدست آمده در خشک کن در دمای ۸۰°C کاملاً خشک گردید. نمونه‌ها بصورت قرص‌هایی با قطر ۲۵mm و ضخامت ۵mm توسط پرس تک محوری تحت فشار ۵۰MPa پرس شدند. نمونه‌های پرس شده در هر

Results					
		Diam. (nm)	% Intensity	Width (nm)	
Z-Average (d.nm):	63.8	Peak 1:	82.8	100.0	35.22
Pdl:	0.356	Peak 2:	0.000	0.0	0.000
Intercept:	0.887	Peak 3:	0.000	0.0	0.000
Result quality : Refer to quality report					

Size Distribution by Intensity



شکل ۱- توزیع اندازه ذرات نانو سیلیکون با استفاده از آنالیز دستگاهی

Fig. 1. Particel size analysis distribution of nano size silicon particles

۱۰ mlit/min پخته شدند. بدلیل گرمازا بودن واکنش نیتريداسیون، کنترل دقیق عملیات حرارتی را باید انجام می گرفت. نرخ حرارت دهی حدود $5^{\circ}\text{C}/\text{min}$ با ۲ ساعت زمان ماندگاری در دمای 600°C و ۳ ساعت زمان ماندگاری در دمای ماکزیمم برنامه ریزی گردید. دانسیته بالک و تخلخلهای باز به روش ارشمیدس محاسبه گردید. فازهای کریستالی نمونه های تفجوشی شده به وسیله آنالیز تفرق اشعه ایکس در 40KV و 30mA با استفاده از $\text{K}_{\alpha}\text{Cu}$ انجام شد. ریز ساختار نمونه های تفجوشی شده توسط میکروسکوپ الکترونی (SEM) مورد بررسی قرار گرفت (Model: Vega/Tescan). همچنین جهت تعیین دمای شروع واکنش نیتريداسیون، از آنالیز حرارتی همزمان (STA) (Model: Labsys-Setaram) در اتمسفر نیتروژن تا دمای 1400°C با نرخ حرارت دهی حدود $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ استفاده شد. سطح ویژه ذرات نانو سیلیکون به روش BET (Model: 1042-Costech) اندازه گیری گردید.

۳- نتایج و بحث

۳-۱- انتخاب نمونه بهینه شاموت کوردیریت

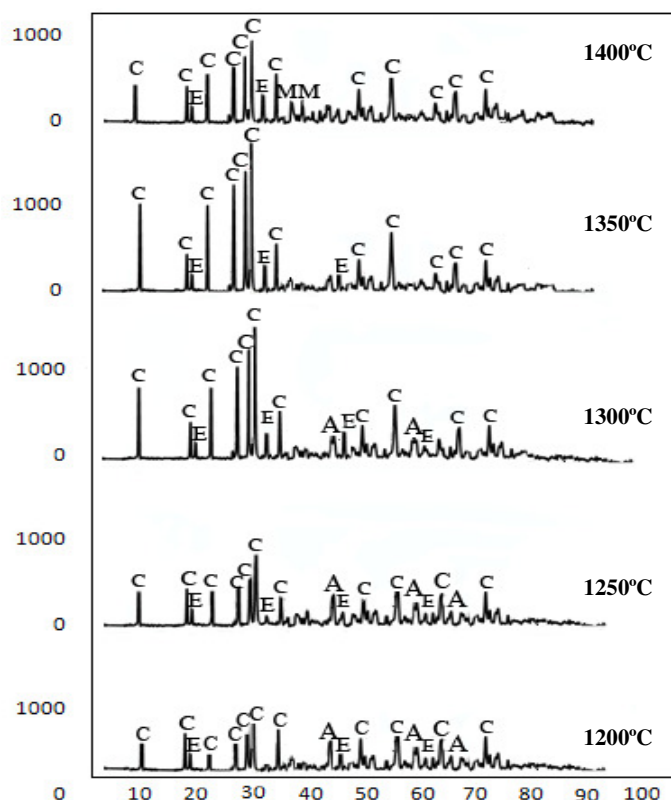
بعد از تهیه شاموت کوردیریت، برای تعیین دانسیته از روش ارشمیدس استفاده شد. نمونه با بیشترین دانسیته در هر دما انتخاب و سپس به منظور تعیین بیشترین فاز کریستالی در شاموت کوردیریت از آنالیز تفرق اشعه ایکس استفاده گردید که نتایج آن در شکل ۲ آورده شده است.

۲-۲- آماده سازی پودر نانو سیلیکون:

پودر سیلیکون اولیه (Elkem) با متوسط اندازه دانه $15\mu\text{m}$ برای تهیه نانو سیلیکون مورد استفاده قرار گرفت. پودر سیلیکون به روش مکانیکی در آسیاب سیاره ای پر انرژی، در جارهای پلیمری به دلیل جلوگیری از آلودگی آهن با استفاده از گلوله های زیرکونیایی با دو قطر متفاوت (10mm و 20mm) به مدت ۲۰۰ ساعت در اتمسفر آرگون آسیاب شد. اندازه ذرات سیلیکون توسط دستگاه (Malvern-U.K-Model of ZN 3200) اندازه گیری گردید، توزیع اندازه ذرات در شکل ۱ ملاحظه می شود.

۲-۳- تهیه کامپوزیت کوردیریت- Si_3N_4

بهترین نمونه با بیشترین دانسیته از شاموت کوردیریت که در دماهای مختلف پخت داده شده بودند، انتخاب شده و سپس نمونه های پخت داده شده خرد، آسیاب و از الک ۳۲ مش عبور داده شده و سپس با ۱، ۳، ۵ و ۱۰ wt% پودر نانو سیلیکون مخلوط شدند. در جهت مقایسه رفتار نانو ذرات سیلیکون در کامپوزیت کوردیریت- Si_3N_4 از میکرو ذرات سیلیکون نیز با همین نسبت استفاده شد. سپس به صورت قرص هایی با قطر 25mm و ضخامت $3/5\text{mm}$ تحت فشار 15MPa توسط پرس تک محوری، در قالب هایی از جنس فولاد زنگ نزن، پرس شدند. بدنه های پرس شده در دماهای 1100 ، 1150 ، 1200 ، 1250 و 1300°C در کوره لوله ای (Exciton Model: BE-96) تحت اتمسفر نیتروژن با دبی حجمی



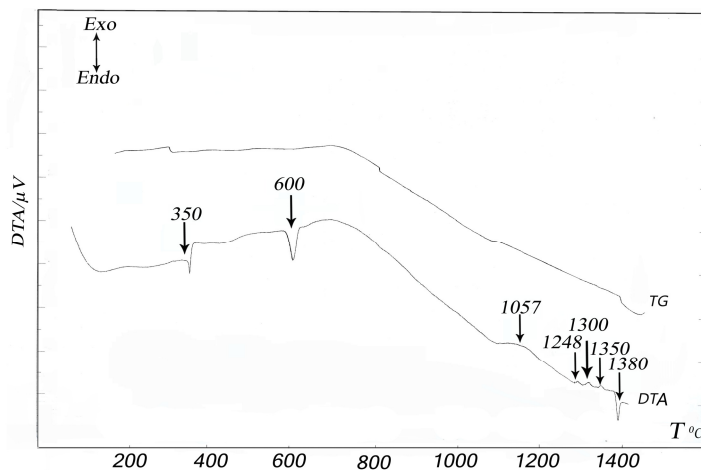
شکل ۲- آنالیز تفرق اشعه ایکس از کوردیریت سنتز شده در دماهای مختلف. C: کوردیریت، E: اسپینل، A: کوراندوم

Fig. 2. XRD patterns of cordierite composite, sintered at different temperatures, C: Cordierite, A: Curandum, E: Spinel

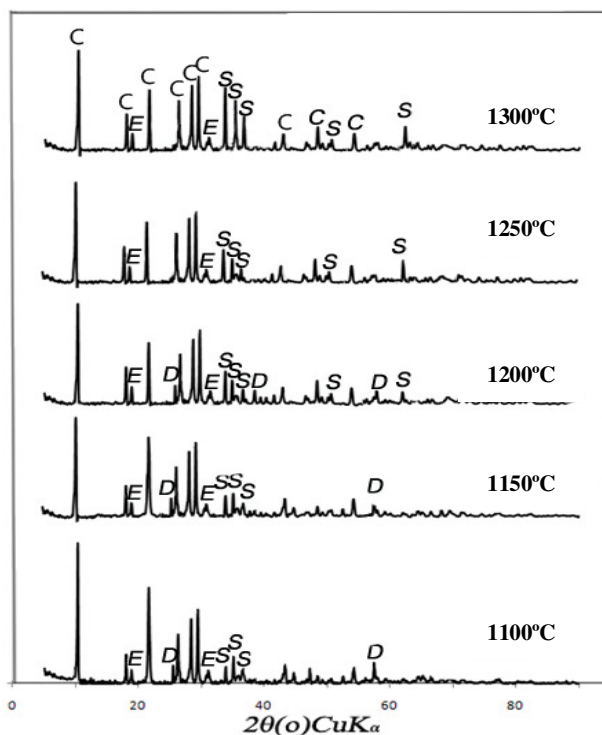
ذرات نانو سیلیکون بوده که توسط بررسی آنالیز فازی (XRD) نمونه‌های تفجوشی شده در 1100°C اثبات گردید. همانطور که ملاحظه می‌گردد کوردیریت، Si_3N_4 ، اسپینل و کوراندوم در آنالیز فازی وجود داشته و در محدوده دمایی بالاتر فاز جدید دیگری مشاهده نگردیده است. در محدوده دمایی 1250°C – 1250°C سه پیک کوچک گرمازا دیده می‌شود که احتمالاً به تشکیل کوردیریت ارتباط دارد [۱۵]. همچنین پیک گرماگیری که در حدود دمای 1400°C دیده می‌شود، به ذوب سیلیکون در ابعاد نانو مربوط می‌شود.

۲-۳- آنالیز حرارتی کامپوزیت کوردیریت- Si_3N_4

نتایج بررسی آنالیز حرارتی برای تعیین دمای شروع واکنش نیتريداسیون از مخلوط خام پودر کوردیریت و پودر نانو سیلیکون تا ماکزیمم دمای 1400°C درجه سانتی‌گراد تحت اتمسفر نیتروژن انجام گردید که نتایج آن در شکل ۳ نشان داده شده است. نتایج حاصله نشان می‌دهد که اولین پیک گرماگیر در حدود دمای 350°C به کاهش وزنی در اثر دست دادن آب ساختاری و دومین پیک گرماگیر در 650°C به دهیتراته شدن کائولینیت مربوط می‌شود. پیک گرمازایی که در محدوده دمایی بین 1100°C – 1200°C مشاهده می‌گردد مربوط به نیتريداسیون



شکل ۳- آنالیز حرارتی از کامپوزیت کوردیت و نانو و سیلیکون تفجوشی شده در دمای ۱۴۰۰°C در اتمسفر نیتروژن
Fig. 3. Differential thermal analysis of Cordierite and nano silicon powder sintered at 1400°C in the nitrogen atmosphere

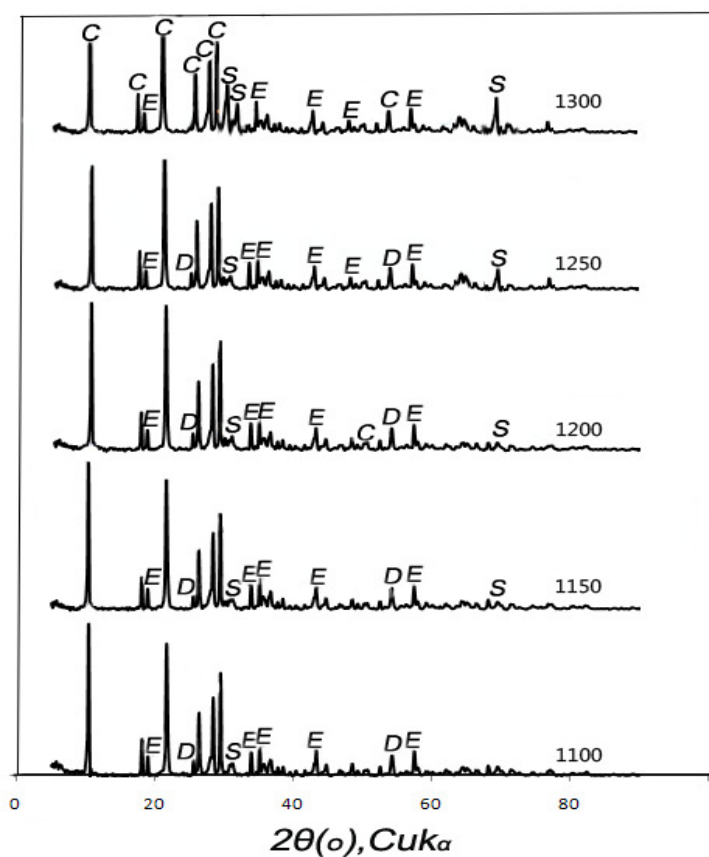


شکل ۴- الگوی پراش پرتو ایکس از کامپوزیت کوردیت-Si₃N₄، تفجوشی شده در ۱۱۰۰، ۱۱۵۰، ۱۲۰۰، ۱۲۵۰ و ۱۳۰۰°C با ۱۰ wt% نانو سیلیکون

Fig. 4. XRD patterns of Si₃N₄-cordierite composite, sintered at 1100, 1150, 1200, 1250 and 1300°C with 10 wt% nano silicon particles, C:Cordierite, S:Silicon nitride, A:Curundum, E:Spinel

طوریکه در 1300°C ما بیشترین شدت را برای فاز کریستالی Si_3N_4 مشاهده می‌کنیم. اگرچه شدت پیکهای Si_3N_4 در کامپوزیت کوردیریت- Si_3N_4 با استفاده از ذرات سیلیکون با سایز میکرو نیز با افزایش دما افزایش می‌یابد، اما شدت این پیکها کمتر از پیکهای گرفته شده با استفاده از پودر سیلیکون با سایز نانو می‌باشد. شدت پیکهای کوردیریت و اسپینل تقریباً ثابت هستند اما با افزایش دما شدت پیکهای کوردیریت کاهش می‌یابد.

۳-۳- آنالیز فازی کامپوزیت کوردیریت- Si_3N_4 با استفاده از نانو و میکرو ذرات سیلیکون
شکل‌های ۴ و ۵ الگوهای پراش پرتو ایکس (XRD) برای کامپوزیت کوردیریت- Si_3N_4 با ۱۰wt% نانو و میکرو سیلیکون در دماهای 1100°C ، 1150°C ، 1200°C و 1250°C را نشان می‌دهد. در این الگو کوردیریت بعنوان فاز اصلی به همراه آن Si_3N_4 ، اسپینل ($\text{MgO}\cdot\text{Al}_2\text{O}_3$) و کوردونوم نیز مشاهده می‌گردد. در شکل ۴ مشاهده می‌شود که با افزایش دما شدت پیکهای Si_3N_4 افزایش می‌یابد به



شکل ۵- الگوی پراش پرتو ایکس از کامپوزیت کوردیریت- Si_3N_4 ، پخته شده در 1100°C ، 1150°C ، 1200°C ، 1250°C و 1300°C با ۱۰wt% میکرو سیلیکون

Fig. 5. XRD patterns of Si_3N_4 -cordierite composite, sintered at 1100, 1150, 1200, 1250 and 1300°C, with 10 wt% micro silicon particles.

نکته جالب توجه تشکیل Si_3N_4 در دمای 900°C با استفاده از ذرات نانو سیلیکون می باشد (شکل ۶). هرچند شدت پیک های Si_3N_4 تشکیل شده با استفاده از ذرات نانو سیلیکون ضعیف بوده اما نشان دهنده تشکیل این فاز در دمای کمتری نسبت به دمای تشکیل آن می باشد. با استفاده از ذرات میکرو سیلیکون این فاز مشاهده نگردید (شکل ۷). در فرایند نیتریده کردن مستقیم سیلیکون فلزی، ابتدا فیلم نازکی از Si_3N_4 روی سطح ذرات Si تشکیل می شود و به مرور نیتروژن از این لایه به داخل ذره نفوذ می کند تا کل ذره تبدیل به سیلیکون نایتراید شود. با کاهش اندازه ذرات در اندازه نانو و افزایش سطح ویژه واکنش پذیری سیلیکون با گاز ازت زیاد شده و عمق نفوذ نیتروژن به دلیل استفاده ذرات با سایز کوچکتر افزایش می یابد و به همین دلیل مقدار بیشتری از Si_3N_4 در مقایسه با استفاده از ذرات با سایز میکرون تشکیل شده و رشد کریستالهای آن نیز افزایش می یابد [۱۳]. از طرف دیگر به دلیل محدوده باریک پخت کوردیریت، استفاده از نانو ذرات سیلیکون موجب کاهش دمای تشکیل سیلیکون نایتراید می گردد، بنابراین از ذوب کوردیریت در طی فرایند تفجوشینگ در دمای بالا جلوگیری کرده و عدم حضور فاز مذاب باعث بهتر نیتریده شدن قطعه بخصوص در عمق آن می گردد.

شکل ۶- الگوی پراش پرتو ایکس از کامپوزیت کوردیت- Si_3N_4 با ۳ wt% نانو سیلیکون سنتز شده در 900°C

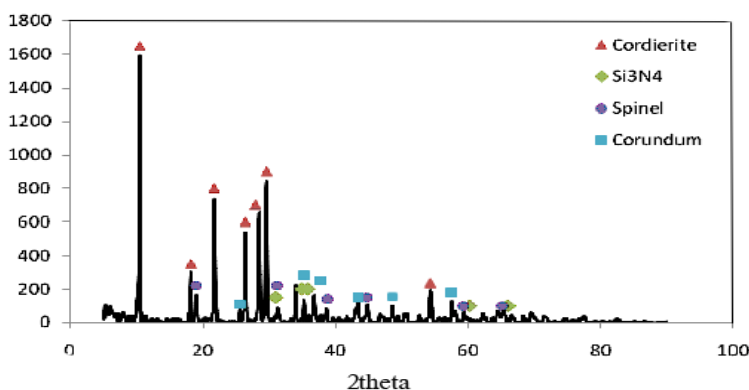
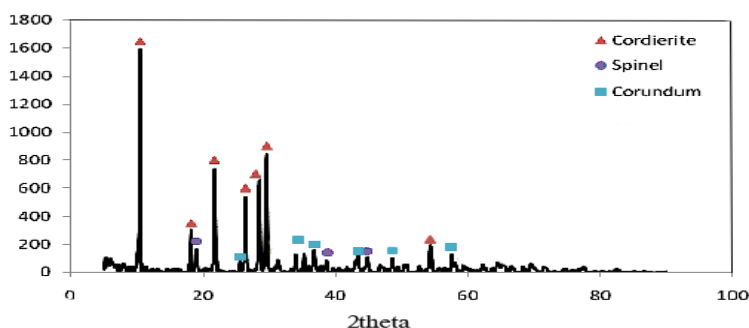


Fig. 6. XRD patterns of Si_3N_4 -cordierite composite, with 3%wt nano silicon particles synthesis in 900°C

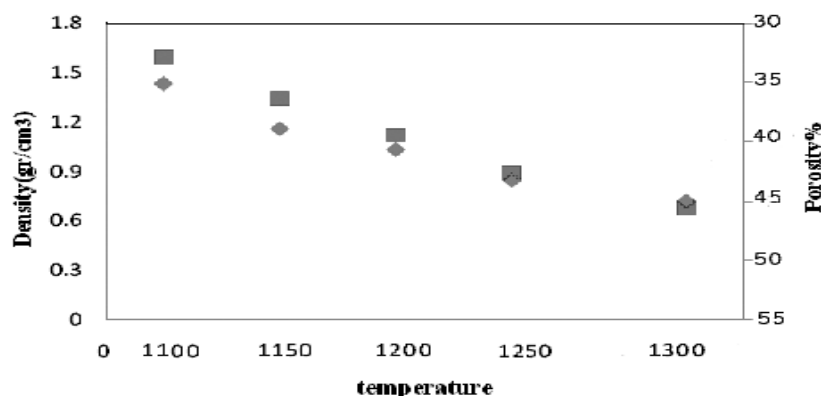


شکل ۷- الگوی پراش اشعه ایکس از کامپوزیت کوردیت- Si_3N_4 با استفاده از ۳ wt% میکرو سیلیکون سنتز شده در 900°C

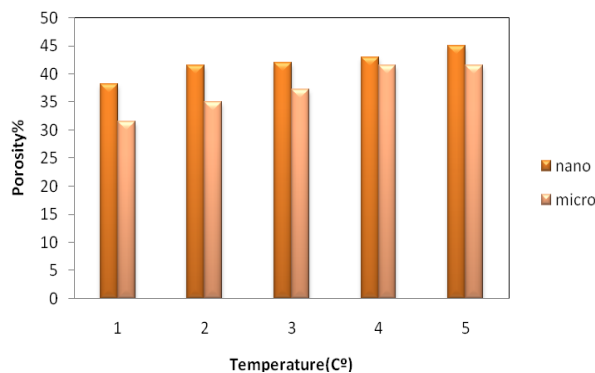
Fig. 7. XRD patterns of Si_3N_4 -cordierite composite, with 3%wt nano silicon particles synthesis in 900°C

می‌باشد که این به دلیل افزایش حجم در اثر تبدیل Si به Si_3N_4 می‌باشد. افزایش تخلخل ناشی از افزایش حجم در کامپوزیت کوردیریت- Si_3N_4 نیز بدلیل افزایش نیتريداسیون ذرات نانو سیلیکون است. توزیع اندازه تخلخل‌ها با کاهش اندازه ذرات سیلیکون به مقادیر بالاتری افزایش می‌یابد. زیرا سطح ویژه برای ذرات نانو سیلیکون ($12-13 \text{ m}^2/\text{gr}$) بیشتر از ذرات میکرو سیلیکون ($1/6-2 \text{ m}^2/\text{gr}$) می‌باشد. بنابراین نیتريداسیون بیشتر و افزایش حجم بیشتری خواهیم داشت.

۳-۴-تأثیر میکرو و نانو ذرات سیلیکون بروی دانسیته کامپوزیت کوردیریت- Si_3N_4
 شکل ۸ و ۹ منحنی دانسیته و تخلخل کامپوزیت کوردیریت- Si_3N_4 را با استفاده از ۱۰wt% نانو و میکرو ذرات سیلیکون که در دما ۱۱۰۰-۱۳۰۰°C تف‌جوشی شده‌اند، نشان می‌دهد. همانطور که ملاحظه می‌گردد، دانسیته در هر دو کامپوزیت با افزایش دما کاهش می‌یابد. کاهش دانسیته در کامپوزیت کوردیریت- Si_3N_4 با استفاده از نانو ذرات سیلیکون بیشتر از میکرو ذرات سیلیکون



شکل ۸- منحنی دانسیته کامپوزیت کوردیریت- Si_3N_4 با ۱۰wt% نانو و میکروسیلیکون، تف‌جوشی شده در دماهای مختلف. ▲ میکرو، ■ نانو
Fig. 8. Density of Si_3N_4 -Cordierite composite with 1, 3, 5 and 10%wt nano and micro silicon particles. sinterd at different temperature. ▲ nano, ■micro



شکل ۹- منحنی میزان تخلخل کامپوزیت کوردیریت- Si_3N_4 با ۱، ۳، ۵ و ۱۰wt% نانو و میکرو سیلیکون تف‌جوشی شده در ۱۱۰۰°C
Fig. 9. Porosity of Si_3N_4 -Cordierite composite with 1, 3, 5 and 10% nano and micro silicon particles sinterd at 1100 °C

دمای ذوب کوردیریت می‌باشد مورفولوژی‌های مختلفی از سیلیکون نایتراید مشاهده می‌شود (شکل ۱۰ d). مورفولوژی اول سوزنهای بلندی با ارتفاع $1\ \mu\text{m}$ و قطر چند نانومتر (قسمتهایی که در شکل ۱۰-d نشان داده شده است) دیگری ذرات هم محور کوچکی در حد میکرومتر که در بعضی قسمتها به صورت آگلومره در آمده‌اند که می‌تواند به مکانیزم SDP (انحلال، رسوب، نفوذ) مربوط می‌شود. مورفولوژی سوزنی شکل از طریق مکانیزم بخار - مایع - جامد تشکیل می‌شوند [۱۳]. تشکیل فاز سوزنی شکل سیلیکون نایتراید در دمای 1300°C ، تشکیل فاز مایع را در این دما تایید می‌کند که می‌تواند دلیل خوبی برای استفاده از نانو سیلیکون برای کاهش دمای تشکیل سیلیکون نایتراید باشد.

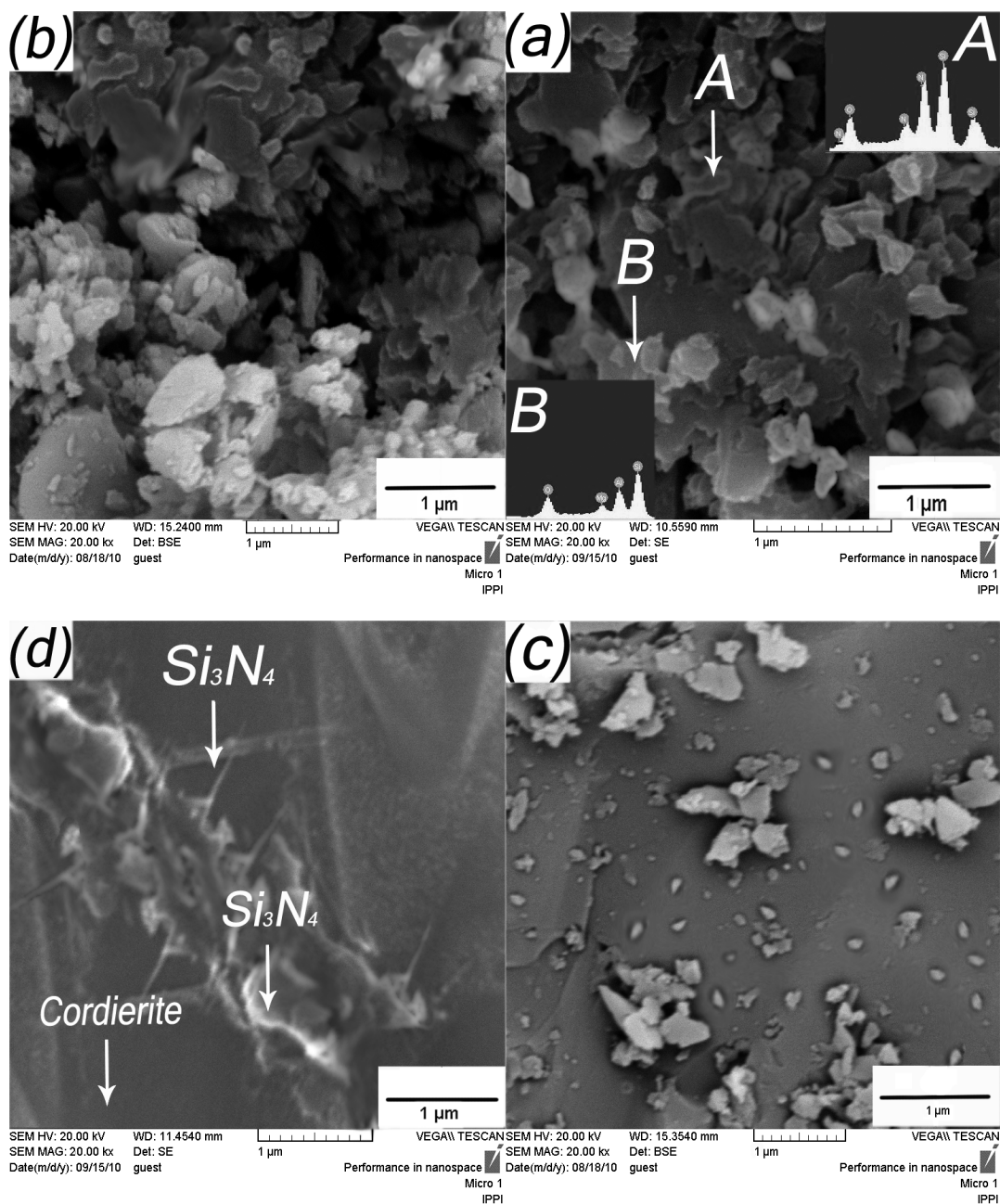
۴- نتیجه گیری

تشکیل Si_3N_4 به صورت درجا در کامپوزیت کوردیریت- Si_3N_4 تحت تاثیر اندازه ذرات سیلیکون و توزیع اندازه ذرات سیلیکون می‌باشد. با استفاده از ذرات کوچکتر در اندازه نانو و افزایش سطح ویژه نرخ واکنش در دمای پایین افزایش می‌یابد. کاهش اندازه ذره باعث افزایش نیتريداسیون در دمای پایین‌تر و منجر به کاهش دمای نهایی واکنش می‌گردد. به دلیل تشکیل Si_3N_4 درجا در کامپوزیت کوردیریت- Si_3N_4 و افزایش حجم مقدار زیادی تخلخل در ماتریس باقی می‌ماند.

۳-۵- تاثیر نانو و میکرو ذرات سیلیکون بر روی ریزساختار کامپوزیت کوردیریت- Si_3N_4 سنتز شده در دماهای 1100°C و 1300°C

شکل ۱۰ a-b تصویر میکروسکوپ الکترونی کامپوزیت کوردیریت- Si_3N_4 سنتز شده با استفاده از ۱۰wt% میکرو نانو سیلیکون در دمای 1100°C و شکل ۸ c-d کامپوزیت کوردیریت- Si_3N_4 سنتز شده با همان نسبت در دمای 1300°C را نشان می‌دهد. نتایج آنالیز EDS نشان می‌دهد که ذرات خاکستری شامل عناصر Al، Mg و Si ذرات سفید شامل عناصر Si و N می‌باشند. با مقایسه شکل ۸ a-b و c-d در کامپوزیت سنتز شده با استفاده از ذرات نانو سیلیکون ریزساختار Si_3N_4 ریزتر و هموزن‌تر از ریز ساختار به دست آمده با ذرات میکرو سیلیکون می‌باشد. هر چند در بعضی قسمتها آگلومره شدن مشاهده می‌شود. این نشان می‌دهد که با کاهش اندازه ذرات در حد نانو و افزایش سطح ویژه سیلیکون، واکنش دهی با گاز نیتروژن بیشتر شده و ساختار یکنواختی از بلورهای Si_3N_4 بدست آمده است. از طرفی، جداسازی فازی بین کوردیریت و Si_3N_4 بدلیل اختلاف دمای ذوب بین کوردیریت و Si_3N_4 مشاهده می‌شود.

در این تصاویر تشکیل فاز نایتراید بروی سطح کوردیریت آگلومره شده با مورفولوژی هم محور بخوبی دیده می‌شود. با افزایش بیشتر دما تا 1300°C که نزدیک به



شکل ۱۰- تصویر میکروسکوپ الکترونی (SEM) کامپوزیت کوردیریت-Si₃N₄ سنتز شده با استفاده از 10wt% میکرو سیلیکون (a) میکرو سیلیکون در دمای ۱۱۰۰ °C (b) نانو سیلیکون در دمای ۱۱۰۰ °C (c) میکرو سیلیکون در دمای ۱۳۰۰ °C (d) نانو سیلیکون در دمای ۱۳۰۰ °C.

Fig. 10. Scanning electron micrographs of Si₃N₄-cordierite composite with 10wt%, (a) micro silicon at 1100 °C, (b) Nano silicon at 1100°C, (c) micro silicon at 1300°C, (d) Nano silicon at 1300°C.

after exposure in industrial gas turbines”, Journal of European Ceramic Society, Vol. 22, 2002, pp. 2789–2797.

[9] V. Pavarajarn, T. Vongthavorn, P. Praserttham, “Enhancement of direct nitridation of silicon by common metals in silicon nitride processing”, Ceramic International, Vol. 33, 2007, pp. 675–680.

[10] A. Demir, Z. Tatli, F. Caliskan, A.O. Kurt, “Carbothermal reduction and nitridation of quartz mineral for the production of alpha silicon nitride powders”, Materials Science Forum, Vol. 554, 2007, pp. 163–168.

[11] M.D. Alcalá, J.M. Criado, C. Real, “Influence of the experimental conditions Predecki”, P. and Haas, J., “Structural aspects of the lattice thermal expansion of hexagonal cordierite”, Journal of American Ceramic Society, Vol. 70, 1987, pp. 175–182.

[12] R.M. Smart, F.P. Glasser, “The subsolidus phase equilibria and melting temperatures of MgO–Al₂O₃–SiO₂”, Ceramic International, Vol. 7 (3), 1981, pp. 90–97.

[13] A.J. Pyzik, D.F. Carrol, “Technology of Self-Reinforced Silicon Nitride” Annual Review of Materials Science, Vol. 24, 1994, pp. 189-214.

[14] F. Chang, T. Liou¹, F. Tsai, “The nitridation kinetics of silicon powder compacts”, Thermochemica Acta, Vol. 354, 2000, pp. 71-80.

[15] Sh. Liu, Y. Zeng, D. Jiang, “Fabrication and characterization of cordierite bonded porous SiC ceramics”, Ceramics International, Vol. 35 (2), 2009, pp. 597-602.

مراجع

[1] M. Nogami, S. Ogawa, K. Nagasaki, “Preparation of cordierite glass by sol–gel process”, Journal of Materials Science, Vol. 24, 1989, pp. 4339–4342.

[2] A.M. Kazakos, S. Komarneni, R. Roy, “Sol–gel processing of cordierite: effect of seeding and optimisation of heat treatment”, Journal of Materials Research, Vol. 5, 1990, pp. 1095–1103.

[3] J.H. Jean, T.K. Gupta, “Liquid-phase sintering in the glass–cordierite system”, Journal of Materials Sciences, Vol. 27, 1992, pp. 1575–1584.

[4] S.H. Knickerbocker, A.H. Kumar, L.W. Heron, “Cordierite glassceramics for multilayer ceramic packaging”, American Ceramic Society Bulletin, Vol. 72 (1), 1993, pp. 90–95.

[5] K. Sumi, Y. Kobayashi, E. Kato, “Low temperature fabrication of cordierite from kaolinite and magnesium hydroxide with boron oxide additions”, Journal of American Ceramic Society, Vol. 82 (3), 1994, pp. 783–785.

[6] R. Petrovic, Dj. Janackovic, S. Zec, S. Drmanic, Lj. Kostic-Gvozdenovic, “Phase-transformation kinetics in triphasic cordierite gel”, Materials Research, Vol. 16 (2), 2002, pp. 451-458.

[7] K. Houjou, K. Ando, M.C. Chu, S.P. Liu, S. Sato, “Effect of sintering additives on the oxidation behavior of Si₃N₄ ceramics at 1300°C”, Journal of European Ceramic Society, Vol. 25, 2005, pp. 559–567.

[8] H.T. Lin, M.K. Ferber, “Mechanical reliability evaluation of silicon nitride ceramic components