

微波烧结工艺对 Sialon 陶瓷刀具材料力学性能的影响

陈 朋, 邹 斌, 薛 锴

(山东大学机械工程学院, 高效洁净机械制造教育部重点实验室, 机械工程国家级实验教学示范中心, 济南 250061)

摘 要: 采用微波烧结技术制备 Sialon 陶瓷刀具材料, 主要研究烧结温度和保温时间对 Sialon 陶瓷刀具材料力学性能的影响规律, 并结合微观形貌对其影响规律进行分析, 旨在制备性能优异的陶瓷刀具材料。结果表明: 在烧结温度为 1 600 °C、保温时间为 15 min 时, 刀具材料具有最优的力学性能, 其致密度、Vickers 硬度、断裂韧性分别为 98.9%、17.8 GPa 和 5.9 MPa·m^{1/2}。在此烧结工艺下, 样品的微观组织均匀, 内部气孔较少, 有利于材料力学性能的提高。采用微波烧结技术可以在较短的保温时间内得到性能优异的陶瓷刀具材料, 提高了生产效率。

关键词: 微波烧结; 温度; 保温时间; 力学性能; Sialon 陶瓷刀具材料

中图分类号: TG711 文献标志码: A 文章编号: 0454-5648(2022)12-3236-07

网络出版时间: 2022-11-14



Effect of Microwave Sintering Process on Mechanical Properties of Sialon Ceramic Tool Materials

CHEN Peng, ZOU Bin, XUE Kai

(School of Mechanical Engineering, Shandong University, Key Laboratory of High Efficiency and Clean Machinery Manufacturing, Ministry of Education, National Experimental Teaching Demonstration Center of Mechanical Engineering, Jinan 250061)

Abstract: Sialon ceramic tool materials were prepared by a microwave sintering technology. The influences of sintering temperature and holding time on the mechanical properties of Sialon ceramic tool materials were investigated, and the microstructure was analyzed. The results show that the tool material obtained at the sintering temperature of 1 600 °C and the holding time of 15 min has the optimum mechanical properties (*i.e.*, density of 98.9%, hardness of 17.8 GPa and fracture toughness of 5.9 MPa·m^{1/2}, respectively). In this sintering process, the material has a uniform microstructure with little internal pores, which is conducive to the improvement of its mechanical properties. The ceramic tool material with the superior mechanical properties can be obtained for a short time of heat preservation as the microwave sintering technology is used, thus improving the production efficiency.

Keywords: microwave sintering; temperature; holding time; mechanical properties; Sialon ceramic tool materials

高速切削因其加工成本低、刀具力学性能好等优点, 在航空航天领域制造中得到了广泛的应用, 是提高生产率和产量的关键制造技术之一^[1-3], 刀具的力学性能已成为保证加工效率的关键因素。陶瓷材料具有高硬度、高耐磨性以及优异的高温性能等优点, 广泛应用于一些难加工材料的高速加工中, 但在加工过程中刀具磨损严重依然存在, 从而增加

了加工成本, 降低了加工表面质量。随着高速切削技术的发展和应用, 对高速加工用陶瓷材料提出了更高要求^[4-7]。Sialon 陶瓷属于氮化硅基陶瓷中一类^[8], 它是 Si₃N₄ 和 Al₂O₃ 的固溶体, 兼具了 Si₃N₄ 和 Al₂O₃ 基陶瓷材料的特点, 以及优异的抗热震性和化学稳定性、低的热膨胀系数等优点, 被认为是最具有潜力和竞争力的陶瓷刀具材料之一^[9-12]。

收稿日期: 2022-06-10。 修订日期: 2022-07-08。

基金项目: 国家自然科学基金(52175336)。

第一作者: 陈 朋(1995—), 男, 硕士研究生。

通信作者: 邹 斌(1978—), 男, 博士, 教授。

Received date: 2022-06-10. Revised date: 2022-07-08.

First author: CHEN Peng (1995—), male, Master candidate.

E-mail: a13256357191@163.com

Correspondent author: ZOU Bin (1978—), male, Ph.D., Professor.

E-mail: cajetzb@163.com

目前, Sialon 陶瓷材料的制备方法主要有无压烧结(PLS)、热压烧结(HP)、热等静压烧结(HIP)、气压烧结(GPS)、放电等离子烧结(SPS)和微波烧结(MS)^[5, 13-14]。微波烧结作为一种新型烧结技术, 是利用微波与材料的耦合作用产生热量, 由于介质材料自身消耗电磁场中的能量而发热, 与传统加热方式相比, 微波烧结具有体积加热和选择性加热的特点, 加热均匀性好, 材料内部没有热梯度, 并且具有加热速率快、加热效率高等优点, 可以使材料快速致密化^[15-18]。近年来, 部分国内外学者采用微波烧结技术制备了 Sialon 陶瓷材料并取得了一定的成果, Chockalingam 等^[19]研究了微波烧结对复合材料致密化、微观形貌和力学性能的影响, 并与无压烧结进行对比, 研究发现, 与无压烧结相比, 微波烧结的样品具有更高的密度、断裂韧性, β -sialon 晶粒具有更高的长径比。邱雄述^[20]采用微波烧结技术以 Al_2O_3 粉、Al 粉、Si 为原料制备 SIALON 陶瓷, 研究发现, 微波烧结可以使晶粒细化, 致密化速率加快, 获得较高密度的试样。

微波烧结 Sialon 陶瓷材料虽体现出许多优势, 但目前其烧结工艺尚未成熟^[5], 极少有研究微波烧结工艺对 Sialon 陶瓷刀具材料的影响。本研究以 Sialon 粉为基体、 Y_2O_3 为烧结助剂, 采用微波烧结技术制备出 Sialon 陶瓷刀具材料, 研究了烧结温度和保温时间对材料致密化、微观组织、力学性能的影响。

1 实验

1.1 样品制备

采用 Sialon[纯度(质量分数)99.3%, 粒径 $1\ \mu\text{m}$]、 Y_2O_3 (纯度 99.9%, 粒径 $1\ \mu\text{m}$)为原料制备 Sialon 陶瓷刀具材料。将材料以一定比例混合放入行星式球磨机中进行球磨, 球磨介质为无水乙醇, 球磨时间为 24 h。当球磨结束前 3 h 时, 向球磨浆料中加入 2%(质量分数)的 PVA 溶液, 然后继续球磨至时间结束。将混合浆料置于干燥箱中干燥, 并过筛。称取一定量干燥后的材料置于模具中冷压成型, 压力选择 250 MPa, 保压 3 min。将成型素坯置于 2.45 GHz XO-8KW 微波烧结炉中进行烧结。为了研究微波烧结温度和保温时间对 Sialon 陶瓷刀具材料的影响。选择烧结温度范围为 1400~1700 $^{\circ}\text{C}$, 每 50 $^{\circ}\text{C}$ 设为 1 个实验温度, 从中选出最优的烧结温度。在最优的烧结温度下分别保温 5、10、15 min 和 20 min, 探究不同保温时间对 Sialon 陶瓷刀具材料性能的影响。

首先以 50 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 的加热速率升温至 800 $^{\circ}\text{C}$ 保温 5 min, 以保证素坯中的 PVA 完全排出。为了防止在加热过程中坍塌断裂而影响烧结性能, 在 800 $^{\circ}\text{C}$ 至 1400 $^{\circ}\text{C}$ 之间选择 30 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 的升温速率, 超过 1400 $^{\circ}\text{C}$ 以 20 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 的升温速率升至最高温度。

1.2 样品表征

将样品研磨抛光后进行性能测试, 在室温环境下用 Archimedes 法测量试样的实际密度, 测量介质为蒸馏水。用 JA2103 型电子天平测量试样在空气中的质量, 用排水法测量试样的体积, 由式(1)计算试样的实际密度, 测量 5 个有效试样并取平均值。利用 MHVS8-30AT 型 Vickers 硬度计测量试样硬度值, 加载值为 196 N, 保压 15 s, 在高倍显微镜下测量压痕两对角的长度 $2a_1$ 、 $2a_2$, 取平均值 $2a$ 带入式(2)中计算 Vickers 硬度。采用压痕法测量断裂韧性, 在测 Vickers 硬度的同时, 测量裂纹扩展长度 $2c_1$ 、 $2c_2$, 取平均值 $2c$ 和硬度测试中 a 带入式(3)计算断裂韧性^[21], 测 5 个有效压痕, 取计算结果的平均值作为材料的 Vickers 硬度和断裂韧性。利用 SU3500 型扫描电子显微镜观察刀具断面微观形貌。

$$\rho = \frac{m}{V} \quad (1)$$

$$H_V = \frac{P \sin(\frac{\theta}{2})}{2a^2} \quad (2)$$

$$K_{IC} = 0.203 \times (c/a)^{-3/2} \times \sqrt{a} \times H_V \quad (3)$$

式中: ρ 为试样的实际密度; H_V 为试样的 Vickers 硬度(GPa); P 为加载载荷(N); θ 为压头相对面的夹角($^{\circ}$); K_{IC} 为试样的断裂韧性。

2 结果与讨论

2.1 烧结温度对材料微观组织、致密度、力学性能的影响

2.1.1 微观组织 图 1 为 Sialon 陶瓷刀具材料不同温度下样品的断口形貌 SEM 照片。由图 1a 和图 1b 可见, 当温度为 1400、1450 $^{\circ}\text{C}$ 时, 有大量的圆球状晶粒, 长棒状晶粒较少, 晶粒断裂模式主要为沿晶断裂, 存在少量的穿晶断裂, 同时可以观察到有较多的孔隙, 表明当烧结温度较低时, 缺少晶粒长大的烧结驱动力, 所以收缩尚未完成, 最终留下较多孔隙^[22]。由图 1c 和图 1d 可见, 孔隙在逐渐减少, 当 1550 $^{\circ}\text{C}$ 时, 已经很少存在巨大的孔隙, 烧结过程基本完成。晶粒的断裂模式主要为穿晶断裂, 存在少量的沿晶断裂。由图 1e 可见, 当温度升高至 1600 $^{\circ}\text{C}$ 时, 孔隙进一步收缩, 烧结

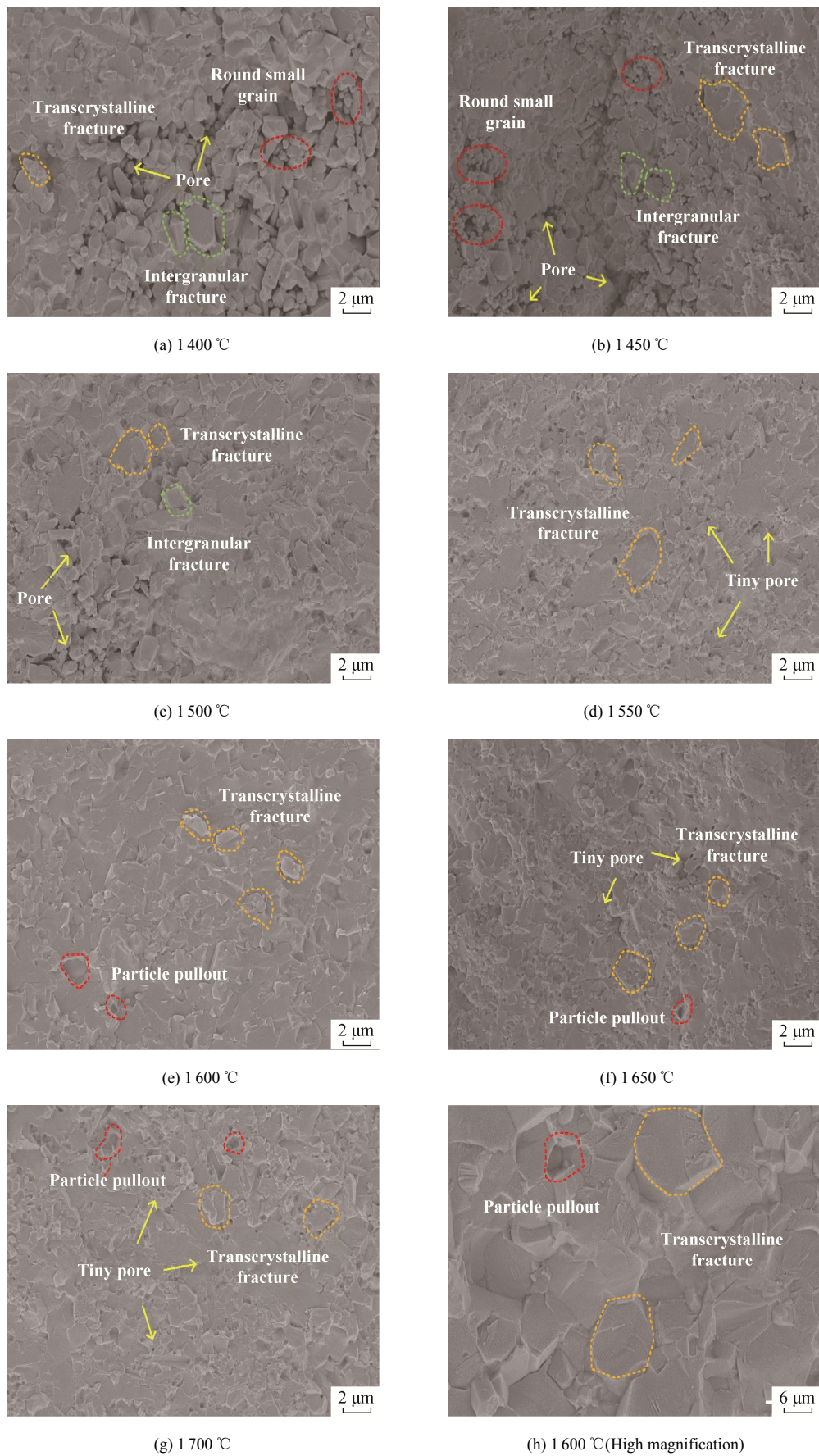


图1 Sialon 陶瓷刀具材料不同温度时的断口形貌

Fig. 1 Fracture morphology of Sialon ceramic tool materials at different temperatures

过程完成,材料致密度最高,晶粒断裂模式主要是穿晶断裂,伴随着少量的晶粒拔出,材料性能最佳。由图 1f 和图 1g 可见,当温度继续升高至 1 650、1 700 °C 时,温度的增加使液相数量急剧增加,晶界快速移动,晶粒粗化严重,产生了许多微小的气孔,当烧结完成后,这些气孔不能完全封闭,从而留下一些微小孔隙,影响材料的性能,晶粒断裂模式与 1 600 °C 相似,以穿晶断裂为主。

2.1.2 致密度、力学性能 图 2 为烧结温度对 Sialon 陶瓷刀具材料致密度的影响关系曲线。由图 2 可知,随着温度的增加,材料的致密度呈现先增大后减小趋势:当温度为 1 600 °C 时,样品致密度可达到 $98.9\% \pm 0.1\%$,并达到峰值;当温度继续增加时,致密度有所下降。根据对微观组织的分析可知,温度升高会增加材料晶粒生长驱动力,使材料内部气孔减少,但是温度过高会造成晶粒异常长大,从而降低材料的致密度。因此采用微波烧结技术制备 Sialon 陶瓷刀具材料时,最佳烧结温度为 1 600 °C。

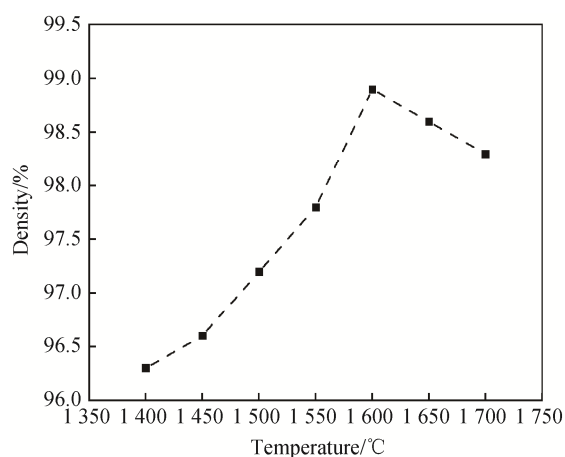
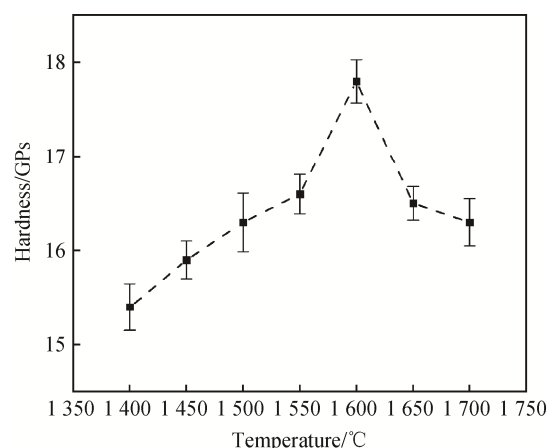


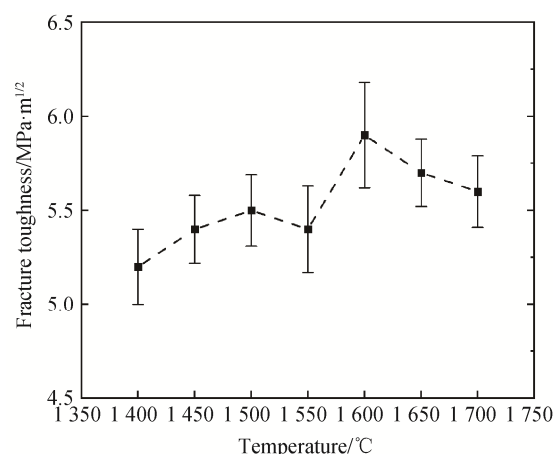
图 2 烧结温度对 Sialon 陶瓷刀具材料致密度的影响关系曲线
Fig. 2 Influence curve of sintering temperature on density of Sialon ceramic tool materials

图 3 为烧结温度对 Sialon 陶瓷刀具材料硬度和断裂韧性的影响关系曲线。由图 3 可以看出,随着温度的增高,Sialon 陶瓷的硬度先增大后减小。在 1 600 °C 之前,随着温度的升高材料的硬度有着明显的增大趋势,最高可达 17.8 GPa,而且当温度继续增加时,Vickers 硬度又逐渐变小,这是因为过度烧结使材料致密度下降,从而影响材料的硬度。Sialon 陶瓷的断裂韧性和硬度有着相似的变化趋势,随着烧结的进行。当温度为 1 600 °C 时,断裂韧性最高为 $5.9 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ 。材料

的断裂韧性与晶粒生长情况密切相关,随着温度的增加,长棒状晶粒逐渐增多,韧性逐渐增大^[23]。在 1 600 °C 时,晶粒生长情况最佳,长棒状晶粒多且饱满,断裂韧性最高。由此可知,微波烧结温度为 1 600 °C 时,Sialon 陶瓷刀具材料的致密化程度最高、力学性能最好。



(a) Hardness curve



(b) Fracture toughness curve

图 3 烧结温度对 Sialon 陶瓷刀具材料力学性能的影响关系曲线

Fig. 3 Influence curve of sintering temperature on mechanical properties of Sialon ceramic tool materials

2.2 保温时间对材料微观组织、致密度、力学性能的影响

2.2.1 微观组织分析 图 4 为温度 1 600 °C 时不同保温时间下样品的断面形貌 SEM 照片。由图 4a 可见,当保温时间为 5 min 时,断面中可以观察到许多细小的气孔,并存在小圆球状晶粒,晶粒断裂模式以穿晶断裂为主,并伴随着大量沿晶断裂以及少量的晶粒拔出。由图 4b 可见,小圆球状晶粒减少,沿晶断裂模式减少,同时可以观察到长大后晶粒的

断裂模式为穿晶断裂,气孔相对较少。由图 4c 可见,当保温时间增加到 15 min 时,烧结比较充分,晶粒完全长大,基本不存在气孔,致密化程度最高,长大后晶粒的断裂模式主要是穿晶断裂。由图 4d 可见,随着保温时间的继续增加,晶粒过度生长,周围晶粒不能填补大晶粒间的空间,形成了一些小的

气孔,断裂模式主要为穿晶断裂,并伴随着少量的沿晶断裂。随着保温时间的增加,晶粒在不断长大。研究表明,晶粒长大可以促进晶界区的缩小,导致自由能减小,从而影响材料的力学性能,所以应控制晶粒的大小以及发展,否则会造成晶粒异常长大,削弱材料性能^[24]。

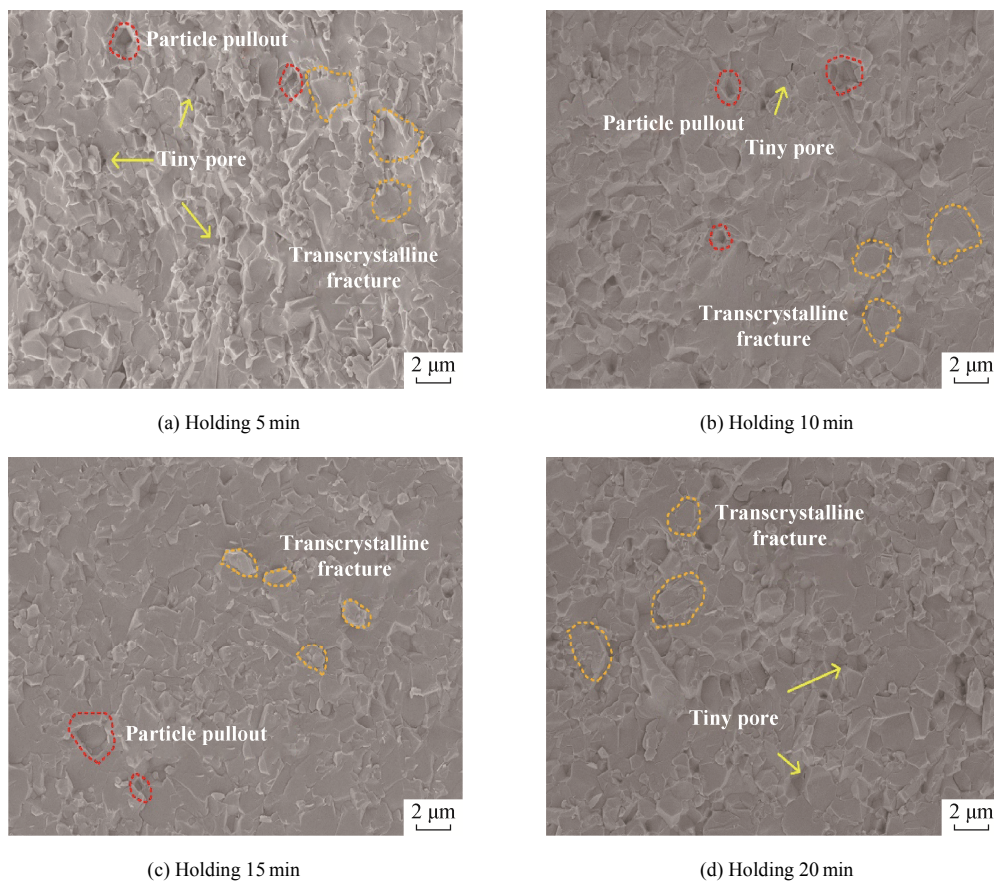


图 4 Sialon 陶瓷刀具材料不同保温时间的断口形貌

Fig. 4 Fracture morphology of Sialon ceramic cutting tool materials with different holding time

2.2.2 致密度、力学性能分析 图 5 为保温时间对 Sialon 陶瓷刀具材料致密度的影响关系曲线。由图 5 可知,随着保温时间的增加,材料的致密度先增大后减小,当保温时间为 15 min 时致密化程度最高。由 2.2.1 节可知,充足的保温时间给晶粒提供了足够的生长驱动力,使材料内部气孔减少,但是过长的保温时间,会使晶粒过度生长并产生一些微小气孔,导致材料致密度下降。

图 6 为保温时间对 Sialon 陶瓷刀具材料力学性能的影响关系曲线。由图 6 可见,随着保温时间的延长,硬度先增大后减小,当保温时间为 15 min 时,硬度最大为 17.8 GPa,结合上述内容,保温时间增加,可以促进材料烧结,气孔减少,致密度增加,材料硬度增大;但当继续延长保温时间时,会使晶

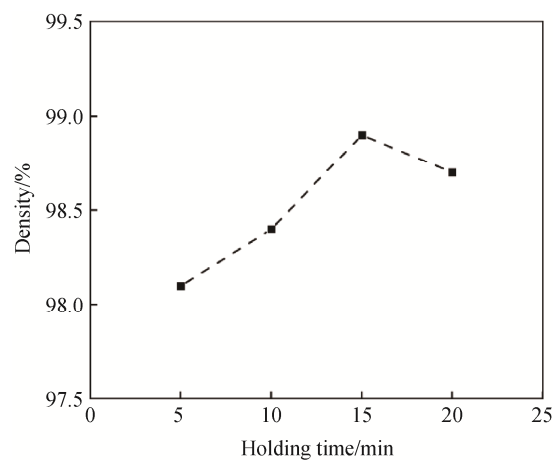
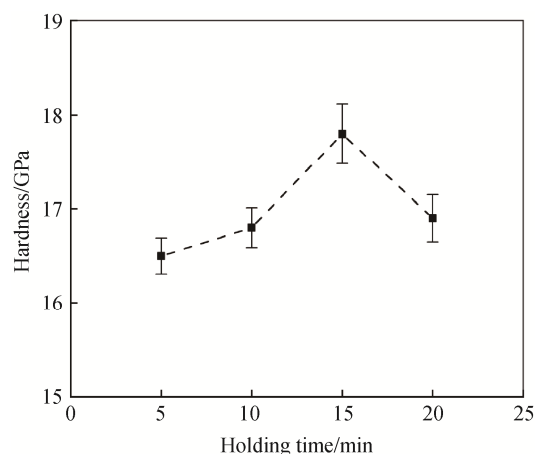


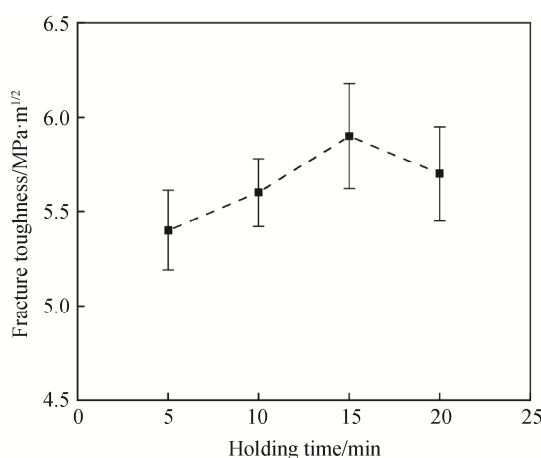
图 5 保温时间对 Sialon 陶瓷刀具材料致密度的影响关系曲线

Fig. 5 Influence curve of holding time on density of Sialon ceramic tool materials

粒异常长大,从而产生气孔,影响材料性能。随着保温时间的增加,断裂韧性变化不明显,当保温时间为 10、15、20 min 时分别为 5.6、5.9、5.7 MPa·m^{1/2},随着保温时间过长会产生一些气孔,但这些气孔对材料的断裂韧性影响并不大,反而晶粒的生长对材料断裂韧性的提高有着一定的促进作用,但当保温时间延长过多时,对断裂韧性的提高并不明显^[23]。由上述结果可知,保温时间为 15 min 时,Sialon 陶瓷刀具材料的致密度程度最高,综合力学性能最好。



(a) Hardness curve



(b) Fracture toughness curve

图 6 保温时间对 Sialon 陶瓷刀具材料力学性能的影响关系曲线

Fig. 6 Influence curve of holding time on mechanical properties of Sialon ceramic tool materials

3 结论

1) 随着烧结温度的升高,为烧结提供足够的驱动力,晶粒生长填补收缩过程中的孔隙,材料致密度增大,当温度为 1 600 °C 时致密度最高,继续升高温度,因为晶粒异常长大而导致新的气孔出现,性能有所下降。

2) 随着保温时间的增加,晶粒充分长大,烧结逐渐完成,气孔减少,材料硬度和断裂韧性增加,但过高的保温时间会使样品过度烧结,产生气孔,影响材料力学性能。

3) 烧结温度和保温时间应控制在一定范围内,过高的温度或者长的保温时间会使晶粒过度生长,使晶粒粗大,产生气孔,降低材料的致密度和力学性能。当温度为 1 600 °C、保温时间为 15 min 时,材料的致密度、力学性能最优,其致密度、Vickers 硬度、断裂韧性分别为 98.9%、17.8 GPa、5.9 MPa·m^{1/2}。

参考文献:

- [1] TU Guizhao, WU Shanghua, LIU Jia, et al. Cutting performance and wear mechanisms of Sialon ceramic cutting tools at high speed dry turning of gray cast iron[J]. Int J Refract Met Hard Mat, 2016, 54: 330–334.
- [2] LONG Ying, ZENG Junjie, YU Donghai, et al. Microstructure of TiAlN and CrAlN coatings and cutting performance of coated silicon nitride inserts in cast iron turning[J]. Ceram Int, 2014, 40(7): 9889–9894.
- [3] 赵斌. 用于高速切削镍基高温合金的陶瓷刀具研制及其性能研究[D]. 济南: 山东大学, 2018.
ZHAO Bin. Development and performance of ceramic cutting tool for high speed cutting of nickel-based superalloy (in Chinese, dissertation). Jinan: Shandong University, 2018.
- [4] SUN Jianfei, HUANG Shun, DING Haitao, et al. Cutting performance and wear mechanism of Sialon ceramic tools in high speed face milling GH4099[J]. Ceram Int, 2020, 46(2): 1621–1630.
- [5] HUANG Xianghui, ZOU Fan, MING Weiwei, et al. Wear mechanisms and effects of monolithic Sialon ceramic tools in side milling of superalloy FGH96[J]. Ceram Int, 2020, 46(17): 26813–26822.
- [6] XU C H, FENG Y M, ZHANG R B, et al. Wear behavior of Al₂O₃/Ti(C,N)/SiC new ceramic tool material when machining tool steel and cast iron[J]. J Mater Process Tech, 2009, 209(10): 4633–4637.
- [7] GRZESIK W, MALECKA J. Documentation of tool wear progress in the machining of nodular ductile iron with silicon nitride-based ceramic tools[J]. Cirp Ann-Manuf Techn, 2011, 60(1): 121–124.
- [8] NEKOUEE K A, AZARI K R. Preparation and characterization of β-SiAlON/TiN nanocomposites sintered by spark plasma sintering and pressureless sintering[J]. Mater Design, 2016, 112: 419–428.
- [9] 洪东波, 袁军堂, 殷增斌. SiAlON 陶瓷刀具材料及其制备技术研究进展[J]. 机械制造与自动化, 2021, 50(4): 1–8.
HONG Dongbo, YUAN Juntang, YIN Zengbin. Mach Building Automat (in Chinese), 2021, 50(4): 1–8.
- [10] MANDAL H, KARA F, TURAN S, et al. Novel SiAlON ceramics for cutting tool applications[J]. Key Eng Mater, 2003, 237: 193–202.
- [11] BITTERLICH B, BITSCH S, FRIEDERICH K. SiAlON based ceramic cutting tools[J]. J Eur Ceram Soc, 2008, 28(5): 989–994.
- [12] 刘光华, 陈克新, 葛振斌, 等. 自增韧 α-sialon 陶瓷的研究进展[J]. 硅酸盐学报, 2003, 31(3): 292–295.
LIU Guanghua, CHEN Kexin, GE Zhenbin, et al. J Chin Ceram Soc, 2003, 31(3): 292–295.

- [13] ESER O, KURAMA S. A comparison of sintering techniques using different particle sized β -SiAlON powders[J]. J Eur Ceram Soc, 2012, 32(7): 1343–1347.
- [14] LAO Xinbin, XU Xiaoyang, JIANG Weihui. Effects of various sintering additives on the properties of β -SiAlON–SiC ceramics obtained by liquid phase sintering[J]. Ceram Int, 2021, 47(9): 13078–13092.
- [15] ZYMELKA D, SAUNIER S, GOEURLOT D, et al. Densification and thermal gradient evolution of alumina during microwave sintering at 2.45GHz[J]. Ceram Int, 2013, 39(3): 3269–3277.
- [16] YIN Zengbin, YUAN Juntang, WANG Zhenhua, et al. Preparation and properties of an $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ti}(\text{C}, \text{N})$ micro-nano-composite ceramic tool material by microwave sintering[J]. Ceram Int, 2016, 42(3): 4099–4106.
- [17] XU G F, ZHUANG H R, WU F Y, et al. Microwave reaction sintering of $\alpha+\beta$ sialon composite ceramics[J]. J Eur Ceram Soc, 1997, 17(5): 675–680.
- [18] PANNEERSELVAM M, RAO K J. A microwave method for the preparation and sintering β -SiAlON[J]. Mater Res Bull, 2003, 38(4): 663–374.
- [19] CHOCKALINGAM S, TRAVER H K. Microwave sintering β -SiAlON– ZrO_2 composites[J]. Mater Des, 2010, 31(8): 3641–3646.
- [20] 邱雄途. Sialon 的微波合成及烧结工艺研究[D]. 湘潭: 湘潭大学, 2006.
- QIU Xionger. Study on microwave synthesis and sintering process of Sialon(in Chinese, dissertation). Xiangtan: Xiangtan University, 2006.
- [21] 周辉军. 低缺陷 $\text{Ti}(\text{C}, \text{N})$ 基金属陶瓷刀具的研制及切削性能研究[D]. 济南: 山东大学, 2014.
- ZHOU Huijun. Development and cutting performance of low defect $\text{Ti}(\text{C}, \text{N})$ -based ceramic tool (in Chinese, dissertation). Jinan: Shandong University, 2014.
- [22] LI Yin, JONES M L. Fabrication and properties of Sialon–ZrN composites by two-step sintering[J]. Int J Refract Met H, 2020, 92: 105292.
- [23] HAKEEM A S, KHAN M, AHMED B A, et al. Synthesis and characterization of alkaline earth and rare earth doped sialon ceramics by spark plasma sintering[J]. Int J Refract Met Hard Mat, 2021, 97: 105500.
- [24] LETWABA L J, TLHABADURA I, DANIYAN I A, et al. Development and microstructural analysis of beta-SiAlONs produced by spark plasma sintering[J]. Mater Today: Proceedings, 2021, 38: 590–594.