

**Статистические методы исследования характеристик
механических свойств материалов на основе нитрида кремния, изготовленных из ультрадисперсных порошков**

Голубцова Е.С., Мельниченко В.В., Урбанович Н.И.
Белорусский национальный технический университет

Известно [1,2], что механические характеристики горячепрессованных материалов на основе нитрида кремния из ультрадисперсных порошков выше, чем у материалов из более крупных порошков.

Цель настоящей работы - изучить твердость и вязкость разрушения конструкционной керамики системы $Si_3N_4 - (Al_2O_3 + Y_2O_3) - TiN$ в зависимости от состава и прилагаемой нагрузки, а также получить математические модели, устанавливающие количественную связь между этими характеристиками, маркой материала, содержанием TiN , оксидов и нагрузкой. Ставилась также задача определить вид разрушения.

Ультрадисперсные порошки нитрида кремния, оксидов натрия и алюминия, нитрида титана смешивали в аттриторе в среде ацетона в течение 20—30 мин. Прессование проводили при температуре 1800—1830°C и одноосном приложении давления 30 МПа.

Твердость определяли по методу Виккерса при нагрузке на индикатор 50—300 Н и комнатной температуре. Коэффициент вязкости разрушения K_{IC} определяли путем измерения диагонали отпечатка при вдавливании индентора и длине трещин по методике работы [3]. Все опыты проводили с применением методов статистического планирования эксперимента [4].

В начале исследовали изменение твердости образцов из $Si_3N_4 - (Al_2O_3 + Y_2O_3)$ и $Si_3N_4 - (Al_2O_3 + Y_2O_3) - TiN$ в зависимости от содержания в них оксидов и нитрида титана при нагрузке $P = 300Н$, обеспечивающей меньший разброс значений твердости. Для этого был использован двухфакторный план 2×3 , где 2 — два уровня материала, а 3 — три уровня содержания TiN (0; 30 и 60% объема). Параметром оптимизации (y_1) была выбрана твердость HV (ГПа) а в качестве факторов указанные материалы (x_1) и содержание TiN (x_2). Ошибка воспроизводимости $S_1 = 0,52 ГПа$ (~4% от среднего значения) определялась по результатам трех параллельных опытов, когда оба фактора находились на верхних уровнях ($x_1 = +1$ и $x_2 = +1$).

Матрица плана и результаты опытов приведены в таблице 1.

В этой таблице x_1 и x_2 — кодированные уровни факторов [$x_1 = -1, Si_3N_4 - (Al_2O_3 + Y_2O_3)$], [$x_2 = +1, Si_3N_4 - (Al_2O_3 + Y_2O_3) - TiN$], y_1 — опытное значение твердости, а y_p — расчетное значение HV .

Таблица 1 - Матрица плана 2×3

N	x_1	x_2	$x_1 x_2$	x_2^2	y_1	y_p
1	-	-	+	+	16,52	17,25
2	-	0	0	0	14,05	13,50
3	-	+	-	+	9,00	9,73
4	+	-	-	+	15,86	16,03
5	+	0	0	0	14,33	14,89
6	+	+	+	+	13,57	13,75

После статистической обработки результатов эксперимента и проверки значимости коэффициентов уравнения получена адекватная модель (1).

$$y_1 = HV = 14,19 + 0,7x_1 - 2,45x_2 + 1,31x_1x_2 \quad (1)$$

Установлено, что наибольшее влияние на твердость оказывает содержание TiN (x_2). Максимальное значение твердости $y_1 = 16,25$ ГПа получено при $x_1 = -1$ и $x_2 = -1$, т.е. при y материала

$Si_3N_4-(Al_2O_3+Y_2O_3)$ без TiN . Добавка TiN в исследуемый материал снижает твердость до $y_1=9$ ГПа при $x_1=-1$ и $x_2=+1$ (60% TiN).

В следующей серии опытов проводили исследования зависимости твердости HV от нагрузки на индентор (x_1) и содержание $TiN(x_2)$ для материала $Si_3N_4-(Al_2O_3+Y_2O_3)-TiN$. Для проведения эксперимента был выбран план 3×3 , где 3 — три уровня нагрузки (50, 150 и 250Н) и три уровня содержания нитрида титана (10, 40, 70%). Ошибка воспроизводимости опытов S_2 составила 0,2ГПа (~4% от среднего значения). Матрица плана и результаты измерения твердости приведены в таблице 2, где x_1 и x_2 — кодированные уровни нагрузки и содержания TiN , а y_2 — твердость HV .

Таблица 2 - Матрица плана 3×3

N	x_1	x_2	x_1x_2	x_1^2	x_2^2	y_2	y_3	y_4	y_5	y_6
1	-	-	+	+	+	16,3	16,01	6,23	7,09	6,40
2	-	0	0	+	0	15,4	14,54	7,23	12,92	6,26
3	-	+	-	+	+	14,5	9,92	6,96	12,61	5,06
4	0	-	0	0	+	15,4	14,72	6,23	6,91	6,66
5	0	0	0	0	0	14,8	13,62	6,96	8,91	6,40
6	0	+	0	0	+	12,9	9,28	6,68	8,55	5,46
7	+	-	-	+	+	14,7	14,72	6,50	7,46	7,33
8	+	0	0	+	0	14,1	13,62	6,64	8,37	6,93
9	+	+	+	+	+	12,7	9,28	7,00	8,18	5,86

После обработки результатов этого эксперимента по методике работы [4] и проверки значимости коэффициентов уравнения получена адекватная модель (2)

$$y_2 = HV = 14,64 - 0,72x_1 - 1,12x_2 - 0,42x_2^2, \quad (2)$$

из которой видно, что и в этом случае на твердость наибольшее влияние оказывает содержание $TiN(x_2)$, чем оно выше, тем ниже твердость. Максимальная величина твердости ($y_2=16,3$ ГПа) получена при $x_1=-1$ и $x_2=-1$, т.е. при нагрузке 50 Н и 10% TiN .

В третьей серии опытов по тому же плану эксперимента проводим исследования влияния нагрузки на индентор (x_1) и содержание оксидов (x_2) на твердость (y_3) для материала $Si_3N_4-(Al_2O_3+Y_2O_3)$. Для нагрузки были выбраны три уровня (50, 150, 250 Н), а для содержания оксидов также три уровня (10, 35 и 60%). Результаты опытов приведены в 9-й колонке таблицы 2 (y_3).

После обработки результатов опытов получена адекватная модель (3) при ошибке воспроизводимости $S_3 = 0,38$

$$y_3 = HV = 13,61 - 0,48x_1 - 2,83x_2 - 1,61x_2^2, \quad (3)$$

из которой видно, что наибольшее влияние на твердость оказывает содержание оксидов (x_2), чем оно выше, тем ниже твердость.

Таким образом, можно сделать вывод, что увеличение содержания добавок TiN и оксидов ($Al_2O_3+Y_2O_3$) в нитридную керамику снижает ее твердость. Влияние величины нагрузки на индентор (x_1) меньше, хотя характер влияния тот же: с ростом нагрузки твердость также снижается.

Зависимость трещиностойкости (K_{Ic}) от нагрузки на индентор (x_1) и содержание $TiN(x_2)$ в материалах состава $Si_3N_4-(Al_2O_3+Y_2O_3)-TiN$ изучали с помощью того же плана эксперимента 3×3 , но здесь учитывали место измерений: на параллельной и перпендикулярной гранях направлению прессования. Уровни факторов были выбраны следующие: x_1 (50, 150 и 250Н) и x_2 (10, 40, 70%). В качестве параметра оптимизации был выбран коэффициент измерений K_{Ic} , МПа·м^{0.5}. Результаты измерений K_{Ic} на параллельных и перпендикулярных гранях (y_4 и y_5) приведены в 9-й и 10-й колонках таблицы 2.

Ошибки воспроизводимости S_4 и S_5 соответственно составили $0,13 \text{ МПа м}^{0,5}$ и $0,16 \text{ МПа м}^{0,5}$.

После обработки результатов эксперимента получены адекватные модели для обеих граней.

$$y_4 = 6,28 + 0,28x_2 - 0,34x_2^2, \quad (4)$$

$$y_5 = 9,26 - 1,34x_1 + 1,21x_2 - 1,05x_1x_2 + 1,22x_1^2 - 1,7x_2^2. \quad (5)$$

Как видно из этих уравнений и здесь наибольшее влияние на K_{Ic} оказывает содержание TiN , чем оно больше, тем выше трещиностойкость, т.е. характер влияния этого фактора на K_{Ic} иной, нежели на твердость HV .

Следует обратить внимание и на то, что, как следует из уравнения (4), нагрузка (x_1) не оказывает влияние на K_{Ic} в выбранных интервалах варьирования (50—250 Н) при измерении этого параметра на параллельной грани.

На грани, перпендикулярной направлению прессования, влияние обоих факторов примерно одинаково, но величина K_{Ic} намного больше, чем на параллельной грани.

Зависимость вязкости разрушения от нагрузки (x_1) и содержания оксидов (x_2) в материалах $Si_3N_4 - (Al_2O_3 + Y_2O_3)$. Определяем с помощью того же плана 3×3 (таблица 2). Уровни нагрузки были выбраны такими: 100, 200 и 300 Н и содержания MeO : 10, 30 и 50 %. Ошибка воспроизводимости составляла $S_6 = 0,11$ (1,8 % от среднего).

После обработки результатов эксперимента и проверки значимости коэффициентов уравнения получили адекватную модель (6)

$$y_6 = K_{Ic} = 6,44 + 0,40x_1 - 0,67x_2 - 0,41x_2^2. \quad (6)$$

Здесь наблюдается уменьшение K_{Ic} с ростом содержания оксидов (x_2).

Максимальное значение $K_{Ic} = 7,33 \text{ МПа} \cdot \text{м}^{0,5}$ получено при $x_1 = +1$ и $x_2 = -1$, т.е. при нагрузке 300 Н и содержании оксидов 10 %.

Для материалов $Si_3N_4 - (Al_2O_3 + Y_2O_3)$ наблюдается тесная корреляция между твердостью и трещиностойкостью, поскольку коэффициент парной корреляции $r_{3,6} = 0,782$, что больше табличного $r_{кр} = 0,7498$ (при $\alpha = 0,05$ и $f = 9 - 2 = 7$).

Эта зависимость может быть выражена корреляционным уравнением

$$y_6 = K_{Ic} = 3,55 + 0,21y_3. \quad (7)$$

Таким образом, как K_{Ic} , так и HV для этих материалов уменьшаются с ростом содержания оксидов.

Для материалов $Si_3N_4 - (Al_2O_3 + Y_2O_3) - TiN$ такой тесной корреляции не наблюдается ($r_{2,5} = 0,66 < r_{кр} = 0,666$ при $\alpha = 0,05$ и $f = 9 - 2 = 7$), но обращает на себя внимание, что с ростом твердости (y_2) коэффициент вязкости разрушения K_{Ic} уменьшается.

Близость расчетного и табличного коэффициента парной корреляции позволяет и в этом случае выразить зависимость трещиностойкости $K_{Ic} = y_5$ от величины твердости HV в виде линейного корреляционного уравнения

$$y_5 = 13,31 - 0,373 \cdot y_2. \quad (8)$$

Следовательно, введение TiN увеличивает трещиностойкость материала, но не меняет характер зависимости между твердостью и трещиностойкостью, ибо с ростом твердости K_{Ic} уменьшается.

Это можно объяснить повышением упруго-пластических свойств данного материала.

Уровень трещиностойкости композитов на основе нитридов кремния и титана зависит от механизма распространения трещины, который зависит от объемного соотношения основных фаз в широком диапазоне размеров (от дисперсного распределения TiN в матрице Si_3N_4 до включенной Si_3N_4 в TiN), а также от знака остаточных напряжений, вызванных горячим прессованием.

Последние отличаются друг от друга распределением и интенсивностью во взаимно перпендикулярных гранях относительно направления прессования.

Трещина при взаимодействии с зонами сжимающих напряжений замедляет свое продвижение, что приводит к увеличению вязкости разрушения материала. Вот почему материал $Si_3N_4 - (Al_2O_3 + Y_2O_3) - TiN$ обладает более высокой трещиностойкостью по сравнению с материалом $Si_3N_4 - (Al_2O_3 + Y_2O_3)$.

Можно сделать вывод, что на вид зависимости твердости от состава и нагрузки горяче-прессованной керамики на основе нитрида кремния и оксидов доминирующее влияние оказывает хрупкое разрушение, а для материалов на основе нитридов кремния и титана — упруго-пластические деформации. Значительный вклад в изменение K_{Ic} в зависимости от состава композита оказывает распределение остаточных напряжений в материале, возникшее в результате горячего прессования.

Таким образом, статистические исследования указанных материалов позволили не только установить количественные зависимости твердости и K_{Ic} от нагрузки и состава, но и выявить характер их влияния, установить связь между твердостью и трещиностойкостью в виде корреляционных уравнений.

Литература

1. Гнесин Г.Г., Осипова Н.И., Сартинская Л.Л. Свойства материалов на основе ультрадисперсных порошков нитридов // Порошковая металлургия.— 1990.— № 8.— С.91—95.
2. Гнесин Г.Г., Осипова Н.И., Сартинская Л.А. Инструментальные керамические материалы на основе ультрадисперсных порошков нитридов // Порошковая металлургия.— 1990.— № 12.— С.78—82.
3. Evans A.G., Charles E.A. Fracture Toughness Determinations Hardness Indentation / J. Amer. Ceram. Soc.— 1977.—Vol. 59, № 7/8.— P. 371—372.
4. Вознесенский В.А. Статистические методы планирования эксперимента в технико-экономических исследованиях.— М.: Финансы и статистика.— 1981.— 264 с.