

	SAKARYA ÜNİVERSİTESİ FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ DERGİSİ <i>SAKARYA UNIVERSITY JOURNAL OF SCIENCE</i>		
	e-ISSN: 2147-835X Dergi sayfası: http://www.saujs.sakarya.edu.tr		
	<u>Gelis/Received</u> 03.11.2017 <u>Kabul/Accepted</u> 01.04.2018	<u>Doi</u> 10.16984/saufenbilder.348993	

hBN-SiC kompozitlerde sıcaklığın SiC tane boyutuna etkisi**

Zuhal Yılmaz^{*1}, Nuran Ay²

ÖZET

Bu çalışmada hekzagonal bor nitrür- silisyum karbür (hBN-SiC) kompozit sentezinde sıcaklığın SiC tane boyutu üzerine etkisi araştırılmıştır. Numunelerin SPS ile 1700°C, 1800°C, 1900°C ve 2000°C’de farklı sıcaklıklarda 50MPa basınç altında 15dak sinterleme işlemi gerçekleştirilmiştir. Sinterleme sıcaklığının SiC tane boyutu üzerine etkisinin belirlenmesi için ImageJ programı ile tane boyut ölçümleri gerçekleştirilerek normal dağılım fonksiyonu ile tane boyut dağılımları tespit edilmiştir. 1700°C’den 1900°C’ye sıcaklık artırıldığında h-BN miktarında %0,9’luk bir artış gözlenmiştir ve 2000°C’de ise değişmemiştir. SiC ortalama tane boyutu 1700°C’den 2000°C’ye sıcaklık artırıldığında 1,09µm’den 1,96µm’ye artmıştır. Tane boyut dağılımlarının standart sapma değerleri ise 1700°C’de 0,445 iken 2000°C’de 0,812 değerine arttığı gözlenmiştir. Sıcaklığa bağlı olarak tane boyut dağılımı artmaktadır. hBN fazının güçlü kovalent bağları ve plaka şeklinde yapıya sahip olmasından dolayı hBN’nin zayıf sinterlenebilitesi nedeniyle SiC tane büyümesini yavaşlattığı söylenebilir.

Anahtar Kelimeler: hBN; SiC; kompozit; SPS; tane boyutu

Effect of temperature on SiC grain size in hBN-SiC composites

ABSTRACT

In this study, the effect of temperature on the SiC grain size was investigated in the synthesis of hexagonal boron nitride-silicon carbide (hBN-SiC) composites. Samples were sintered at 1700°C, 1800°C, 1900°C and 2000°C, under 50MPa pressure for 15 minutes by spark plasma sintering (SPS). In order to determine the effect of sintering temperature on the SiC grain size, grain sizes were measured by ImageJ program. Grain size distributions were determined by using normal distribution function. When the temperature was increased from 1700°C to 1900°C, the amount of h-BN increased by 0.9% and remained unchanged at 2000°C. When the temperature was increased from 1700°C to 2000°C, the average grain size of SiC increased from 1.9 µm to 1.96 µm. The standard deviation values of grain size distribution increased from 0,445 at 1700°C to 0,812 at 2000°C. Depending on the temperature, the grain size distribution has increased. Due to the strong covalent bonds and plate-like structure of hBN, it has poor sinterability. Because of this feature, it can be said that the growth of SiC grains is slowed down by hBN.

Keywords: hBN, SiC, composite, SPS, grain size

¹ Bilecik Şeyh Edabali Üniversitesi, zuhal.guven@bilecik.edu.tr

* Corresponding Author

² Anadolu Üniversitesi, nay@anadolu.edu.tr

** Bu makale "Bor Nitrür Silisyum Karbür Kompozitlerin Sentezi ve Özelliklerinin Araştırılması" adlı doktora tezinden üretilmiştir.

1. GİRİŞ (INTRODUCTION)

Silisyum karbür (SiC) yüksek sıcaklıklarda yüksek sertlik ve mukavemet, kimyasal ve ısıl kararlılık, yüksek erime noktası, oksitlenme direnci, yüksek aşınma direnci gibi özelliklerinden dolayı endüstride kullanılan önemli seramik malzemelerinden biridir [1-3]. Literatürde hBN-SiC kompozit çalışmaları ile ilgili genellikle SiC ve hBN'nin birlikte sentezlendiği yerinde sentez (in Situ) yöntemi kullanılmaktadır. Yapılan çalışmalarda Si_3N_4 , B_4C ve C kullanılarak [4-7], Si_3N_4 , H_3BO_3 ve C'un kimyasal reaksiyonu sonucu [8] ve SiO_2 , H_3BO_3 ve C kullanılarak hBN-SiC kompozit elde etmişlerdir[9]. Literatürde ayrıca H_3BO_3 ve $CO(NH_2)_2$ kullanılarak hBN'ün α -SiC veya β -SiC içerisinde kimyasal yöntem kullanılarak sentezlendiği kompozit çalışmalar mevcuttur [10-13]. Ancak bu çalışmalarda SiC tane boyutu ile ilgili bulgulara rastlanmamıştır.

SiC'ün tane boyutunun sıcaklığa göre değişimi ile ilgili literatür incelendiğinde Guillard ve arkadaşları 1750–1850°C aralığında farklı sıcaklıklarda, 1-10 dak aralığında farklı sürelerde, 75MPa sinterleme esnasında ve 1000°C'den itibaren 75MPa basınç uygulamaya başlayarak iki farklı basınç eğrisi kullanarak yaptıkları çalışmada SiC'ün (başlangıç tane boyutu 0,5 μ m) yoğunlaşma davranışını incelemişlerdir. Sinterlemede SPS yöntemi kullanılmıştır. SiC'ün 1850°C'de 5 dak ve 75 MPa'ın altında % 92'ye kadar yoğunlaştığını tespit etmişler ve 1800°C'ye kadar bu koşullarda tane morfolojisi ve boyutunda kayda değer bir değişim olmadığını ifade etmişlerdir. Sıcaklık ve bekleme süresi arttıkça tane boyutunun arttığını belirlemişlerdir [14].

Tanaka ve Zhou 6H-SiC kullanarak, AlB_2 ve C sinterleme ilavesi yaparak sinterledikleri çalışmada farklı sıcaklık ve sinterleme ilaveleri kullanarak denemeler yapmışlardır. Tozlar 200 MPa'da CIP (soğuk izostatik presleme) ile sıkıştırılmış ve karbon fırınında numuneler önce bir vakum atmosferinde oda sıcaklığından 1500°C'ye kadar ısıtılmış ve sonra Ar atmosferinde 30 dakika boyunca 1850-2150°C aralığında sinterlenmiştir. AlB_2 ve C katkılarının, 1800°C'nin altında eriyen bir $Al_8B_4C_7$ bileşiği oluşturduğu bunun ise sinterleme ve tane büyümesini arttırdığı belirlenmiştir. Ayrıca sinterleme sırasında, 6H-SiC kısmen 4H-SiC'ye dönüştüğü ve dönüşümün tanelerin büyümesine ve küresel olmayan bir şekle dönüşmesine neden olduğu

ifade edilmiştir. [15]. Lee ve arkadaşlarının yapmış olduğu çalışmada nano boyutta β -SiC tozları, % 6 oranında Al_2O_3 ve Y_2O_3 sinterleme ilavesi kullanarak 1300-1900°C aralığın da 20MPa basınç altında sıcak presleme ile sinterlenmiş ve sıcaklığa bağlı olarak tane boyutunda artış miktarının yavaş olduğu sinterleme sıcaklığında sürenin uzatılması sonucu tane boyutunda daha fazla artış olduğu tespit edilmiştir [16].

Zhan ve arkadaşlarının 90nm tane boyutuna sahip β -SiC kullanarak yaptıkları çalışmada ağırlıkça %7 Al_2O_3 , %2 Y_2O_3 ve %1,785 $CaCO_3$ sinterleme ilavesi ve %2,7 oranında α -SiC ilavesi yaparak hazırladıkları toz karışımı Ar atmosferinde 25 MPa'lık bir basınç altında 1750°C'de 40 dakika süreyle sıcak preslenmiştir. Sıcak preslenmiş malzemeler daha sonra, 25 MPa basıncın altında veya basınç uygulanmadan 4 saat boyunca 1800°C ile 1950°C arasında değişen çeşitli sıcaklıklarda sinterlenmiştir. Basınca maruz kalmış numunede β -SiC'den α -SiC'ye faz dönüşümleri hacimce %30'un altında iken, basınçsız tavllanmış numunelerde faz dönüşüm miktarı %30'un üzerinde ve uzunlamasına taneler ile mikro yapıların geliştiği, basınçla tavllanmış numunelerin eşit eksenli tanelerle ince bir mikroyapıya sahip olduğu ifade edilmiştir [17].

Bu çalışmada α -SiC, H_3BO_3 ve $CO(NH_2)_2$ kullanarak hBN-SiC kompozitler sentezmiş ve SPS yöntemi ile farklı sıcaklıklarda sinterlenmesi sonucunda sıcaklığın kompozit malzemede SiC tane boyutuna etkisi araştırılmıştır.

2. DENEYSEL YÖNTEM (EXPIREMENTAL PROCEDURE)

α -SiC (Alfa Aesar, Germany, %99,8 saflıkta), borik asit (H_3BO_3) (Merck, Germany) ve üre ($CO(NH_2)_2$) (Merck, Germany, \geq %99,5 saflıkta) deneylerde kullanılan hammaddelerdir. Alümina (Al_2O_3) (Chempur, Germany, %99 saflıkta) ve yitrium oksit (Chempur, Germany, %99,95 saflıkta) sinterleme ilavesi olarak kullanılmıştır. Ağırlıkça teorik olarak %10 BN oluşacak oranda hazırlanan ve azot atmosferinde 850°C'de 16 saat tüp fırında (Protherm Furnaces) ısıl işlem uygulanmış α SiC-BN kompozit toz karışımına kalsinasyon sonrasında ağırlıkça %10 Al_2O_3 ve Y_2O_3 ($Al_2O_3:Y_2O_3$ 'in ağırlıkça oranı 7:3) sinterleme ilaveleri yapılmıştır. Kompozit toz karışımlarının Spark Plazma Sinterleme (SPS) (FCT GmbH) yöntemi ile 50 MPa basınç 1700°C, 1800°C, 1900°C ve 2000°C sıcaklıklarda 15 dak

süre ile sinterleme işlemi gerçekleştirilmiştir. Numunelerin kodları Tablo 1’de verilmiştir.

Tablo 1. Numunelerin kodlanması (Samples code)

Numune Kodu	Sinterleme sıcaklığı(°C)
S2-A7Y3-1700	1700
S2-A7Y3-1800	1800
S2-A7Y3-1900	1900
S2-A7Y3-2000	2000

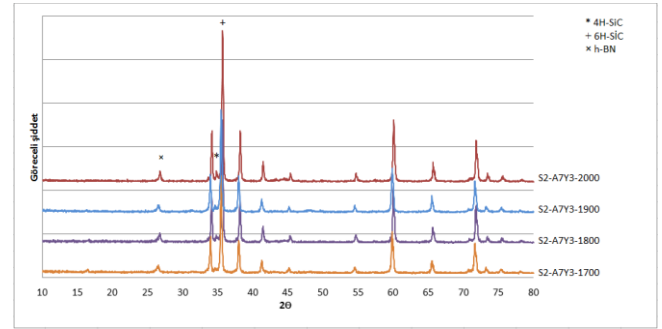
Sinterlenmiş numunelerin karakterizasyonlarında XRD (Rikagu Rint 2000) ve SEM (Zeiss Supra 50VP) kullanılmıştır. Arşimet düzeneği kullanılarak yoğunlukları, su emmeleri ölçülmüştür. Sertlikleri vickers sertlik cihazı (emco TEST M1C 010) kullanılarak belirlenmiştir. Numunelerdeki fazlarının miktarları (kantitatif XRD analizi) Maud programı ile Rietveld metodu kullanılarak hesaplanmıştır. Sinterleme sıcaklığının SiC tane boyutu üzerine etkisinin belirlenmesi amacı ile tane boyutu ölçümü için her numune hassas parlatma cihazında (Struers Tegra Pol-25) parlatılmış ve SEM ile aynı koşullarda farklı bölgelerden INLENS-BSD görüntüleri alınmıştır ve ImageJ programı ile tane boyutları ölçülmüştür. SEM görüntülerinden 300 adet tanenin x ve y eksenini boyunca ölçümü gerçekleştirilmiştir.

3. SONUÇLAR VE TARTIŞMA (RESULTS AND DISCUSSION)

3.1.Karakterizasyon(Characterization)

S2-A7Y3 numunesinin 1700°C, 1800°C, 1900°C ve 2000°C’de SPS ile 50MPa basınç ve 15 dak süre ile sinterlenmesi sonucu elde edilen XRD paternleri Şekil 1’de verilmiştir. Bütün numunelerde başlangıç SiC fazlarının (4H-SiC (JCPDS PDF No: 022-1317) ve 6H-SiC (JCPDS PDF No: 075-8314)) korunduğu ve JCPDS PDF No: 034-0421 nolu hBN yapısının oluştuğu tespit edilmiştir. hBN pik şiddetlerinin hemen hemen birbirine yakın olduğu belirlenmiş. Şekil 2’de SEM görüntüsünde 1700-2000°C aralığında bütün numunelerde hBN partikülleri tespit edilmiştir. Literatürde hBN oluşumunun 1500°C’nin üzerindeki sıcaklıklarda gerçekleştiği belirtilmektedir [18-20]. Hubacek ve ark. yaptıkları çalışmada bor nitrürün 1300°C’ye ısıtıldığında turbostratik, 1300-1600°C arasında

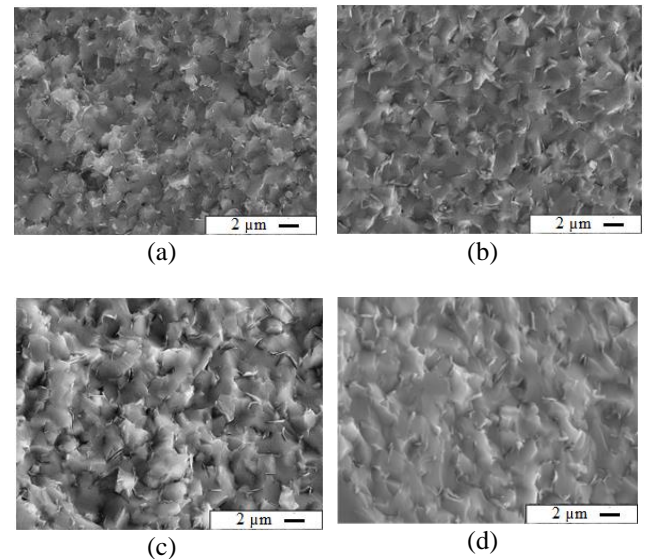
mezografitik, 1600°C üzerinde ise kristalin hegzagonal yapıda olduğunu belirtmişlerdir [21].



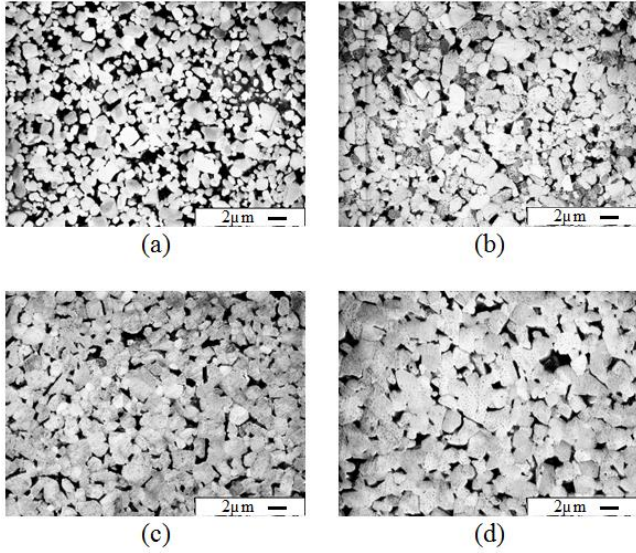
Şekil 1. 1700°C, 1800°C, 1900°C ve 2000°C’de SPS sonrası S2-A7Y3 numunesine ait XRD paternleri (XRD paterns of the S2-A7Y3 sample after SPS at 1700°C, 1800°C, 1900°C and 2000°C)

3.2. SiC tane boyutu değişimi (Change in grain size of SiC)

S2-A7Y3 numunesinin 1700°C, 1800°C, 1900°C ve 2000°C’de SPS ile 50MPa basınç ve 15 dak süre ile sinterlenmesi sonucu elde edilen numunelerden x-eksenini boyunca alınan kesitten hassas parlatma cihazı sonrası parlak yüzey INLENS-BSD mix SEM görüntüleri Şekil 3’de verilmiştir. Görüntüler incelendiğinde SiC tane boyutlarının sıcaklığa bağlı olarak arttığı açıkça görülmektedir.

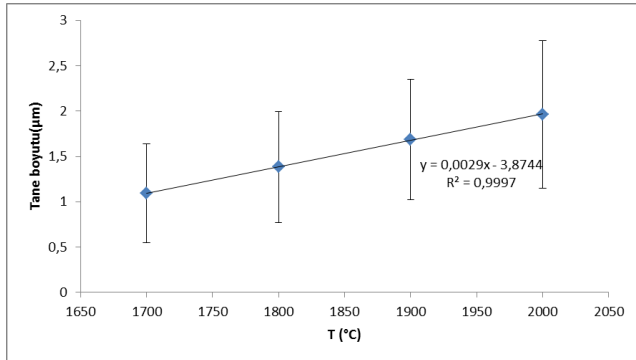


Şekil 2. Farklı sıcaklıklarda ısıl işlem görmüş S2-A7Y3 numunesine ait SE-SEM görüntüleri a) 1700°C, b) 1800°C, c) 1900°C ve d) 2000°C sıcaklıkta (SE-SEM images of the samples S2-A7Y3 which were heat-treated at different temperatures a) 1700°C, b) 1800°C, c) 1900°C and d) 2000°C)



Şekil 3. Farklı sıcaklıklarda ısıl işlem görmüş S2-A7Y3 numunesine ait parlak yüzey INLENS-BSD SEM görüntüleri a) 1700°C, b) 1800°C, c) 1900°C ve d) 2000°C sıcaklıkta (INLENS-BSD SEM images of the samples S2-A7Y3 which were heat-treated at different temperatures a) 1700°C, b) 1800°C, c) 1900°C and d) 2000°C)

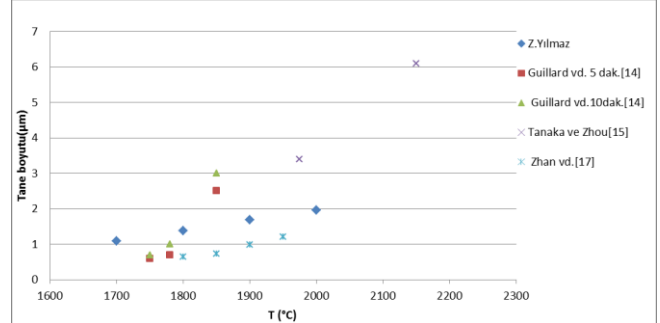
Tane boyutu ölçümü sonucu elde edilen verilerden her bir sıcaklık için α -SiC tanelerinin ortalama tane boyutları hesaplanarak sıcaklığa karşı tane boyutundaki değişim belirlenmiştir (Şekil 4). Reaksiyon hız sabiti ise grafiğin eğiminden 0,0029 olarak hesaplanmıştır. Artan sıcaklığa bağlı olarak SiC tane boyutunda artma gözlenmiştir.



Şekil 4. S2-A7Y3 numunesinin sıcaklık-tane boyutu değişimi (Temperature-particle size change of sample S2-A7Y3)

Yapılan çalışmanın literatür verileri ile karşılaştırılması için SiC'ün tane boyutunun sıcaklığa göre değişimi ile ilgili literatür örneklerinden alınan veriler ile yapılan çalışmanın tane boyutu verileri kullanılarak tane boyutunun sıcaklığa bağlı değişim grafiği çizilmiştir (Şekil 5). Guillard ve arkadaşlarının yapmış olduğu çalışmanın 5 ve 10 dak süre ile sinterlenmiş 1000°C'den itibaren 75MPa basınç uygulanarak yapılmış olan çalışmaların tane boyutları [14], Tanaka ve Zhou'nun yapmış olduğu çalışmanın

aynı oranda sinterleme ilavesi yapılmış (% 2,7AlB₂ ve %2 C) numunelerinin tane boyutları değerleri [15] ve Zhan ve arkadaşlarının yaptıkları çalışmada 25 MPa basıncın altında sinterlenen numunelerin tane boyutları değerleri kullanılarak [17] tane boyutu grafikleri çizilmiştir.



Şekil 5. Literatür çalışmalarından alınan örnekler ve S2-A7Y3 numunesinin sıcaklığa bağlı tane boyutu değişimi (Temperature-particle size change of examples from literature studies and sample S2-A7Y3)

Şekil 5 incelendiğinde Guillard ve arkadaşlarının yapmış olduğu çalışmada SiC tane boyutunda 1800°C'ye kadar kayda değer bir değişim görülmez iken 1850°C'de 2-2,4 µm'ye kadar attığı belirlenmiştir. 1780°C'de, tutma süresi yaklaşık 1 ila 10 dakika aralığında iken tane boyutu yaklaşık %40 artarken, 5 dak. tutma süresinde sıcaklık 1750°C'den 1850°C'ye arttığında tane boyutunun yaklaşık %200 arttığını tespit etmişlerdir [14]. Bu sonuç grafikte net olarak görülmektedir. Bu sonuçlardan yola çıkarak tane büyümesinde sinterleme sıcaklığının sinterleme süresinden çok daha etkili olduğu ifade edilmiştir. Tanaka ve Zhou'nun yaptıkları çalışmada (Şekil 5) 1975°C'de sıcaklıkta tane boyutu 3,1µm iken 2150°C'de neredeyse %100'lük bir artış ile 6,1µm'ye artmıştır [15]. Şekil 5 incelendiğinde Zhan ve arkadaşlarının yapmış olduğu çalışmada basınç ile sinterlenmiş olan numunede 1800°C'de ~0,6µm olan tane boyutunun 1950°C'de %100'lük bir artışla ~1,2µm'ye arttığı belirlenmiştir [17].

Yapılan çalışmada %7Al₂O₃-%3Y₂O₃ sinterleme ilavesi içeren S2-A7Y3 numunesinin 50 MPa basınç ve 15dak süre ile sinterlenmiş numunelerinde 1700°C'de ortalama tane boyutu 1,09µm iken bu değer 1800°C'de 1,38µm'ye, 1900°C'de 1,68µm'ye, 2000°C'de ise 1,96µm'ye yükselmiştir. Bu sonuç tane büyümesinin bu numunelerde literatürdeki verilere göre daha düşük olduğunu göstermektedir (Şekil 5). Bu numunelerde %6,12-7,02 aralığında hBN bulunmaktadır (Tablo 2). Literatürde tane sınırlarındaki hBN tabakalarının SiC'nin tane

büyümesini engellediği ve muhtemelen bunun hBN fazının bir perkolasyon ağı oluşturmasından [22] ve hBN fazının güçlü kovalent bağları ve plaka şeklinde yapıya sahip olmasından dolayı hBN'nin zayıf sinterlenebilitesi nedeniyle tane büyümesini engellediği ifade edilmektedir [23]. Ölçülen sonuçlara göre hBN tabakalarının SiC tane büyümesini yavaşlattığı söylenebilir.

S2-A7Y3 numunelerinin normal dağılım fonksiyonu (Eşitlik 1) kullanılarak tane boyut dağılım grafikleri çizilmiştir (Şekil 6).

$$f(x) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{x-\mu}{\sigma}\right)^2} \quad (1)$$

Bu fonksiyondaki;

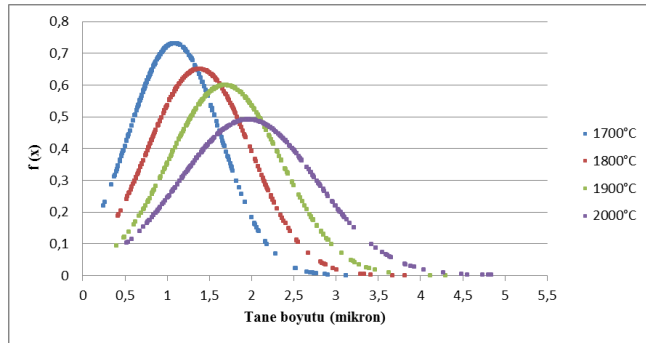
e: ~2.71828'e eşit matematiksel sabit

π : ~3.14159'a eşit matematiksel sabit

μ : anakütle ortalaması

σ : anakütle standart sapması

x: herhangi bir sürekli tesadüfi değişkendir.



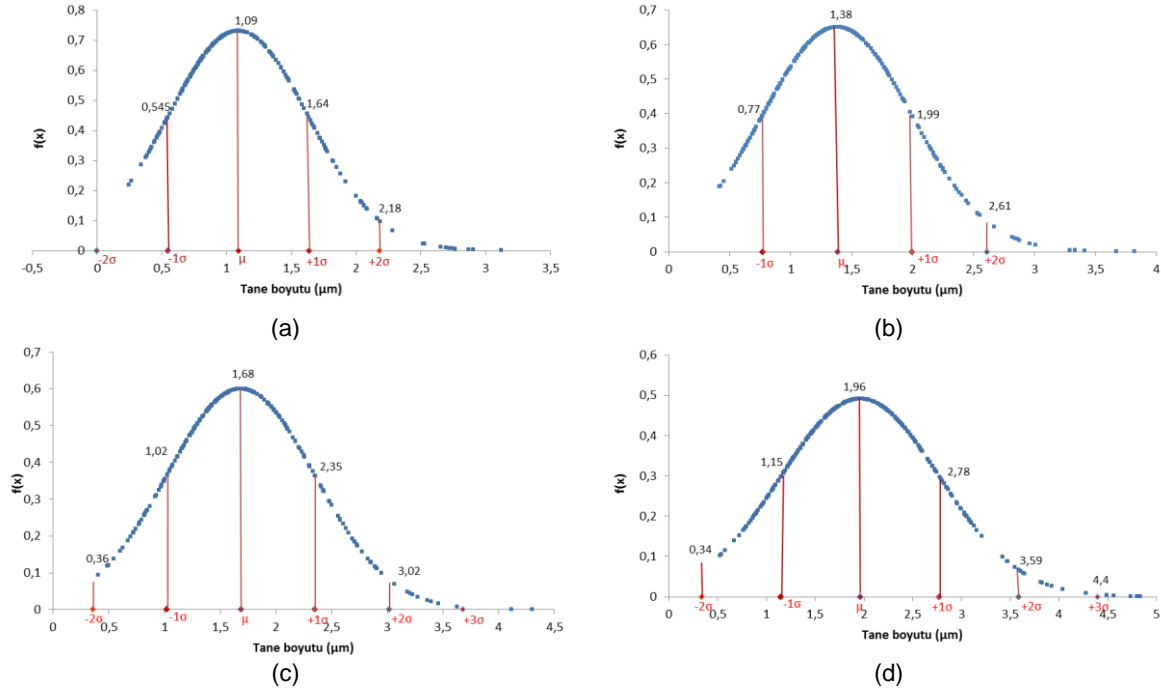
Şekil 6. Farklı sıcaklıklarda sinterlenen S2-A7Y3 numunesinin SiC tane boyut dağılımı (SiC grain size distribution of the samples S2-A7Y3 which were sintered at different temperatures)

SiC tane boyut dağılımlarının normal dağılım fonksiyonlarının grafiği incelendiğinde sıcaklığa bağlı olarak tane boyutunun ve tane boyut dağılım aralığının arttığı belirlenmiştir. 1700°C'de tane boyutları birbirine daha yakın iken sıcaklık arttıkça tane boyutları farklılaşmakta ve 2000°C'de bu fark daha da fazladır.

Pratikte, çok zaman verilerin yaklaşık olarak bir normal dağılım gösteren ana kütlede geldiği varsayılır. Bu varsayıma neden olarak merkezsiz limit teoreminin geçerliliği iddiası olur. Merkezi

limit teoremine göre birçok birbirinden bağımsız ve hepsi aynı dağılım gösteren rassal değişkenlerin toplamı limitte bir normal dağılıma göre eğilim gösterirler. Eğer bu varsayım geçerli ise, değerler yaklaşık %68,27 olasılıkla ortalamadan eksi ve artı bir standart sapma ($\pm 1\sigma$) noktalarının arasında bulunur; ortalamadan artı ve eksi 2 standart sapma ($\pm 2\sigma$) noktaları arasında %95,45 olasılıkla ve ortalamadan artı ve eksi 3 standart sapma ($\pm 3\sigma$) noktaları arasında %99,73 olasılıkla bulunur.

Farklı sıcaklıklarda sinterlenmiş S2-A7Y3 numunesinin SiC tane boyut dağılımı fonksiyon grafikleri Şekil 7'de verilmiştir. 1700°C'de sinterlenmiş olan S2-A7Y3 numunesinin (Şekil 7-a) ortalama tane boyutu İmageJ programından elde edilen verilere göre hesaplanmış ve 1,09 μ m olarak belirlenmiştir. Standart sapma değeri ise 0,546'dır. +1 σ değeri 1,64 μ m -1 σ değeri ise 0,545 μ m olarak hesaplanmıştır. Bu durumda yaklaşık %68,27 olasılıkla taneler 0,545 ve 1,64 μ m tane boyut aralığındadır. +2 σ değeri ise 2,18 μ m olarak hesaplanmıştır ve %95,45 olasılıkla numunenin tane boyutu 2,18 μ m'nin altındadır. 1800°C'de sinterlenmiş olan S2-A7Y3 numunesinin (Şekil 7-b) ortalama tane boyutu 1,38 μ m olarak belirlenmiştir. Standart sapma değeri ise 0,613'dür. +2 σ değeri ise 2,61 μ m olarak hesaplanmıştır ve %95,45 olasılıkla numunenin tane boyutu 2,61 μ m'nin altındadır. 1900°C'de sinterlenmiş olan S2-A7Y3 numunesinin (Şekil 7-c) ortalama tane boyutu 1,68 μ m olarak belirlenmiştir. Standart sapma değeri ise 0,665'dir. +2 σ değeri ise 3,02 μ m, -2 σ değeri ise 0,36 μ m olarak hesaplanmıştır ve %95,45 olasılıkla numunenin tane boyutu 0,36 ve 3,02 μ m tane boyut aralığındadır. +3 σ değeri ise 3,68 μ m olarak hesaplanmıştır ve %99,73 olasılıkla numunenin tane boyutu 3,68 μ m'nin altındadır. 2000°C'de sinterlenmiş olan S2-A7Y3 numunesinin (Şekil 7-d) ortalama tane boyutu 1,96 μ m olarak belirlenmiştir. Standart sapma değeri ise 0,812'dir. +2 σ değeri ise 3,59 μ m, -2 σ değeri ise 0,34 μ m olarak hesaplanmıştır ve %95,45 olasılıkla numunenin tane boyutu 0,34 ve 3,59 μ m tane boyut aralığındadır. +3 σ değeri ise 4,4 μ m olarak hesaplanmıştır ve %99,73 olasılıkla numunenin tane boyutu 4,4 μ m'nin altındadır. Bu veriler bize artan sıcaklık ile birlikte ortalama tane boyutunun ve standart sapma değerinin dolayısı ile tane boyut aralığının arttığını net bir şekilde göstermektedir.



Şekil 7. Farklı sıcaklıklarda sinterlenmiş S2-A7Y3 numunesine ait SiC tane boyut dağılımları fonksiyonları a) 1700°C, b) 1800°C, c) 1900°C ve d) 2000°C sıcaklıkta (SiC grain size distributions functions of the samples S2-A7Y3 which were sintered at different temperatures a) 1700°C, b) 1800°C, c) 1900°C and d) 2000°C)

3.3. Rietveld analizi sonuçları (Rietveld analysis results)

Numunelerdeki fazlarının miktarsal oranları (kantitatif XRD analizi) Maud programı ile Rietveld metodu kullanılarak hesaplanmıştır. Uygulanan metot ile, yüksek çözünürlüklü XRD paternlerinin kristal yapı dosyalarını içeren veri tabanları kullanılarak gerekli pik düzeltmeleri (Rietveld Refinement) yapılmakta ve standart sapma oranları ile birlikte fazların % oranları verilmektedir [24]. Sonuçlar Tablo 2’de verilmiştir. h-BN miktarları % 6,12 ile 7,02 arasında değişmektedir. 1700°C’den 1900°C’ye sıcaklık artırıldığında h-BN miktarında %0,9’luk bir artış söz konusudur ve 2000°C’de de değişmemiştir.

Tablo 2. Numunelerin Rietveld analiz sonuçları (Rietveld analysis results of samples)

Num. Kodu	% 6-H SiC	%4-H SiC	Teorik %hBN	Hesaplanan % hBN
S2-A7Y3-	88,04	5,54	20	6,12
S2-A7Y3-	87,80	5,22	20	6,98
S2-A7Y3-	86,47	6,49	20	7,02
S2-A7Y3-	86,76	6,22	20	7,02

3.4. Fiziksel özellikleri (Physical properties)

S2-A7Y3’numunesinin farklı sıcaklıklarda hesaplanan su emme ve bulk yoğunluk değerleri ile vickers sertlik değerleri Tablo 3’de verilmiştir. Sıcaklığa bağlı olarak yoğunluk değerlerinin arttığı ve en yüksek olduğu 3,105 g/cm³ değerinin ise 2000°C’de elde edildiği görülmüştür. Bu sonuç ise artan sıcaklığın sinterleme de tane sınırı difüzyonu için itici güç oluşturmasından dolayı beklenen bir sonuçtur. Aynı zamanda artan sıcaklık ile yoğunlaşmadaki değişim parlak yüzey SEM görüntülerinden (Şekil 3) de net bir şekilde gözlemlenebilmektedir. Numunelerin sertlik değerleri de sıcaklıkla birlikte artmıştır. S2-A7Y3-1900 numunesinde en yüksek sertlik değeri elde edilmiştir. Sonuçlar incelendiğinde %0,9’luk hBN miktarındaki değişimin yoğunluk ve sertlik üzerinde belirgin bir etkisi olmadığını göstermektedir.

Tablo 3. Numunelerin fiziksel ve mekanik özellikleri (physical and mechanical properties of the samples)

Numune Kodu	Su emme (%)	Bulk Yoğ. (g/cm ³)	Relative Yoğ.(%)	Sertlik (GPa)
S2-A7Y3-1700	0,317	2,918	92,63	8,66
S2-A7Y3-1800	0,090	3,020	96,17	14,86

S2-A7Y3-1900	0,000	3,072	97,83	16,57
S2-A7Y3-2000	0,015	3,105	98,88	15,61

4. SONUÇ (CONCLUSION)

Bu çalışmada α -SiC, H_3BO_3 ve $CO(NH_2)_2$ kullanarak hBN-SiC kompozitler sentezmiş ve SPS yöntemi ile farklı sıcaklıklarda sinterlenmesi sonucunda sıcaklığın kompozit malzemede SiC tane boyutuna etkisi araştırılmıştır. 1700°C'den 2000°C'ye sinterleme sıcaklığı artırıldığında ortalama tane boyutu 1,09 μ m'den 1,96 μ m'ye artmıştır. Tane boyut dağılımlarının standart sapma değerleri ise 1700°C'de 0,445 iken 2000°C'de 0,812 değerine ulaşmıştır, yani artan sıcaklık ile tane boyut dağılım aralığı genişlemiştir. BN'ün SiC'ün sinterleme sıcaklığına bağlı olarak tane büyümesini azalttığı tespit edilmiştir. Sentezlenen h-BN miktarları % 6,12 ile 7,02 arasında değişmektedir. 1700°C'den 1900°C'ye sinterleme sıcaklığı artırıldığında hBN miktarı %0,9 artmış ve 2000°C'de ise değişmemiştir. Sıcaklığa bağlı olarak yoğunluk değerleri artmış ve en yüksek değerine (3,105 g/cm³) 2000°C'de ulaşılmıştır.

TEŞEKKÜR (ACKNOWLEDGEMENTS)

Bu çalışma 1406F321 nolu Anadolu Üniversitesi BAP projesi ile desteklendiğinden dolayı yazarlar olarak Anadolu Üniversitesi'ne teşekkür ederiz.

REFERANSLAR(REFERENCES)

- [1] Abderrazak, H., Hadj Hmida, E.S.B. "Silicon Carbide: Synthesis and Properties," 16.[yazan] Rosario Gerhardt. Properties and Applications of Silicon Carbide. *Tunisia : InTech*, 2011.
- [2] Rashed, H., "Properties and Characteristics of Silicon Carbide," *s.l. : Poco GraphiteTX 76234*, 2002.
- [3] Sadow, S. E., Agarwal, A., "Advances in Silicon Carbide Processing and Applications," *London : Artech House*, 1-58053-740-5, 2004.
- [4] Zhang, G.J., Ohji, T., "Effect of BN content on elastic modulus and bending strength of SiC-BN in situ composites," *Materials Research Society*, vol.15, 1876-1880, 2000.
- [5] Zhang, G.J., Ohji, T., "In Situ Reaction Synthesis of Silicon Carbide-Boron Nitride Composites," *J. Am. Ceram. Soc.*, vol 84, 1475-79, 2001.
- [6] Zhang, G.J., Beppu, Y., Ohji, T., Kanzaki, S., "Reaction Mechanism And Microstructure Development of Strain Tolerant in Situ SiC-BN Composites," *Acta mater.*,49, 77-82, 2001.
- [7] Zhang, G.J., Yang, J.F., Deng Z.Y., Ohji T., "Effect of Y₂O₃-Al₂O₃ Additive on the Phase Formation and Densification Process of In Situ SiC-BN Composit," *Journal of the Ceramic Society of Japan.*, vol. 109,45-48. 2001.
- [8] Zhang, G.J., Beppu, Y., Ando, M., "In Situ Reaction Synthesis of Silicon Carbide-Boron Nitride Composite from Silicon Nitride-Boron Oxide-Carbon." *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 85, 2858-2860, 2002.
- [9] Kusunose, T., Sekino, T., Ando, Y., "Synthesis of SiC/BN nanocomposite powders by carbothermal reduction and nitridation of borosilicate glass, and the properties of their sintered composites." *Nanotechnology*, vol 19, 275603 9pp, 2008.
- [10] Kusunose, T., Sekino, T., Niihara, K., "Contact Damage of Silicon Carbide/Boron Nitride Nanocomposites." *J. Am. Ceram. Soc. Japan*, Cilt 90, 3341-3344, 2007.
- [11] Jin, H., Xu, H., Qiao, G., Gao, J., Jin, Z., "Study of machinable silicon carbide-boron nitride ceramic composites." *Materials Science and Engineering A*. 214-217, 2008.
- [12] Jin, H., Gao, N., Qiao, G., Gao, J., "Fabrication and properties of machinable SiC/h-BN Nano-composites." *Journal of Ceramic Processing Research*. Cilt 9, 6,630-633, 2008.
- [13] Wang, X., Qiao, G., Jin, Z., "Fabrication of Machinable Silicon Carbide-Boron Nitride Ceramic Nanocomposites." *J. Am. Ceram. Soc.* vol. 87, 565-570, 2004.
- [14] Guillar, F., Allemand, A., Lulewicz, J.-D., Galy J. "Densification of SiC by SPS-effects of time, temperature and pressure." *Journal of the European Ceramic Society*, 27, 2725-2728, 2007.
- [15] Tanaka, H., Zhou, Y., "Low temperature sintering and elongated grain growth of 6H-SiC powder with AlB₂ and C additives," *J. Mater. Res.*, Vol. 14, No. 2, 518-522,1999.

- [16] Lee, Y.-J., Park, Yi-H. and Hinoki, T., “Influence of Grain Size on Thermal Conductivity of SiC Ceramics,” *Materials Science and Engineering*, 18,1-4, 2011.
- [17] Zhan, G.-D., Xie, R.-J., and M. Mamoru, “Effect of β -to- α Phase Transformation on the Microstructural Development and Mechanical Properties of Fine-Grained Silicon Carbide Ceramics,” *J. Am. Ceram. Soc.*, 84, 945–950, 2001.
- [18] Hagio, T., Nonaka, K., Sato, T., “Microstructural Development with Crystallization of Hexagonal Boron Nitride,” *Journal of Materials Science Letters*, vol.16, 795-798, 1997.
- [19] Kodera, T., Toyofuku, N., Yamasaki, H., Ohyanagi, M., Munir, Z.A., “Consolidation of SiC/BN composite through MA-SPS method.” *J Mater Sci.* Vol 43, 6422-6428, 2008.
- [20] Akyol, S., Toy, C., Gönül, T., Tekin, A., Crystallization Behavior and Characterization of Turbostratic Boron Nitride, *Journal of the European Ceramic Society*, vol 17, 1415-1422, 1997.
- [21] Hubáček, M., Ueki, M., Sato, T., Brozek, V., “High-temperature behaviour of hexagonal boron nitride,” *Thermochimica Acta*, 282/283, 359-367, 1996.
- [22] Zhang, G.J., Ohji, T., “Effect of BN content on elastic modulus and bending strength of SiC–BN in situ composites. ” *Materials Research Society*. 15,1876-1880, 2000.
- [23] Wu, W.W., Estili, M., Nishimura, T., Zhang, G.J., Sakka, Y., “Machinable ZrB₂–SiC–BN composites fabricated by reactive spark plasma sintering.” *Materials Science & Engineering A* 582, 41–46, 2013.
- [24] <http://www.mta.gov.tr/>, (27,01,2017)