

## Basıncsız Sızdırma Yöntemiyle AlN-Si-Al Seramik-Metal Karma Malzemelerinin Üretimi

Ayşe KALEMTAŞ<sup>1</sup>, Gürsoy ARSLAN<sup>2</sup> ve Ferhat KARA<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Muğla Sıtkı Koçman Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Bölümü, Muğla.

<sup>2</sup> Anadolu Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Malzeme Bilimi ve Mühendisliği Bölümü, Eskişehir.

e-posta: akalemtas@mu.edu.tr, garslan@anadolu.edu.tr ve fkara@anadolu.edu.tr

Geliş Tarihi:22.10.2012; Kabul Tarihi:11.11.2013

### Özet

#### Anahtar kelimeler

Basıncsız sızdırma;  
seramik-metal karma  
malzeme; AlN; Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>.

Bu çalışmada basıncsız sızdırma yöntemi kullanılarak Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>-Al sisteminde, Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> ve Al arasında meydana gelen tepkime sonucu yüksek seramik hacim kesrine (> hacimce % 50) sahip, hafif (~2,9 g/cm<sup>3</sup>) ve yoğun (> % 99) AlN esaslı seramik-metal karma malzemelerin üretimi gerçekleştirilmiştir. α-Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> tozuyla hazırlanan gözenekli bünyelere 2024 Al alaşımı, farklı sıcaklık ve sürelerde sızdırılarak seramik-metal karma malzemeler üretilmiştir. Bu çalışmalar iki şekilde gerçekleştirilmiştir: (i) Sabit sürede (1 saat) 900-1400°C aralığında, 100°C aralıkla sızdırma. (ii) Sabit sıcaklıkta (1200°C) 1-5 saat arasında değişen sürelerde sızdırma. Üretilen karma malzemelerin evre (faz) analizleri sonucunda yapıda AlN, Si, Al ve CuAl<sub>2</sub> evrelerinin bulunduğu ve Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> evresinin Al ile tepkimesi sonucunda yapıda tamamıyla tüketildiği belirlenmiştir. Gerçekleştirilen SEM incelemeleri bu malzemelerin oldukça yoğun ve ince bir içyapıya sahip olduğunu (< 0,5 µm) göstermiştir.

## Production of AlN-Si-Al Ceramic-Metal Composites via Pressureless Infiltration Method

### Abstract

#### Key words

Pressureless  
infiltration; ceramic-  
metal composite; AlN;  
Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>.

In this work, the production of light (~2,9 g/cm<sup>3</sup>) and dense (> 99 %) AlN based ceramic metal composites was conducted by the pressureless melt infiltration method. These composites contain a high ceramic volume fraction (> 50 vol %) which is the result of the reaction between Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> and Al in the Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>-Al system. The production of the ceramic-metal composites was achieved via infiltrating 2024 Al alloys at different temperatures and holding times into the porous pellets which were prepared using α-Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> powder. These experiments were conducted in two ways: (i) Infiltration at a constant holding time (1 h) in the temperature range of 900-1400°C at intervals of 100°C. (ii) Infiltration at a constant infiltration temperature (1200°C) with a holding time in the range of 1-5 h at intervals of 1 h. Qualitative phase analysis of the produced composites confirmed the existence of the AlN, Si, Al and CuAl<sub>2</sub> phases in the microstructure and revealed that the Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> phase was completely consumed as a result of its reaction with the Al phase. The SEM analyses indicate that these materials are quite dense and fine-grained (< 0,5 µm).

© Afyon Kocatepe Üniversitesi

### 1. Giriş

Günümüzde yekpare malzemeler hızla gelişmekte olan yeni teknolojilerin ihtiyaçlarını karşılayamaz hale geldiğinden bu gelişmelere paralel olarak karma malzemelerin üretimi ve özelliklerinin geliştirilmesi üzerine de sürekli yeni çalışmalar yapılmaktadır. Özellikle havacılık, savunma, otomotiv ve denizcilik endüstrisinde hafif ve dayanıklı malzemelere duyulan ihtiyaç, bu araştırmalar için başlıca itici gücü oluşturmaktadır. Seramik malzemelerin yüksek sertlik, iyi mekanik özellik ve düşük yoğunluk gibi üstün özelliklerinden

yararlanabilmek ve aynı zamanda da tokluğunu iyileştirmek amacıyla seramik-metal karma malzemeler üzerinde yoğun çalışmalar yapılmaktadır. Bu sistemlerde kullanılmakta olan metaller arasında Al, özellikle hafifliği, ekonomikliği ve düşük ergime sıcaklığı nedeniyle en yaygın biçimde kullanılan malzemedir.

AlN esaslı seramik-metal karma malzemeler; zırh, havacılık ve elektronik uygulamaları ile otomotiv sektörü gibi pek çok kritik uygulama alanlarında kullanım potansiyeli güçlü olan bir malzeme olarak

karşımıza çıkmaktadır. Basınçsız sızdırma tekniği kullanılarak  $\text{Si}_3\text{N}_4$ -Al sisteminde,  $\text{Si}_3\text{N}_4$  ve Al arasında meydana gelen tepkime sonucu AlN esaslı seramik-metal karma malzemelerin üretimi ilk olarak 1994 yılında gerçekleştirilmiştir (Aghajanian ve ark. 1994).  $\text{Si}_3\text{N}_4$  ile Al arasında meydana gelen tepkime sonucunda sistemdeki Al evresinin tüketilmesi ve yüksek ısı iletkenliğe sahip AlN evresinin oluşması yüksek iletkenliğe sahip, nispeten sert ve tok seramik-metal karma malzemelerin ekonomik olarak üretilmesi için iyi bir fırsat sunmaktadır. Bu tepkime sırasında gözenekli seramik bünyeye sızdırılan Al metali tüketilirken, ergime sıcaklığı ve sertliği daha yüksek olan Si metali açığa çıkmaktadır.

Bu çalışmada amaç, basınçsız sızdırma yöntemiyle  $\text{Si}_3\text{N}_4$ -Al sisteminde mümkün olduğu ölçüde yüksek (> hacimce %50) seramik hacim kesrine sahip, yoğun AlN esaslı seramik-metal karma malzemelerin üretimi ve içyapı incelemelerinin gerçekleştirilmesidir.

## 2. Materyal ve Yöntem

Bu çalışmada Silzot HQ  $\alpha$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$  tozu ve 2024 Al alaşımı (Tablo 1) kullanılmıştır.  $\alpha$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$  tozu tek yönlü preslemeyle şekillendirilerek ~%44 yaş yoğunluğa sahip ~1,9 cm çapında gözenekli seramik bünyeler hazırlanmıştır. Presleme sonrası hazırlanan bünyeler alümina altlıklara yerleştirilip üzerlerine uygun boyutlarda kesilen ve yüzey oksit tabakası zımparalama işlemi ve ardından aseton içerisinde bekletilerek uzaklaştırılan Al alaşım blokları yerleştirilmiştir. Gözenekli seramik bünyelere Al alaşımını sızdırma çalışmaları atmosfer denetimli yatay tüp fırın içerisinde gerçekleştirilmiş ve Al alaşımının oksitlenmesini önlemek için tüp fırına yüksek saflıkta Ar gaz akışı sağlanmıştır. Al sızdırma sürecinde 900°C'ye kadar 5°C/dakika, sızdırma sıcaklığına kadar ise 10°C/dakika ısıtma hızı uygulanmıştır. Soğutma işlemi sırasında ise sızdırma sıcaklığından 900°C'ye kadar 10°C/dakika, 900°C'den 25°C'ye kadar ise 5°C/dakika soğutma hızı uygulanmıştır.

**Tablo 1.** 2024 alüminyum alaşımının kimyasal bileşimi (ağ. %)

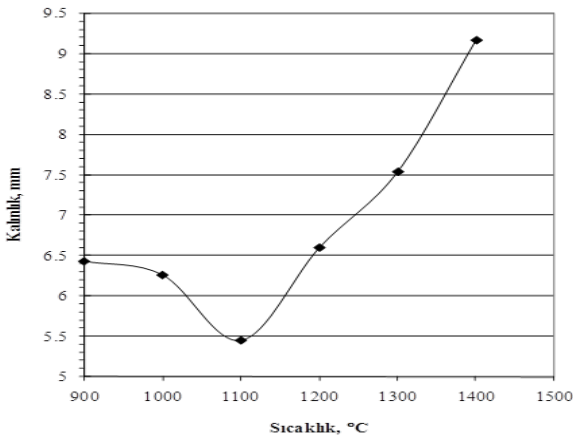
Cu	Mn	Mg	Fe, Si, Zn	Cr, Ti
3,8-4,9	1,2-1,8	0,3-0,9	0,5	0,3

Sızdırma çalışmaları; (i) sabit sürede (1 saat) 900-1400°C aralığında, 100°C aralıkla sızdırma ve (ii) sabit sıcaklıkta (1200°C), 1-5 saat arasında değişen sürelerde sızdırma şeklinde gerçekleştirilmiştir. Her bir sıcaklıkta 2 adet numune üretilip, elde edilen sızdırma kalınlıklarının aritmetik ortalaması alınmıştır.

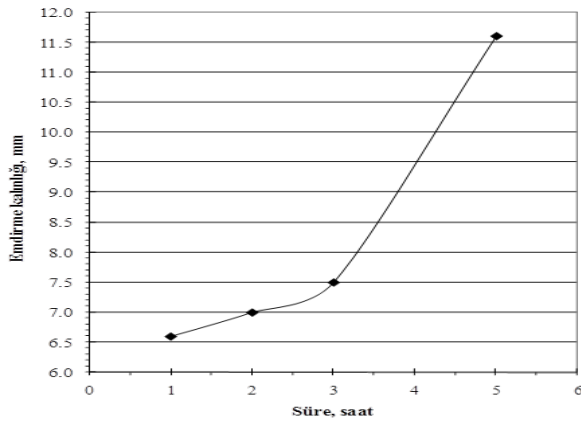
Üretilen seramik-metal karma malzemelerin yığınsal yoğunluğunun tespiti için Arşimet prensibinden yararlanılmıştır. Toz haline getirilen (< 63  $\mu\text{m}$ ) karma malzemelerin kalitatif evre içeriğinin tespiti Rigaku marka, Rint 2200 model X-ışını kırınım (XRD) cihazı ile X-ışını kaynağı olarak Cu tüpü ( $\lambda=1,54 \text{ \AA}$ ) kullanılarak, 1°/dakika tarama hızıyla gerçekleştirilmiştir. İçyapı incelemeleri Zeiss Evo 50 EP taramalı elektron mikroskopuyla (SEM) gerçekleştirilmiştir.

## 3. Bulgular

Şekil 1'de 900-1400°C aralığında gerçekleştirilen çalışmalar sonucunda elde edilen sızdırma kalınlıkları sunulmaktadır. Bu veriler incelendiğinde, sızdırma kalınlığının sıcaklığa bağlı olarak değişiminin, bu sıcaklık aralığında iki farklı bölgeye işaret ettiği görülmektedir. Sızdırma sıcaklığı 900°C'den 1100°C'ye çıkarken, sızdırma kalınlığı ~6,4 mm'den ~5,4 mm'ye düşmektedir. İkinci bölgede ise sıcaklık 1100°C'den 1400°C'ye çıktığında, sızdırma kalınlığı ~5,4 mm'den ~9,2 mm'ye çıkmaktadır. Bu iki bölgede zamana bağlı olarak gözlemlenen sızdırma kalınlığı değişimi dikkate alındığında, bu bölgelerde sızdırmayı kontrol eden mekanizmaların birbirinden farklı olabileceği düşünülmektedir.



(a)



(b)

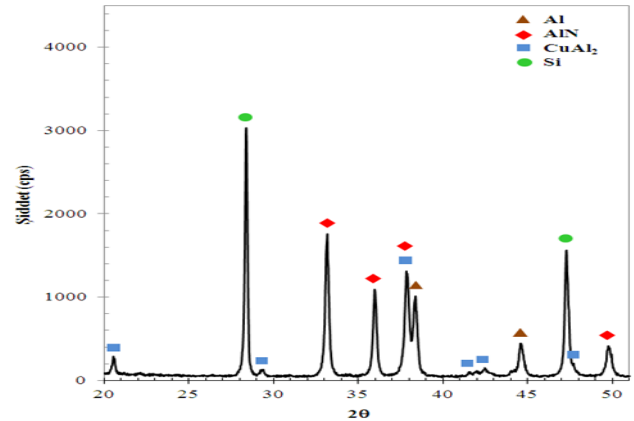
**Şekil 1.** (a) Farklı sıcaklıklarda 1 saat süreyle ve (b) 1200°C'de farklı sürelerde gerçekleştirilen sızdırma çalışmaları sonucu elde edilen sızdırma kalınlıkları.

Üretilen karma malzemelerin sızdırma sonrası oldukça yoğun olduğu (gözenek miktarı < %1) belirlenmiştir. Alanyazın incelemeleri sonucunda Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>-Al sisteminde gerçekleştirilen bazı çalışmalarda üretilen karma malzemelerde ulaşılan yoğunlaşma oranının bu çalışma kapsamında elde edilen değer oldukça altında kaldığı belirlenmiştir (Zhao ve ark. 2006). Zhao ve ark. (2006) tarafından gerçekleştirilen çalışmada, 850 ve 950°C'de gerçekleştirilen basınçsız sızdırma çalışmasından sonra 1200 ve 1300°C'de ısı işlem uygulanmış böylece gözenek miktarı ancak %9'lardan %4'lere indirilebilmiştir.

Gerçekleştirilen XRD evre analizleri sonucunda üretilen karma malzemelerde AlN, Si, Al ve CuAl<sub>2</sub> evrelerinin bulunduğu ve başlangıç tozu olarak kullanılan α-Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> evresinin tamamıyla tüketildiği belirlenmiştir (Şekil 2).

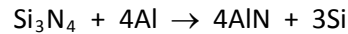
**Tablo 2.** Üretilen karma malzemelerin yığınsal yoğunluk ve açık gözenek miktarları.

Sızdırma sıcak ve süresi °C --- saat	Yoğunluk g/cm <sup>3</sup>	Açık Gözenek %
1350 --- 1	2,9	0,6
1300 --- 1	2,9	0,4
1300 --- 2	2,9	0,5
1200 --- 1	2,9	0,7



**Şekil 2.** 1200°C'de 1 saatte üretilen karma malzemeye ait XRD görünüşü.

Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> ile Al arasında gerçekleşen, AlN ve Si temel evrelerinin oluşumu ve Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> evresinin tüketilmesiyle sonuçlanan yer değiştirme tepkimesi eşitlik (1)'de sunulmaktadır.



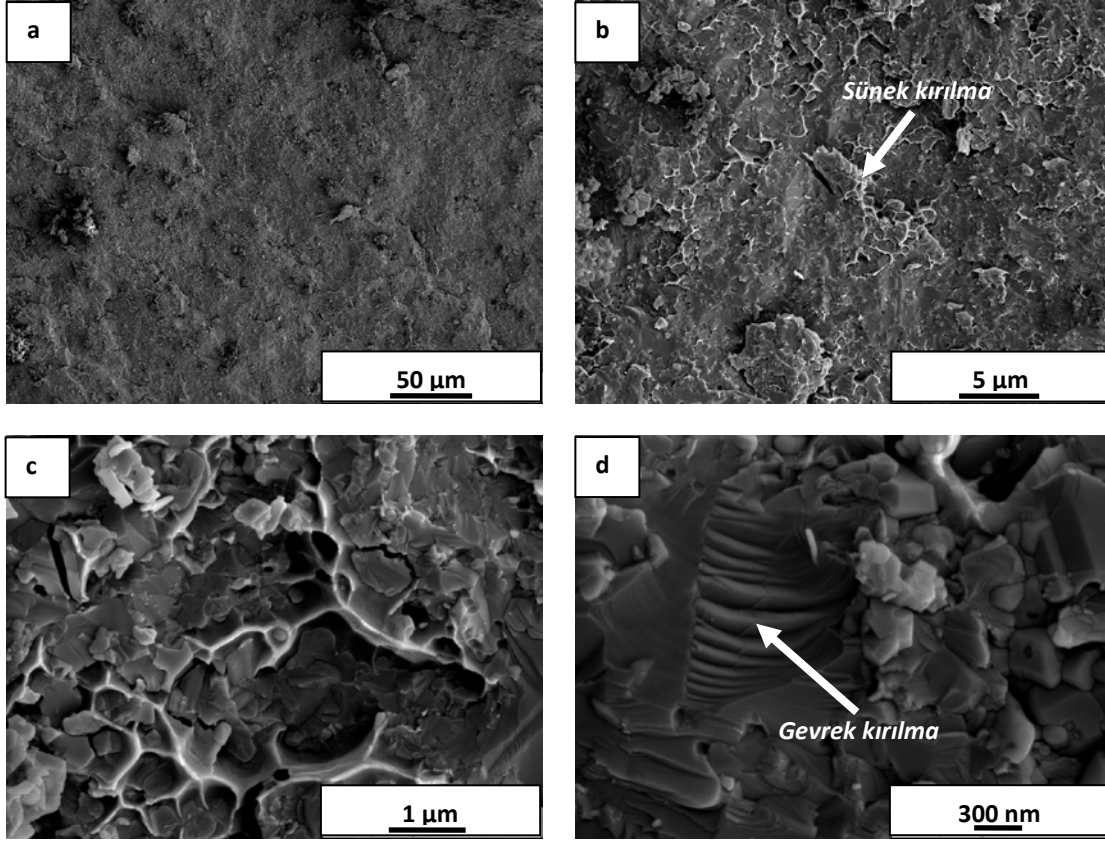
(1)

$$\Delta G_{1200^\circ\text{C}} = -355 \text{ kJ/mol}$$

$$\Delta H_{1200^\circ\text{C}} = -494 \text{ kJ/mol}$$

Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>-Al sisteminde üretilen, AlN-Al-Si karma malzemelerinin SEM incelemeleri bu malzemelerin oldukça ince bir içyapıya sahip olduğunu ve yığınsal yoğunluk ölçümleriyle tutarlı bir şekilde, genel olarak yapının oldukça yoğun olduğunu ispatlamıştır. Tepkimeler sonucu oluşan yeni evrelerin oldukça ince tane boyutuna (<1 µm) sahip olduğu bu karma malzemelerde, hem kırılma hem de sünek kırılma davranışının gerçekleştiği kırık yüzey SEM incelemeleriyle belirlenmiştir (Şekil 3). Üretilen AlN-Al-Si karma malzemelerinde oldukça yüksek oranda Si evresi bulunmaktadır. SEM incelemelerinde sünek kırılma gibi görünen bazı bölgelerde aslında tane çıkılmalarının meydana gelmiş olabileceği, bunların sünek kırılma izleri

olmayabileceği de düşünülmektedir.



**Şekil 3.** 1200°C’de 1 saatte üretilen AlN-Al-Si seramik-metal karma yapısının (a) 1 kX, (b) 10 kX, (c) 50 kX ve (d) 100 kX büyütmelerdeki kırık yüzey SEM görüntüleri.

#### 4. Tartışma ve Sonuç

Bu çalışma kapsamında basınçsız sızdırma yöntemiyle, 2024 Al alaşımı kullanılarak, Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>-Al sisteminde hafif (~2,9 g/cm<sup>3</sup>) ve yoğun (açık gözenek miktarı < %1) seramik-metal karma malzemelerin üretimi ve bu malzemelerin içyapı incelemeleri gerçekleştirilmiştir.

Sızdırma sürecinde Al evresiyle Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> arasında meydana gelen tepkimeyle Al metali tükenirken, yüksek ısı iletkenliğe sahip AlN evresi ve Al evresine oranla çok daha yüksek sertliğe sahip Si evresi oluşmuştur. Böylece basınçsız sızdırma tekniğiyle yüksek iletkenliğe sahip, nispeten sert ve tok oksit dışı seramik-metal karma malzemelerin ekonomik olarak üretimi gerçekleştirilmiştir.

AlN-Al-Si karma malzemelerin kırık yüzey SEM incelemeleri bu malzemelerin oldukça ince bir içyapıya sahip olduğunu ve yığınsal yoğunluk ölçümleriyle tutarlı bir şekilde, genel olarak yapının

yoğun olduğunu ispatlamıştır. İncelenen numunelerde kullanılan başlangıç malzemelerinin doğası gereği hem metallere özgü olan sünek, hem de seramiklere özgü olan gevrek kırılma bölgeleri gözlemlenmiştir.

#### Teşekkür

Yazarlar 060203 Nolu “Silisyum nitrür-bor karbür-alüminyum sisteminde kompozit malzemelerin geliştirilmesi” başlıklı Bilimsel Araştırma Projesi kapsamında verdiği finansal destek için Anadolu Üniversitesi’ne teşekkür etmektedir.

#### Kaynaklar

- Aghajanian, M.K., Biel, J.P. ve Smith, R.G., 1994. AlN matrix composites fabricated via an infiltration and reaction approach. *Journal of the American Ceramic Society*, **77**, 1917-1920.
- Zhao J.Z., Gao J.Q. ve Jin Z.H., 2006. Preparation of AlN matrix composites using an infiltration and reaction approach. *Materials Chemistry and Physics*, **97**, 506-510, 2006.