

**Szén nanoszerkezetekkel adalékolt szilícium-
nitrid nanokompozitok**

PhD téziszfüzet

Tapasztó Orsolya

Témavezető: Dr. Balázs Csaba

MTA TTK Műszaki Fizikai és Anyagtudományi Intézet

Budapest

2012

A kutatások előzménye

A műszaki területeken alkalmazott, kiváló tulajdonságokkal rendelkező kerámiák, egyre nagyobb teret hódítva, egyre több alkalmazás számára szolgáltatnak vonzó alternatívát a sokkal elterjedtebb fémes anyagoknál. Annak ellenére, hogy gyártásuk általában költségesebb, bizonyos alkalmazási területeken olyan mértékű javulás érhető el a funkcionalításban, amely hosszútávon sokszorosán megtérül mind költség, mind pedig az elérhető hatásfok tekintetében.

A műszaki kerámiák is rendelkeznek azonban számos, az anyagcsaládra jellemző korláttal, amelyek nagyrészt mechanikai ridegségükből származnak. Napjainkban egy ígéretes és korszerű eljárás, amely ezekre a problémákra megoldást jelenthet, illetve lehetővé teszi a kerámiák mechanikai, elektromos és termikus tulajdonságainak kontrolálását, a kerámia mátrix szén-nanoszerkezetekkel történő adalékolása. A kerámia alapú kompozitok nanoszerkezetekkel történő adalékolása témakörében több kulcsfontosságú kihívás is áll a területen dolgozók előtt. Egyrészt, biztosítani kell a nanoszerkezetek és a kerámia mátrix közötti határfelületen a mechanikai terhelés és az elektromos töltés minél hatékonyabb átadását, másrészt a nanoszerkezetek minél egyenletesebb eloszlását a kerámia mátrix teljes térfogatában. A nanoszerkezetek ugyanis nagy fajlagos felületük miatt különösen hajlamosak kisebb (néhány tíztől, néhány száz nanométerig terjedő) aggregátumokba, illetve nagyobb (több mikronos) agglomerátumokba tömörülni. A nanoméretű diszperz fázis agglomerációja jelentős mértékben rontja a nanokompozitok mechanikai tulajdonságait. A polimer kompozitokkal szemben, ahol a diszpergálás a mátrix folyékony állapotában is megoldható, a kerámiák esetében a nanoszerkezetek eloszlása mind a mai napig komoly kihívást jelent. Nagyrészt ennek tulajdonítják, hogy kerámiák esetében még nem sikerült elérni a mechanikai tulajdonságokban előzetesen elvárt javulást a szén nanoszerkezetek hozzáadásától. A probléma megoldása azért is különösen bonyolult, mert nem állnak

rendelkezésünkre olyan kvantitatív módszerek, amelyekkel a nanoszerkezetek diszperzióját a minta teljes térfogatára reprezentatív módon jellemezni tudnánk.

Célkitűzések

Doktori munkám célja a különböző szén nanoszerkezetekkel (egyfalú és többfalú szén nanocsövekkel, illetve néhány rétegű grafénnal) adalékolt Si_3N_4 alapú nanokompozitok vizsgálata, különös tekintettel a nanokompozitok mikroszerkezete és mechanikai tulajdonságai közötti összefüggések feltárására. Célkitűzéseim között szerepelt, hogy vizsgáljam, úgy a kerámia mátrix szerkezetének, mint a nanoszerkezetek eloszlásának hatását a nanokompozitok különböző mechanikai tulajdonságaira (szilárdság, törés, szívósság, keménység). Munkám során vizsgáltam, hogy milyen hatással bír a kiindulási porkeverék szemcsemérete a szinterelt minta mikroszerkezetére és mechanikai tulajdonságaira; összehasonlítottam két különböző szinterelési módszert (a plazma szinterelést és a meleg izosztikus préselést); illetve először alkalmazok kisszögű neutronszerelési kísérleteket kerámia alapú nanokompozitok vizsgálatára, amelynek segítségével globális módon sikerült jellemezni a szén nanoszerkezetek eloszlását a kerámia mátrix teljes térfogatában. Minden esetben arra törekedtem, hogy minél jobban feltárjam, a nanokompozitok mikroszerkezetére vonatkozó eredmények és a minták mechanikai tulajdonságai között fennálló összefüggéseket.

Új tudományos eredmények

Az elért új tudományos eredményeket a következő tézispontokban foglaltam össze:

- 1. Összefüggést állapítottam meg a kiinduló porkeverék őrlési ideje és a többfalú szén nanocsövekkel adalékolt szilícium-nitrid nanokompozitok szinterelés utáni fázisösszetétele, valamint mechanikai tulajdonságai között. [T1]**

- a. Kimutattam, hogy a szinterelési körülmények függvényében az őrlési idő, döntő módon befolyásolhatja a kerámia mátrix végső fázisösszetételét és ezáltal az előállított nanokompozitok mechanikai tulajdonságait.
- b. Rámutattam, hogy az őrlési idő megválasztásával az előállított nanokompozitok mechanikai tulajdonságai javíthatók, ám az optimalizálásához, figyelembe kell venni, hogy a Si_3N_4 mátrix anyagának végső fázisösszetételét az őrlési idő és a szinterelési paraméterek együttesen határozzák meg.

2. Összehasonlítottam kétféle szinterelési eljárással előállított többféle szén nanoszerkezettel (egyfalú- és többfalú szén nanocsövek, nanoszemcsés korom, illetve néhány rétegű grafénnal) adalékolt szilícium-nitrid kerámiák mikroszerkezetét és mechanikai tulajdonságait. Megmutattam, hogy a megfelelő típusú szinterelési eljárás megválasztásával a nanokompozitok más és más mechanikai tulajdonságának a javítása érhető el. [T2]

- a. Kimutattam, hogy az ívplazmás szinterelési módszerrel előállított minták döntően alfa szilícium-nitrid szemcsékből állnak és az erősítő nanoszerkezetek típusától függetlenül keményebb és ridegebb (nagyobb Young modulusú) nanokompozitokat eredményeznek.
- b. Megmutattam, hogy a meleg izosztikus préseléssel előállított minták döntően béta szilícium-nitrid fázisból állnak és a szén nanoszerkezetek típusától függetlenül szívósabb mintákat eredményeznek.

3. Elsőként alkalmaztam kisszögű neutronszerkezeti kísérleteket szén nanoszerkezetek eloszlásának vizsgálatára kerámia mátrixban. Megmutattam, hogy kisszögű neutronszerkezeti kísérletekkel a minta teljes térfogatára reprezentatív információt

kaphatunk a nanoszerkezetek térbeli eloszlásáról, szemben az eddig alkalmazott lokális elektronmikroszkópos módszerekkel. [T3,T4]

- a. Kimutattam, hogy az egyfalú szén nanocsövek eloszlása a szilícium-nitrid kerámia mátrixban felületi fraktál jellegű viselkedés mutat a neutronszórási kísérletekben, amely azzal magyarázható, hogy az egyfalú nanocsövek rendezetlen felületi (2D) hálózatok formájában ölelik körül a szilícium-nitrid kristallitok szemcséit.
- b. Megmutattam, hogy az egyfalú nanocsövekkel ellentétben, a többfalú szén nanocsövek tömbi fraktál jellegű viselkedés mutatnak a neutronszórási kísérletekben, amely a Si_3N_4 mátrixban kialakuló 3D (tömbi) rendezetlen agglomerátumoknak tulajdonítható.
- c. Bebizonyítottam, hogy ugyanolyan előállítási körülmények között, a néhány rétegű grafén lemezek sokkal egyenletesebben eloszthatók a kerámia mátrixban, mint a többfalú szén nanocsövek. A néhány rétegű grafén lemezek esetében sikerült elérni az egyéni diszperziót, míg a nanocsövek mindig rendezetlen agglomerátumokba tömörültek.
- d. Többfalú nanocsövek és néhány rétegű grafén összehasonlításával kimutattam, hogy a nanoszerkezetek eloszlása direkt korrelációba hozható az előállított nanokompozitok mechanikai tulajdonságaival. Így a kerámia mátrixban egyenletesebben elosztható néhány rétegű grafén lemezekkel erősített Si_3N_4 nanokompozitok mechanikai tulajdonságaiban 10 – 50 % -os javulást értem el a nanocsövek hozzáadásával készült kompozitokhoz viszonyítva.

A tézispontokhoz kapcsolódó tudományos közlemények

T1. O. Tapasztó, Cs. Balázs, The effect of milling time on the sintering kinetics of Si_3N_4 based nanocomposites. *Ceram. Internat.* **36**, 2247-2251. (2010)

T2. O. Tapasztó, P. Kun, F. Wéber, G. Gergely, K. Balázs, J. Pfeifer, P. Arató, A. Kidari, S. Hampshire, Cs. Balázs. Silicon nitride based nanocomposites

produced by two different sintering methods. *Ceram. Internat.* **37**, 3457-3461. (2011)

T3. O. Koszor, L. Tapasztó, M. Markó, Cs. Balázsi. Characterizing the global dispersion of carbon nanotubes in ceramic matrix nanocomposites. *Appl. Phys. Lett.* **93**, 201910. (2008)

T4. O. Tapasztó, L. Tapasztó, M. Markó, F. Kern, R. Gadow, Cs. Balázsi. Dispersion patterns of graphene and carbon nanotubes in ceramic matrix composites. *Chem. Phys. Lett.* 511, 340-343. (2011)

További tudományos közlemények

5. P Kun, O Tapasztó, F. Wéber, Cs. Balázsi. Determination of structural and mechanical properties of multilayer graphene added silicon nitride-based composites. *Ceram. Internat.* **38**, 211-216. (2012)

6. A Kovalčíková, Cs. Balázsi, J. Dusza, **O Tapasztó**. Mechanical properties and electrical conductivity in a carbon nanotube reinforced silicon nitride composite. *Ceram. Internat.* **38**, 527-533. (2012)

7. A Kovalčíková, O Tapasztó, Cs. Balázsi, J. Dusza. Indentation thermal shock resistance of Si₃N₄/CNT composites. *Chemické Listy* **105**, s824-s825. (2011)

8. P. Hvizdoš, A. Duszová, V. Puchý, O Tapasztó, P. Kun, J. Dusza, C. Balázsi. Wear behavior of ZrO₂-CNF and Si₃N₄-CNT nanocomposites. *Key Engineer. Mater.* **465**, 495-498. (2011)

9. J. Pfeifer, G. Sáfrán, F. Wéber, V. Zsigmond, O Koszor, P. Arató, C. Balázsi. Tribology Study of Silicon Nitride-Based Nanocomposites with Carbon Additions. *Mat. Sci. Forum* **659**, 235-238. (2010)

10. O Koszor, A Horváth, F Weber, K Balázs, F Gillemot, M Horvath, B Fényi, Cs Balázs. The effect of neutron irradiation on the mechanical properties of advanced silicon nitride nanocomposites. *Key Engineer. Mater.* **409**, 237-243. (2009)

11. O Koszor, A Lindemann, F Davin, C Balázs. Observation of thermophysical and tribological properties of CNT reinforced Si_3N_4 . *Key Engineer. Mater.* **409**, 354-357. (2009)

12. Cs Balázs, O Koszor, B Fényi, K Balázs. Engineered Electrical and Mechanical Properties of Carbon Nanotube Added Si_3N_4 Nanocomposites. In: Cs Balázs, O Koszor, B Fényi, K Balázs
Carbon Nanotubes: New Research.
New York: Nova Science Publishers Inc., 2008. pp. 200-224.