

温度和助剂含量对放电等离子 烧结 SiC 陶瓷的影响

Effects of temperature and additives content
on SiC ceramics prepared by spark
plasma sintering

高 丁,孙世杰,焦 健*

(中国航发北京航空材料研究院 先进复合材料
国防科技重点实验室,北京 100095)
GAO Ding,SUN Shijie,JIAO Jian*

(National Key Laboratory of Advanced Composites,AECC Beijing
Institute of Aeronautical Materials,Beijing 100095,China)

摘要: 采用 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Y}_2\text{O}_3\text{-CaO}$ 作为烧结助剂制备 SiC 陶瓷,通过阿基米德排水法、XRD、SEM、TEM 及维氏硬度测试等方法,探究烧结温度及烧结助剂含量对 SiC 陶瓷相对密度、物相结构、微观形貌和力学性能的影响。结果表明:在 1300~1800 °C 下,SiC 陶瓷相对密度、硬度以及断裂韧性都呈现出先增加后降低的趋势,在 1700 °C 达到最大值;1700~1800 °C 发生了 $\beta\text{-SiC}$ 向 $\alpha\text{-SiC}$ 的相变;减少烧结助剂含量会增加晶界结合强度,提升硬度,并抑制晶粒生长;在 1700 °C 和 7% (质量分数)烧结助剂含量的条件下,获得了最佳的烧结效果,相对密度、硬度和断裂韧性分别为 97.9%,23.3 GPa 和 $4.1 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ 。

关键词: 碳化硅;烧结温度;烧结助剂;微观形貌;力学性能

doi: 10.11868/j.issn.1001-4381.2021.000584

中图分类号: TB321 **文献标识码:** A **文章编号:** 1001-4381(2023)03-0052-07

Abstract: SiC ceramics were sintered with $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Y}_2\text{O}_3\text{-CaO}$ as additives. The effects of sintering temperature and additives content on the relative density, polytype, microstructure and mechanical properties of SiC ceramics were investigated by Archimedes drainage method, XRD, SEM, TEM and Vickers hardness test. The results show that the relative density, hardness and fracture toughness of SiC ceramics increase firstly and then decrease from 1300 °C to 1800 °C, and reach the maximum at 1700 °C. The phase transformation from $\beta\text{-SiC}$ to $\alpha\text{-SiC}$ occurs between 1700 °C and 1800 °C. Reducing the content of additives can increase the grain boundary bonding strength, and can improve the hardness and inhibition of the grain growth. Under the condition of 1700 °C and 7% (mass fraction) additives content, the best sintering results are obtained, with relative density, hardness and toughness of 97.9%, 23.3 GPa and $4.1 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$, respectively.

Key words: silicon carbide; sintering temperature; sintering additive; microstructure; mechanical property

SiC 材料由于具有密度低、强度高、耐高温性能好、抗氧化性强以及抗辐照性强等优点,近年来受到了航空航天以及核电等领域越来越多的关注^[1-4]。但是,SiC 是强共价键化合物,C 和 Si 原子具有较低的自扩散性,且 SiC 粉末表面易形成氧化层,严重地阻碍了其烧结致密化过程,因此 SiC 致密化成为目前研究的热点和难点^[5-7]。

通常促进 SiC 陶瓷烧结致密化的技术途径包括提

高温或压力、采用特殊烧结工艺以及添加烧结助剂等。特殊烧结工艺包括热压烧结、热等静压烧结和放电等离子烧结(spark plasma sintering,SPS)等^[8-10],其中 SPS 具有升温迅速、烧结时间短并且可能产生等离子体促进烧结过程等优点,成为烧结 SiC 重要的工艺手段之一^[11-13]。Lara 等利用 SPS 烧结了纯 SiC 纳米粉末,在 2100 °C 时实现了纳米晶 SiC 的制备^[14]。Rahman 等利用 SPS 在 2100 °C 烧结了聚碳硅烷

(PCS)热解的非晶粉末,力学性能超过了商用 SiC 材料以及商用 SiC 粉末烧结制品^[15]。此外,添加烧结助剂是促进 SiC 烧结致密化的重要方法之一。烧结助剂可分为固相烧结助剂和液相烧结助剂两种,其中液相烧结助剂能更大程度地促进 SiC 烧结的动力学过程。液相烧结助剂种类繁多,例如 Al₂O₃-Y₂O₃, Y₂O₃-Sc₂O₃-MgO, Al₂O₃-AlN-Y₂O₃ 以及 Al₂O₃-Y₂O₃-TiO₂ 等^[16-19]。文献表明:Al₂O₃-CaO-SiO₂ 的共晶温度低于 1200 ℃^[20], Al₂O₃-Y₂O₃-SiO₂ 的共晶温度低于 1350 ℃^[21],因此 Al₂O₃-Y₂O₃-CaO 可能在较低温度下与 SiC 粉末表面的 SiO₂ 形成四元共熔相,是一种促进 SiC 低温烧结致密化的潜在烧结助剂。

本工作系统探究了 6 种不同烧结温度及 3 种不同 Al₂O₃-Y₂O₃-CaO 含量对 SiC 陶瓷相对密度、物相结构、微观形貌和力学性能的影响,分析了 SiC 烧结致密化行为及相关机理。

1 实验材料与方法

1.1 实验材料与步骤

将 SiC(粒径 0.5 μm,99.9%,秦皇岛一诺高新材料开发有限公司),Al₂O₃(粒径 0.2 μm,99.99%,福斯曼科技(北京)有限公司),Y₂O₃(粒径 0.2 μm,99.99%,福斯曼科技(北京)有限公司)以及 CaO(分析纯,国药集团化学试剂有限公司)粉末在无水乙醇中球磨混合 6 h,干燥、研磨并过筛(60 目),得到混合粉末;将混合粉末装入石墨模具中,采用 HP D 5/2 型放电等离子烧结炉,在真空、20 MPa 压力下,保温 8 min,得到 SiC 烧结陶瓷块体。具体的粉末配比及烧结温度列于表 1,样品名称以 S-13-9 为例,其中“13”意为 1300 ℃,“9”表示烧结助剂含量为 9%(质量分数,下同)。

表 1 样品成分及烧结温度

Table 1 Sample composition and sintering temperature

Sample designation	Sintering temperature/℃	Composition (mass fraction/%)			
		SiC	Al ₂ O ₃	Y ₂ O ₃	CaO
S-13-9	1300	91.0	5.5	3.0	0.5
S-14-9	1400	91.0	5.5	3.0	0.5
S-15-9	1500	91.0	5.5	3.0	0.5
S-16-9	1600	91.0	5.5	3.0	0.5
S-17-9	1700	91.0	5.5	3.0	0.5
S-18-9	1800	91.0	5.5	3.0	0.5
S-17-7	1700	93.0	4.3	2.3	0.4
S-17-5	1700	95.0	3.0	1.7	0.3

1.2 测试及表征

采用阿基米德法测得样品体积密度,由混合定律

计算得到理论密度后,得出相对密度值;采用 FM-ARS900 型维氏硬度计测得抛光后的样品硬度以及压痕裂纹长度,并由经验式(1)得出断裂韧性:

$$K_{IC} = 0.016 (E/H_V)^{1/2} P/C^{3/2}$$
 (1)

式中:K_{IC}为断裂韧性,MPa·m^{1/2};E为弹性模量,GPa;H_V为维氏硬度,GPa;P为载荷,N;C为裂纹对角线半长,10⁻⁴ m^[22]。

采用 ETCHLAB 200 型等离子体刻蚀设备对抛光后的样品截面进行刻蚀,采用 NOVA NANO-450 型扫描电镜对样品断口和刻蚀后的截面形貌进行观察;采用 Talos f200x 型透射电镜对样品微观结构进行观察;将样品敲碎研磨成粉末,采用 D8 Discover 型 X 射线衍射仪对样品物相结构进行分析,并采用 GSAS-II 软件对衍射数据进行 Rietveld 精修拟合获得物相含量及晶粒尺寸^[23]。

2 结果与分析

2.1 相对密度分析

图 1 为含有 9%烧结助剂的 SiC 陶瓷的相对密度随烧结温度变化趋势。由图可知,当烧结温度从 1300 ℃升至 1800 ℃时, SiC 陶瓷块体的相对密度呈现先增加后降低的趋势,在 1700 ℃达到最大值(98.0%)。当温度从 1300 ℃上升至 1600 ℃时, SiC 陶瓷块体密度显著增加;温度达到 1600~1700 ℃时, SiC 几乎完全致密化,相对密度超过了 97%,烧结温度远低于纯 SiC;然而当温度达到至 1800 ℃时,相对密度降低至 88.28%。

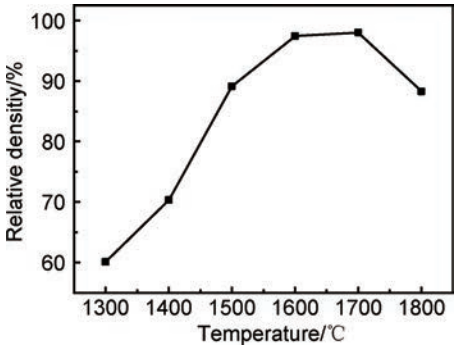


图 1 SiC 陶瓷相对密度随烧结温度变化

Fig. 1 Relative density of SiC ceramics as a function of sintering temperature

图 2 为烧结温度在 1700 ℃时不同烧结助剂含量对 SiC 烧结密度的影响,结果表明 5%,7% 和 9% 的烧结助剂都能够使得 SiC 烧结块体获得较高的致密度,3 种烧结助剂含量对烧结致密化影响不大,相对密度分别达到 96.4%,97.9%和 98.0%。

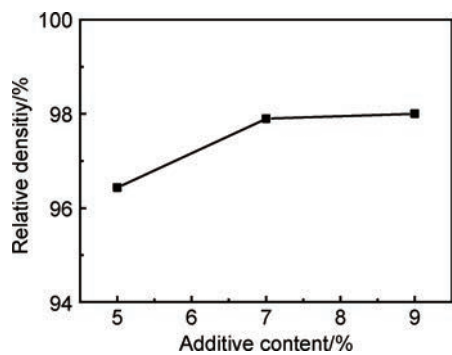


图 2 1700 °C 烧结的 SiC 陶瓷相对密度随烧结助剂含量变化曲线
Fig. 2 Relative density of SiC ceramics sintered at 1700 °C as a function of additives content

2.2 微观形貌及物相结构分析

不同烧结温度和烧结助剂含量的 SiC 陶瓷断口的微观形貌如图 3 所示。在 1300 °C 下, SiC 几乎没有烧结的现象, 块体内部主要是由压力作用机械结合在一起的粉末组成; 当温度上升至 1500 °C 时, 大部分晶粒之间结合紧密, 但存在少量的孔隙; 样品在 1600 ~ 1800 °C 下几乎观察不到孔隙的存在, 并且晶粒尺寸随温度升高而增大; S-17-9 和 S-18-9 断口呈现出明显的沿晶-穿晶混合断裂模式(箭头处为穿晶断裂特征), 表明烧结助剂的存在使得 SiC 晶界结合强度较弱; 对比不同烧结助剂含量下 3 种样品的组织结构, 发现减少

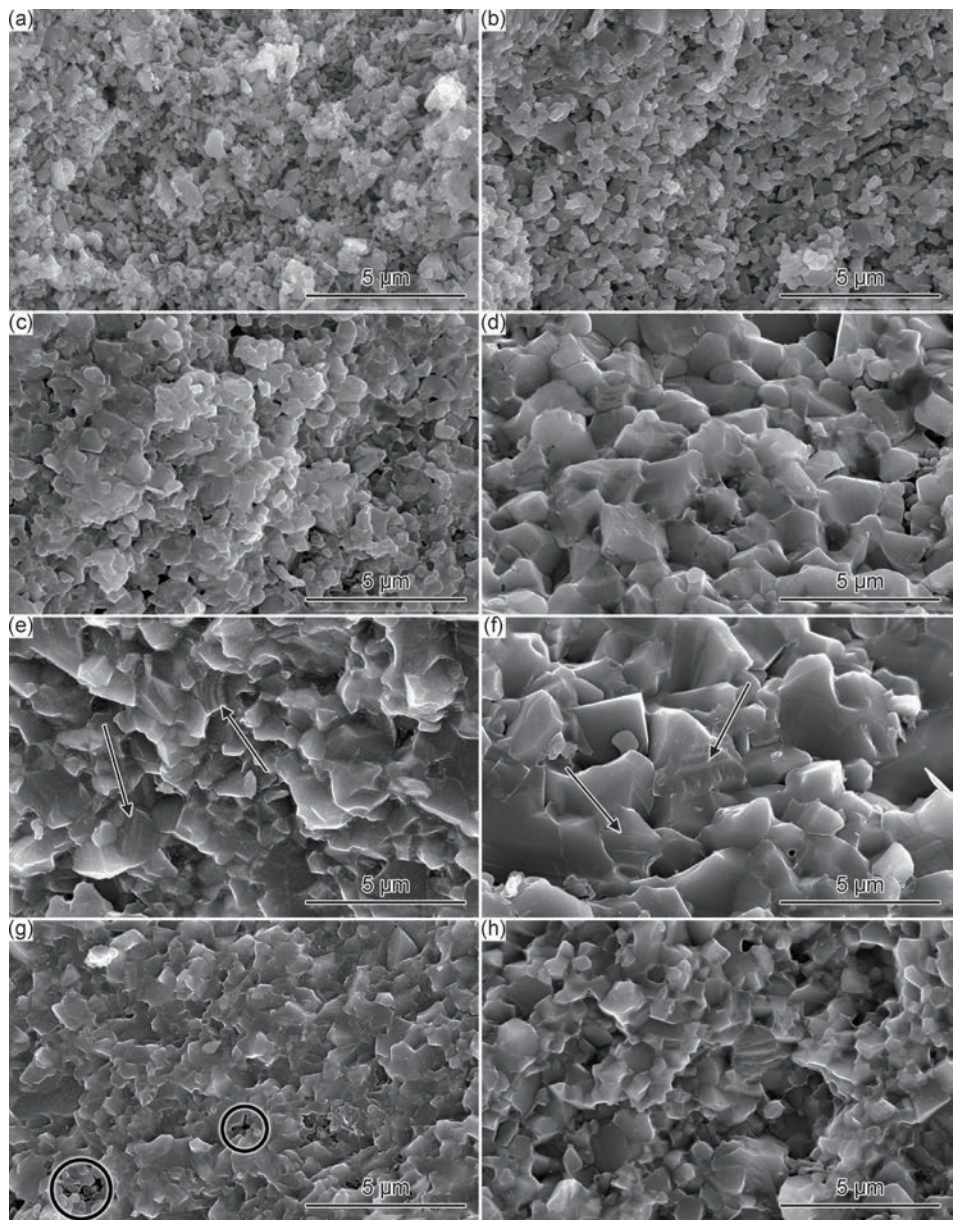


图 3 烧结 SiC 样品断面微观形貌

(a)S-13-9;(b)S-14-9;(c)S-15-9;(d)S-16-9;(e)S-17-9;(f)S-18-9;(g)S-17-5;(h)S-17-7
Fig. 3 Microstructure of sintered SiC sample fracture surfaces
(a)S-13-9;(b)S-14-9;(c)S-15-9;(d)S-16-9;(e)S-17-9;(f)S-18-9;(g)S-17-5;(h)S-17-7

烧结助剂含量后,S-17-7 和 S-17-5 晶粒尺寸明显减小,且穿晶断裂趋势增强,表明减少烧结助剂含量可以抑制晶粒生长,减少较弱的晶界相,增加晶界结合强度。此外 S-17-5 烧结助剂含量偏少,部分晶粒之间无法实现液相烧结过程,因此存在少量且细小的孔隙(图 3(g)中黑色圆圈处),这也是其密度略微下降的原因。

通过等离子体刻蚀 SiC 陶瓷抛光截面的晶粒,对

SiC 陶瓷的晶粒和晶界形态进行分析,图 4 为 S-17-9 和 S-18-9 刻蚀后的抛光截面。S-17-9 整体结构致密,晶粒尺寸较小,晶粒完全被网状晶界相包裹,其中的晶界相可能为烧结助剂所形成的化合物。S-18-9 形成了细长型晶粒,晶界平直化趋势明显,此外在其三叉晶界处存在少量的孔隙,聚集在此的液相在较高温度下发生了分解及蒸发,使 S-18-9 相对密度下降。

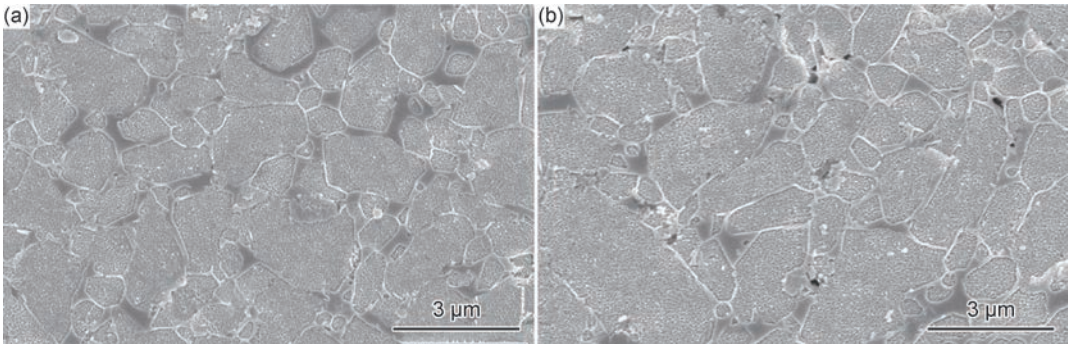


图 4 抛光并刻蚀后 SiC 微观形貌 (a)S-17-9;(b)S-18-9
Fig. 4 Microstructures of SiC after polishing and plasma etching (a)S-17-9;(b)S-18-9

采用透射电镜对烧结样品微观结构进一步分析,S-17-9 样品的高角环形暗场相如图 5(a)所示,可以清晰地观察到 SiC 晶粒和晶界相的分布,EDS 分析结果如图 5(b)所示,结果表明:Al,Y,Ca 和 O 在 SiC 三叉晶界处富集,证明晶界相主要是烧结助剂 Al-Y-Ca-O 所形成的化合物。将图 5(a)中白色方框处放大,

HRTEM 结果如图 5(c)所示,图中左侧 3C-SiC 晶格条纹清晰,右侧烧结助剂没有明显的晶格条纹,表明晶界的烧结助剂为无定形态,这是由于 SPS 较快的冷却速度,液相凝固过程中难以有序化,形成了玻璃相结构。由于裂纹倾向于沿玻璃相扩展,使得图 3 中 S-17-9 样品出现穿晶-沿晶混合断裂模式,因此促进裂纹的

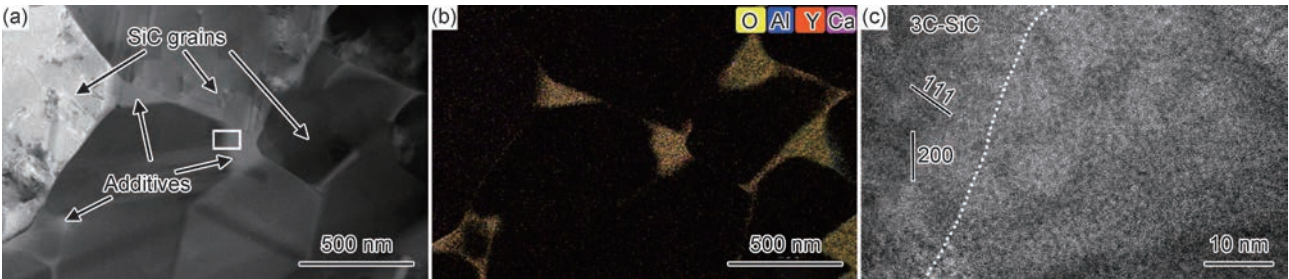


图 5 S-17-9 的 TEM 图
(a)高角环形暗场相;(b)EDS 图;(c)在图(a)中方框处的晶界相 HRTEM 图

Fig. 5 TEM images of S-17-9
(a)high-angle angular dark field image;(b)mapping scan EDS analyses;(c)HRTEM micrograph in the square frame in fig. (a)

偏转,能在一定程度上提升韧性。

图 6(a)为 SiC 样品粉末的 XRD 图,图 6(b)为其中 30°~50°范围内 XRD 衍射图谱。由图可知,所有样品中主要为 3C-SiC 相,含有少量 4H-SiC 和 6H-SiC 相,且各相的衍射峰强度随温度升高而增加。1300 ℃ 处理后,烧结助剂中的 Y₂O₃ 衍射峰完全消失,Al₂O₃ 衍射强度减小,表明部分的烧结助剂在此温度下形成

了 Al-Y-Ca-O 熔融相,未出现相关的衍射峰则是其形成了玻璃相结构。在 1400 ℃ 以上 Al₂O₃ 完全溶解,在冷却后析出少量 γ-Al₂O₃ (pdf No. 46-1215),这是一种由于快速降温而形成的亚稳态结构^[24],表明烧结助剂中的氧化铝含量可能偏高。当温度高于 1500 ℃ 时,晶粒尺寸随温度上升而明显增大,使得 SiC 衍射峰强度增加。

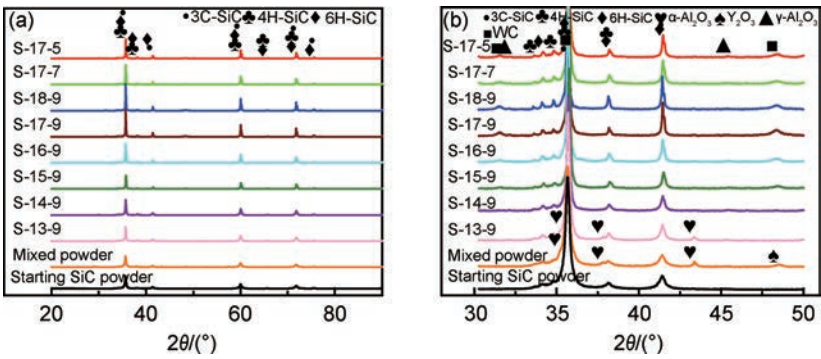


图 6 样品粉末的 XRD 谱图
(a) 2θ 在 $20^{\circ}\sim 90^{\circ}$ 之间的完整衍射图; (b) 2θ 在 $30^{\circ}\sim 50^{\circ}$ 之间的局部放大衍射图

Fig. 6 XRD patterns of sample powders

(a) complete patterns with 2θ from 20° to 90° ; (b) locally amplified patterns with 2θ from 30° to 50°

为了进一步分析 SiC 陶瓷的相转变过程及晶粒尺寸变化,采用 GSAS-II 软件对 XRD 数据进行 Rietveld 精修,表 2 为拟合后 SiC 晶型的定量分析以及晶粒尺寸结果。其中,原料粉末中 3C-SiC 相大约占 81%,且 1700°C 以下都未发生相转变;在 $1700\sim 1800^{\circ}\text{C}$ 之间发生了 3C 相向 6H 和 4H 相的转变,这一转变温度远低于相关文献中报道的温度^[2],这是由于部分 Al 原子固溶进 SiC 晶格,形成点缺陷,促进了相转变过程^[25],此外,SPS 中的应力场和电流也能影响 SiC 相变^[26-27]。而图 4(b)中出现的部分细长型晶粒则是 β 相(即 3C 相)转变为 α 相(即 6H 相、4H 相等)过程中形成的^[28],由于烧结过程仅 8 min,相转变和晶粒生长无法进行完全,因此 α -SiC 含量较少且细长型晶粒数量较少。此外,当烧结温度在 1500°C 以上时,晶粒尺寸从 $0.5\text{ }\mu\text{m}$ 逐渐生长至 $1.8\text{ }\mu\text{m}$,表明 Ostwald 熟化主要在 1500°C 以上发生。

表 2 SiC 原料粉末和 SiC 烧结样品晶型含量
及晶粒尺寸拟合结果

Table 2 Fitting results of polytype contents and grain size
in the starting SiC powder and sintered SiC samples

Sample designation	Polytype content/%			Grain size/ μm
	3C	6H	4H	
Starting powder	81.2	11.7	7.1	0.2
S-13-9	81.9	11.1	7.0	0.3
S-14-9	82.7	9.5	7.8	0.3
S-15-9	80.8	12.3	6.9	0.5
S-16-9	80.5	11.5	8.0	0.9
S-17-9	81.3	10.5	8.2	1.5
S-18-9	69.5	14.6	15.9	1.8
S-17-7	80.3	11.4	8.3	0.9
S-17-5	80.6	11.5	7.9	0.9

有影响,但对晶粒尺寸影响较大,烧结助剂含量从 9% 降低至 7%,晶粒尺寸从 $1.5\text{ }\mu\text{m}$ 减小至 $0.9\text{ }\mu\text{m}$,而烧结助剂含量从 7% 降低至 5% 时,晶粒尺寸几乎没有变化。

2.3 力学性能分析

含有 9% 烧结助剂的 SiC 陶瓷硬度和韧性随烧结温度变化如图 7 所示。随着温度上升,硬度和韧性都呈现出先增加后降低的趋势,在 1700°C 达到最大值,分别为 22.6 GPa 和 $3.9\text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ 。在 1500°C 的极低烧结温度下,碳化硅陶瓷的硬度和韧性分别为 16.4 GPa 和 $2.8\text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ 。然而当温度上升至 1800°C 时,晶间存在孔隙,此外还有晶粒长大的影响,导致了硬度和韧性不同程度的下降。

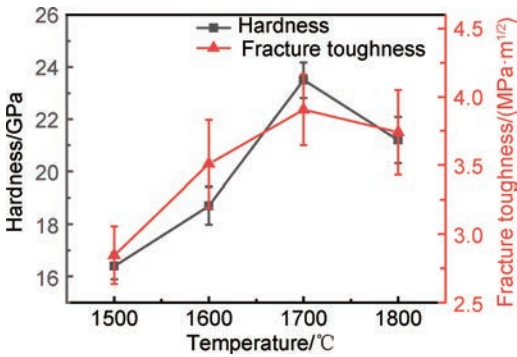


图 7 不同温度烧结 SiC 陶瓷的硬度和断裂韧性
Fig. 7 Hardness and fracture toughness of SiC ceramics as
a function of sintering temperature

不同烧结助剂含量的 SiC 陶瓷硬度和韧性变化如图 8 所示,3 种烧结助剂含量的 SiC 陶瓷硬度和韧性差异不大。随着烧结助剂含量的增加,硬度不断降低,断裂韧性呈现出先增加后降低的趋势。S-17-5 致密度相对较低,存在少量孔隙,但由于 Hall-Petch 效应以及较软晶界相的减少,使其具有最高的硬度 (23.5

1700°C 时烧结助剂含量的变化对相转变几乎没

GPa),同时也表明在 1700 °C 下仅含有 5% 的烧结助剂能够使 SiC 完全烧结,但由于其穿晶断裂趋势明显,裂纹的偏转和桥接减弱,韧度相对较差。而 S-17-7 晶粒细小, SiC 晶界结合强度较高,因此综合力学性能优异,硬度和韧度分别为 23.3 GPa 和 $4.1 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ 。

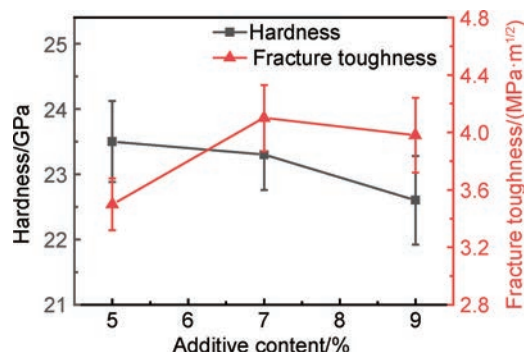


图 8 不同烧结助剂含量的 SiC 陶瓷硬度和断裂韧度(1700 °C 烧结)

Fig. 8 Hardness and fracture toughness of SiC as a function of sintering additives content (sintered at 1700 °C)

综上所述,可得出含 Al_2O_3 - Y_2O_3 -CaO 烧结助剂的 SiC 烧结过程,如图 9 所示。在低于 1400 °C 时, SiC 样品整体结构疏松,其收缩的原因是颗粒重排以及烧结助剂之间的反应,因此其力学性能较差;1500 °C 时液相黏度降低,在毛细作用下烧结助剂填充大部分孔隙,样品达到较高密度,同时显著降低了 Si 和 C 原子在液相中的扩散阻力,促进了溶解再沉淀过程,此时晶粒尺寸出现少量的增长;1600 °C 时液相填充所有孔隙,几乎完全致密化,晶粒生长明显,但 SiC 晶粒之间结合较弱,力学性能较低;当温度上升至 1700 °C,达到较高的相对密度和力学性能,晶粒之间结合紧密,液相集中于三叉晶界处;1800 °C 时位于三叉晶界的液相蒸发、分解出气体(如 Al_2O 和 CO 等)^[29],降低致密度和力学性能,部分 β 相 SiC 转变为 α 相,形成细长型晶粒,晶界趋向于平直化。

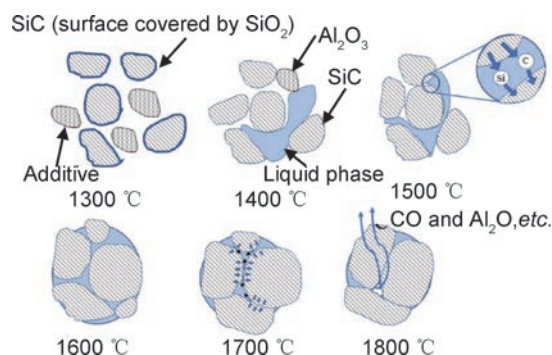


图 9 SiC 烧结过程示意图

Fig. 9 Schematic diagram of SiC sintering process

3 结论

(1) SiC 陶瓷烧结密度随温度先升高后降低,在 1700 °C 下达到最大值(98.0%), 5%~9% 的烧结助剂都能使 SiC 在 1700 °C 下烧结,对烧结密度影响较小。

(2) 温度超过 1500 °C 后,晶粒尺寸随温度增加而显著增大,晶界结合强度增加,减少烧结助剂含量会增加晶界结合强度,并且明显抑制晶粒生长。

(3) 由于 Al 原子固溶以及 SPS 中电流和应力场的影响, SiC 相转变温度降低,1800 °C 发生了 β 相向 α 相的转变,并因此形成了少量细长型晶粒。

(4) SiC 陶瓷硬度和断裂韧度随烧结温度先增加后降低,在 1700 °C 和 7% 烧结助剂含量的条件下,获得了最佳的烧结效果,相对密度、硬度和韧度分别为 97.9%, 23.3 GPa 和 $4.1 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ 。

参考文献

- [1] 焦健,陈明伟. 新一代发动机高温材料——陶瓷基复合材料的制备、性能及应用[J]. 航空制造技术, 2014(7): 62-69.
JIAO J, CHEN W M. New generation of high-temperature material for engine-preparation, property and application of ceramic matrix composites[J]. Aeronautical Manufacturing Technology, 2014 (7). 62-69.
- [2] AN Q, CHEN J, MING W, et al. Machining of SiC ceramic matrix composites: a review[J]. Chinese Journal of Aeronautics, 2021, 34 (4): 540-567.
- [3] 刘虎,杨金华,周怡然,等. 国外航空发动机用 SiC_f/SiC 复合材料的材料级性能测试研究进展[J]. 材料工程, 2018, 46(11): 1-12.
LIU H, YANG J H, ZHOU Y R, et al. Progress in coupon tests of SiC_f/SiC ceramic matrix composites used for aero engines[J]. Journal of Materials Engineering, 2018, 46(11): 1-12.
- [4] 刘巧沐,黄顺洲,何爱杰. 碳化硅陶瓷基复合材料在航空发动机上的应用需求及挑战[J]. 材料工程, 2019, 47(2): 1-10.
LIU Q M, HUANG S Z, HE A J. Application requirements and challenges of CMC-SiC composites on aero-engine[J]. Journal of Materials Engineering, 2019, 47(2): 1-10.
- [5] MAITRE A, PUT A V, LAVAL J P, et al. Role of boron on the spark plasma sintering of an α -SiC powder[J]. Journal of the European Ceramic Society, 2008, 28(9): 1881-1890.
- [6] KHODAEI M, YAGHOBI ZADEH O, NAGHAVI ALHOSSEINI S H, et al. The effect of oxide, carbide, nitride and boride additives on properties of pressureless sintered SiC: a review[J]. Journal of the European Ceramic Society, 2019, 39(7): 2215-2231.
- [7] RAJU K, YOON D H. Sintering additives for SiC based on the reactivity: a review[J]. Ceramics International, 2016, 42(16): 17947-17962.
- [8] NOVIYANTO A, HAN S W, YU H W, et al. Rare-earth nitrate additives for the sintering of silicon carbide[J]. Journal of the European Ceramic Society, 2013, 33: 2915-2923.
- [9] LI C, LI S, AN D, et al. Microstructure and mechanical properties

- of spark plasma sintered SiC ceramics aided by B_4C [J]. *Ceramics International*, 2020, 46(8):10142-10146.
- [10] LI J F, KAWASAKI A, WATANABE R. Hot isostatically pressed SiC-AlN powder mixtures; effect of milling on solid-solution formation and related properties[J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 2010, 81(6):1445-1452.
- [11] HU Z Y, ZHANG Z H, CHENG X W, et al. A review of multi-physical fields induced phenomena and effects in spark plasma sintering; fundamentals and applications[J]. *Materials & Design*, 2020, 191:108662.
- [12] DUDINA D V, BOKHONOV B B, OLEVSKY E A. Fabrication of porous materials by spark plasma sintering; a review[J]. *Materials*, 2019, 12(3):541.
- [13] GUILLON O, GONZALEZ-JULIAN J, DARGATZ B, et al. Field-assisted sintering technology/spark plasma sintering; mechanisms, materials, and technology developments[J]. *Advanced Engineering Materials*, 2014, 16(7):830-849.
- [14] LARA A, ORTIZ A L, MUÑOZ A, et al. Densification of additive-free polycrystalline β -SiC by spark-plasma sintering[J]. *Ceramics International*, 2012, 38(1):45-53.
- [15] RAHMAN A, SINGH A, HARIMKAR S P, et al. Mechanical characterization of fine grained silicon carbide consolidated using polymer pyrolysis and spark plasma sintering[J]. *Ceramics International*, 2014, 40(8):12081-12091.
- [16] KIM Y H, KIM Y W, LIM K Y, et al. Mechanical and thermal properties of silicon carbide ceramics with yttria-scandia-magnesia[J]. *Journal of the European Ceramic Society*, 2019, 39:144-149.
- [17] KIM K J, EOM J H, KIM Y W, et al. Highly resistive SiC ceramics sintered with Al_2O_3 -AlN- Y_2O_3 additions[J]. *Ceramics International*, 2017, 43(6):5343-5346.
- [18] KHODAEI M, YAGHOBI ZADEH O, EHSANI N, et al. The effect of TiO_2 additive on the electrical resistivity and mechanical properties of pressureless sintered SiC ceramics with Al_2O_3 - Y_2O_3 [J]. *International Journal of Refractory Metals & Hard Materials*, 2018, 76:141-148.
- [19] 陈鹏, 朱小刚, 吴甲民, 等. 基于 SLS/CIP 工艺 SiC 陶瓷的制备及其性能[J]. *材料工程*, 2019, 47(3):87-93.
- CHEN P, ZHU X G, WU J M, et al. Preparation and properties of SiC ceramics via SLS/CIP process[J]. *Journal of Materials Engineering*, 2019, 47(3):87-93.
- [20] SABU U, MAJUMDAR B, SAHA B P, et al. Spark plasma sintering of silicon carbide with Al_2O_3 and CaO; densification behavior, phase evolution and mechanical properties[J]. *Transactions of the Indian Ceramic Society*, 2018, 77(4):202-208.
- [21] BONDAR I A, GALAKHOV F Y. Phase equilibria in the system Y_2O_3 - Al_2O_3 - SiO_2 [J]. *Bulletin of the Academy of Sciences of the USSR Division of Chemical Science*, 1964, 13(7):1231-1232.
- [22] ANSTIS G R, CHANTIKUL P, LAWN B R, et al. A critical evaluation of indentation techniques for measuring fracture toughness; I, direct crack measurements[J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 1981, 64(9):533-538.
- [23] TOBY B H, VON DREELE R B. GSAS-II: the genesis of a modern open-source all purpose crystallography software package[J]. *Journal of Applied Crystallography*, 2013, 46(2):544-549.
- [24] FARGEOT D, MERCURIO D, DAUGER A. Structural characterization of alumina metastable phases in plasma sprayed deposits[J]. *Materials Chemistry & Physics*, 1990, 24(3):299-314.
- [25] 邵俊琦. 低温烧结 SiC 陶瓷基复合材料工艺与性能研究[D]. 大连:大连理工大学, 2018.
- SHAO J Q. Low-temperature sintering and characterization of SiC-based ceramic[D]. Dalian: Dalian University of Technology, 2018.
- [26] LEE Y, LEE J H, SHIN D G, et al. Phase transformation on spark plasma sintered dense polycarbosilane-derived SiC without additive[J]. *Scripta Materialia*, 2018, 143:188-190.
- [27] LIU L, YE F, ZHOU Y. Electric current pulse activated $6H \rightarrow 3C$ transformation in silicon carbide compacts[J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 2011, 94(9):2767-2771.
- [28] PADTURE N P. *In situ*-toughened silicon carbide[J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 1994, 77(2):519-523.
- [29] MULLA M A, KRSTIC V D. Low-temperature pressureless sintering of β -silicon carbide with aluminum oxide and yttrium oxide additions[J]. *American Ceramic Society Bulletin*, 1991, 70:439-443.

收稿日期:2021-06-23;修订日期:2021-11-26

通讯作者:焦健(1976—),男,研究员,博士,研究方向为陶瓷基复合材料,联系地址:北京市 81 信箱 5 分箱(100095),E-mail:jian.jiao@biam.ac.cn

(本文责编:刘丹阳)