



(12)发明专利申请

(10)申请公布号 CN 106830690 A

(43)申请公布日 2017.06.13

(21)申请号 201710124796.5

(22)申请日 2017.03.03

(71)申请人 中南大学

地址 410083 湖南省长沙市岳麓区麓山南路932号

(72)发明人 罗志伟 张静 卢安贤 刘建磊
宋俊 韩磊 于静波 张骞

(74)专利代理机构 长沙市融智专利事务所
43114

代理人 颜勇

(51)Int.Cl.

C03C 10/00(2006.01)

C03C 3/095(2006.01)

C03C 3/085(2006.01)

C03C 6/02(2006.01)

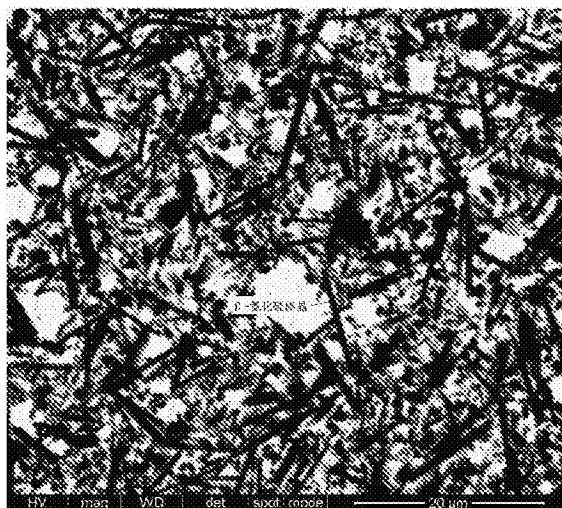
权利要求书2页 说明书7页 附图3页

(54)发明名称

一种自增强增韧的氮化硅/氮化铝/钨钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料及其制备方法

(57)摘要

本发明公开了一种自增强增韧的氮化硅/氮化铝/钨钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料及其制备方法。该三元复合材料以钨钡铝硅酸盐玻璃粉末、氮化铝粉末以及 α -氮化硅粉末为原料,通过制坯和烧结制得,其含有 β -氮化硅棒晶。本发明所设计的三元复合材料具有低密度、高强度、高断裂韧性、高介电常数、低膨胀系数、高热导率等特点。本发明制备工艺较为简单,玻璃熔化温度和复合材料的烧结温度较低,对环境友好,生产成本较低。制得的复合材料具有较好的应用前景,可部分替代现有的高温结构材料,使用在国防军工、电子器件、高热导率陶瓷基板以及高端陶瓷零部件等领域。



1. 一种自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料,其特征在于,以镧钡铝硅酸盐玻璃粉末、氮化铝粉末以及 α -氮化硅粉末为原料,通过制坯和烧结制得;所述自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料含有 β -氮化硅棒晶。

2. 根据权利要求1所述的自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料,其特征在於:所述原料中镧钡铝硅酸盐玻璃粉末、氮化铝粉末、 α -氮化硅粉末的质量百分比为:

镧钡铝硅酸盐玻璃粉末占27.0~33.0%,

氮化铝粉末占16.0~20.0%,

α -氮化硅占47.0~57.0%。

3. 根据权利要求1所述的自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料,其特征在於,所述镧钡铝硅酸盐玻璃以质量百分比计,包括下述组分:

La_2O_3 22.0-28.0%,

BaO 8.0~12.0%,

Al_2O_3 8.0~12.0%,

SiO_2 50.0~60.0%。

4. 根据权利要求1所述的自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料,其特征在於,原料中镧钡铝硅酸盐玻璃粉末、氮化铝粉末、 α -氮化硅粉末的质量百分比为:

镧钡铝硅酸盐玻璃粉末 27.0~30.0%,

氮化铝粉末 16.0~20.0%,

α -氮化硅 53.0~57.0%;

所述镧钡铝硅酸盐玻璃粉以质量百分比计由下述组分组成:

La_2O_3 22.0~25.0%,

BaO 8.0~10.0%,

Al_2O_3 9~11.0%,

SiO_2 55.0~60%。

5. 根据权利要求4所述的自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料,其特征在於,原料中镧钡铝硅酸盐玻璃粉末、氮化铝粉末、 α -氮化硅粉末的质量百分比为:

镧钡铝硅酸盐玻璃粉末 27.0%,

氮化铝粉末 16.0%,

α -氮化硅 57.0%;

所述镧钡铝硅酸盐玻璃粉以质量百分比计有下述组分组成:

La₂O₃ 25.0%,

BaO 10.0%,

Al₂O₃ 10.0%,

SiO₂ 55.0%。

6. 根据权利要求4所述的自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料,其特征在於,原料中镧钡铝硅酸盐玻璃粉末、氮化铝粉末、 α -氮化硅粉末的质量百分比为:

镧钡铝硅酸盐玻璃粉末 27.0%,

氮化铝粉末 20.0%,

α -氮化硅 53.0%;

所述镧钡铝硅酸盐玻璃粉以质量百分比计有下述组分组成:

La₂O₃ 22.0%,

BaO 8.0%,

Al₂O₃ 10.0%,

SiO₂ 60%。

7. 根据权利要求3所述的自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料,其特征在於,所述镧钡铝硅酸盐玻璃由La₂O₃、BaCO₃、Al₂O₃和SiO₂原料在1560~1580℃高温下熔融得到。

8. 根据权利要求1所述的自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料,其特征在於,复合材料中的晶相组成为 β -氮化硅、二硅酸镧、氮化铝和六方钡长石。

9. 制备权利要求1~8任一项所述自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料的方法,其特征在於包括下述步骤:

步骤一

按设计组分配取La₂O₃、BaCO₃、Al₂O₃、SiO₂作为镧钡铝硅酸盐玻璃的原料,将配取的镧钡铝硅酸盐玻璃原料混合均匀后加热到1560~1580℃熔融2~3小时,水淬,得到玻璃碎渣,所得玻璃碎渣进一步粉碎,得到镧钡铝硅酸盐玻璃粉末;

步骤二

按设计组分配取氮化铝粉末和 α -氮化硅粉;将步骤一所得镧钡铝硅酸盐玻璃粉末与配取的氮化铝粉末和 α -氮化硅粉混合均匀后过400目筛,取筛下物混合均匀,装模,室温压制成型,得到坯体;所得坯体先干燥,再置于具有保护气氛的烧结炉中,升温到1610~1630℃,保温2~3小时,然后降温到1250~1270℃,保温3~5小时后随炉冷却,得到所述自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料。

10. 根据权利要求9所述的一种自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料的制备方法,其特征在於:

所述压制压力为30~50MPa;

所述保护气氛选自氮气、氩气气氛中的一种。

一种自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料及其制备方法

技术领域

[0001] 本发明涉及一种自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料及其制备方法,属于陶瓷材料技术领域。

背景技术

[0002] 氮化铝陶瓷具备诸多的优异性能,例如良好的导热、非常高的绝缘性等,因此它的应用十分广泛,如绝缘基片、散热基片、栅极绝缘层、压力传感器、化学灵敏元件、表面声波器件、绝缘埋层、基板材料、氮化镓外延衬底材料、研磨材料、耐磨损和抗腐蚀零件等。氮化铝陶瓷虽然具有非常优异的综合性能,但是在氮化铝陶瓷生产过程中仍受到许多技术因素的制约。氮化铝由于其自身特性,烧结温度高达1900℃以上,且目前商用氮化铝陶瓷材料的热导率距离其理论热导率还有很大的差距。而且,氮化硅陶瓷的力学性能(如抗弯强度约为300MPa)仍不够理想。因此,在降低氮化铝陶瓷烧结温度的同时研制出更高综合性能的氮化铝陶瓷,具有重要意义。

[0003] 氮化硅陶瓷具有优异的高温力学性能、良好的抗高温氧化性、抗高温蠕变性能、较低的热膨胀系数、良好的抗热冲击和抗化学侵蚀性,是一类很有应用前景的陶瓷基高温结构材料。现在氮化硅陶瓷在许多场合已经可代替多种合金及不锈钢材料,氮化硅可制成各种坩埚、密封环套、活塞、传动轴、柱塞泵缸套、工业炉炉衬、耐腐蚀板、高温支架等制品,并在化工、冶金、石油、建材、机械、有色金属等领域得到了广泛的应用。但目前氮化硅陶瓷材料主要采用热压烧结、气压烧结、热等静压烧结等方法制备,烧结温度一般高达1900℃以上。一方面, Si≡N高共价键特性导致烧结纯氮化硅陶瓷极其困难,高的烧结温度对设备提出了高要求;另一方面,为了实现氮化硅陶瓷的致密化及促进 α -氮化硅向 β -氮化硅相的转变,往往需要采用气压或热压烧结,从而导致氮化硅陶瓷制品的价格较为昂贵。因此,研究开发综合性能优异、制备工艺简单、成本低廉的新型耐高温陶瓷基复合材料就显得极为必要与紧迫。

[0004] 随着科技的发展,人们对氮化铝陶瓷的性能提出了更高的要求,为了使氮化铝陶瓷的力学性能一步提高,加入第二相粒子作为增强相来提高增强增韧的效果是一种常用手段。在复相陶瓷体系中,加入适量的氮化硅晶须可以显著提高材料强度。颗粒、晶须、纤维或晶片都是很好的增强相材料。氮化硅和氮化铝是陶瓷中很有发展前景的两类材料,它们在各自的领域都有着深广的研究基础和广阔的应用,氮化硅/氮化铝增强复合陶瓷的研究,对改善和提高其各自的物理性能具有十分重要的意义。在微米级尺度范围的颗粒增强复合材料,晶须及纤维补强复合材料已取得了较大进展。

[0005] 此外,玻璃/陶瓷复合材料体系是通过添加低熔点玻璃来实现的降低高温陶瓷材料的烧结温度的。玻璃、陶瓷的含量多少决定了复合材料的力学性能、介电性能、热膨胀性能。玻璃/陶瓷复合材料体系在一般情况下属于无反应的液相烧结。因为玻璃配方比较容易调节,所制备的复合材料也比较能满足要求。自生长 β -氮化硅棒晶增强微晶玻璃复合材料

是近十年来发展起来的新型制备工艺,其本质是通过科学的成分设计,合理的工艺条件,选取合适的制备方法获得具有增强增韧效果的微晶玻璃复合材料显微结构,从而提高材料的力学性能,但是现有技术中的晶须、纤维、棒晶增强微晶玻璃复合材料存在纤维与基体之间相容性不好、界面缺陷及热性能不匹配等问题。现有技术中并没有自生长的 β -氮化硅增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料的方案及相关文献报道。

发明内容

[0006] 本发明提供了一种具有低密度、高强度、高断裂韧性、高介电常数、低膨胀系数、高热导率等特点的自增强增韧氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料。

[0007] 本发明一种自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料,其以镧钡铝硅酸盐玻璃粉末、氮化铝粉末以及 α -氮化硅粉末为原料,通过制坯和烧结制得;所述自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料含有 β -氮化硅棒晶。作为优选方案,所述自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料为 β -氮化硅棒晶自增强增韧氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料。

[0008] 作为优选方案,本发明一种自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料,所述原料中镧钡铝硅酸盐玻璃粉末、氮化铝粉末、 α -氮化硅粉末的质量百分比为:

[0009] 镧钡铝硅酸盐玻璃粉末占 27.0~33.0%,

[0010] 氮化铝粉末占 16.0~20.0%,

[0011] α -氮化硅占 47.0~57.0%。

[0012] 作为优选方案,本发明一种自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料,其特征在于,所述镧钡铝硅酸盐玻璃以质量百分比计,包括下述组分:

La_2O_3 22.0~28.0%,

BaO 8.0~12.0%,

[0013]

Al_2O_3 8.0~12.0%,

SiO_2 50.0~60.0%。

[0014] 作为进一步的优选方案,本发明一种自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料,原料中镧钡铝硅酸盐玻璃粉末、氮化铝粉末、 α -氮化硅粉末的质量百分比为:

[0015] 镧钡铝硅酸盐玻璃粉末 27.0~30.0%,

[0016] 氮化铝粉末 16.0~20.0%,

[0017] α -氮化硅 53.0~57.0%;

[0018] 所述镧钡铝硅酸盐玻璃粉以质量百分比计有下述组分组成:

La_2O_3 22.0~25.0%,

BaO 8.0~10.0%,

[0019]

Al_2O_3 9~11.0%,

SiO_2 55.0~60%。

[0020] 作为更进一步的优选方案之一,本发明一种自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料,原料中镧钡铝硅酸盐玻璃粉末、氮化铝粉末、 α -氮化硅粉末的质量百分比为:

[0021] 镧钡铝硅酸盐玻璃粉末 27.0%,

[0022] 氮化铝粉末 16.0%,

[0023] α -氮化硅 57.0%;

[0024] 所述镧钡铝硅酸盐玻璃粉以质量百分比计有下述组分组成:

La_2O_3 25.0%,

BaO 10.0%,

[0025]

Al_2O_3 10.0%,

SiO_2 55.0%。

[0026] 作为更进一步的优选方案之一,本发明一种自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料,原料中镧钡铝硅酸盐玻璃粉末、氮化铝粉末、 α -氮化硅粉末的质量百分比为:

[0027] 镧钡铝硅酸盐玻璃粉末 27.0%,

[0028] 氮化铝粉末 20.0%,

[0029] α -氮化硅 53.0%;

[0030] 所述镧钡铝硅酸盐玻璃粉以质量百分比计有下述组分组成:

La_2O_3 22.0%,

BaO 8.0%,

[0031]

Al_2O_3 10.0%,

SiO_2 60%。

[0032] 作为优选方案,本发明一种自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料,所述镧钡铝硅酸盐玻璃由 La_2O_3 、 BaCO_3 、 Al_2O_3 和 SiO_2 原料在1560~1580℃高温下熔融得到。

[0033] 作为优选方案,本发明一种自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料,复合材料中的晶相组成为 β -氮化硅、二硅酸镧、氮化铝和六方钡长石。

[0034] 一种自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料的制备方法,包括下述步骤:

[0035] 步骤一

[0036] 按设计组分配取 La_2O_3 、 BaCO_3 、 Al_2O_3 、 SiO_2 作为镧钡铝硅酸盐玻璃的原料,将配取的镧钡铝硅酸盐玻璃原料混合均匀后加热到1560~1580℃熔融2~3小时,水淬,得到玻璃碎渣,所得玻璃碎渣进一步粉碎,得到镧钡铝硅酸盐玻璃粉末;

[0037] 步骤二

[0038] 按设计组分配取氮化铝粉末和 α -氮化硅粉;将步骤一所得镧钡铝硅酸盐玻璃粉末与配取的氮化铝粉末和 α -氮化硅粉混合均匀后过400目筛,取筛下物混合均匀,装模,室温压制成型,得到坯体;所得坯体先干燥,再置于具有保护气氛的烧结炉中,升温到1610~

1630℃,保温2~3小时,然后降温到1250~1270℃,保温3~5小时后随炉冷却,得到所述自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料。

[0039] 本发明一种自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料的制备方法,步骤二中,所述压制压力为30~50MPa,所述保护气氛选自氮气气氛、氩气气氛中的一种。

[0040] 本发明的技术优势和带来的有益技术效果:

[0041] 经过发明人大量研究发现,采用含 La^{3+} 和 Ba^{2+} 离子的玻璃作为烧结助剂可有效降低 α -氮化硅向 β -氮化硅相变的温度,同时还可以促进长棒状 β -氮化硅的长大。本发明选取镧钡铝硅酸盐玻璃、氮化铝和 α -氮化硅混合粉末作为原料,在高温烧结过程中,镧钡铝硅酸盐玻璃形成液相,并游离出 La^{3+} 和 Ba^{2+} 离子,促进 α - Si_3N_4 在烧结过程中向长径比较大的棒晶状 β -氮化硅相的转变,以及氮化铝晶体的生长。烧结过程结束后玻璃经核化、晶化而形成微晶玻璃,最终获得性能优良、结构致密的自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料。 β -氮化硅长棒状晶体与氮化铝晶体以及二硅酸镧微晶玻璃有较好的化学相容性,能起到类似纤维增强的作用,还能克服外加纤维存在的纤维与基体间的组成相容差、界面缺陷及热性能不匹配等问题。

[0042] 通过本发明的制备方法获得的自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料,其晶相组成为 β -氮化硅、二硅酸镧、氮化铝和六方钡长石,其中,二硅酸镧晶相具有低的热膨胀系数,优良的抗热腐蚀性能和抗摩擦磨损性能;而 β -氮化硅具有良好的高温力学性能、高的热导率、优良的抗高温氧化性、抗高温蠕变性能、较低的热膨胀系数、良好的抗热冲击和抗化学侵蚀性。而氮化铝具有热导率高、力学性能较好、热稳定性好、耐腐蚀等等优点。自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料结合了 β -氮化硅、微晶玻璃和氮化铝三者的优点,且能够加工成复杂形状的工件,可使用在国防军工、电子器件、高热导率陶瓷基板以及高端陶瓷零部件等高科技领域。

[0043] 为了克服氮化铝陶瓷的强度和韧性不够理想的缺点,同时克服外加纤维增强物的缺点,本发明采用的增强增韧方法为,在氮化铝中加入玻璃粉末和 α -氮化硅,在本发明的工艺条件下烧结,使 α -氮化硅转变成 β -氮化硅相,在复合材料中原位生长出 β -氮化硅长棒状晶体, β -氮化硅长棒状晶体与氮化铝以及微晶玻璃有较好的化学相容性,且晶粒间相互交叉咬合,形成网状结构,因此能起到类似纤维增强的作用。同时利用 La^{3+} 和 Ba^{2+} 离子促进复合材料的烧结致密化,使材料中尽可能多地生成长棒晶状 β -氮化硅,提高三元复合材料的综合性能。

[0044] 综上本发明在技术上的优势,带来了突出的技术效果:本发明制备的自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料的晶相组成为 β -氮化硅、二硅酸镧、氮化铝和六方钡长石,其具有优良的力学性能和热性能,主要体现在:密度约为 $3.43\sim 3.56\text{g}/\text{cm}^3$,线热膨胀系数($25\sim 600^\circ\text{C}$)约为 $5.25\sim 5.61\times 10^{-6}/^\circ\text{C}$,抗弯强度约为 $358\sim 392\text{MPa}$,断裂韧性为 $2.96\sim 3.24\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$,热导率为 $18.82\sim 20.38\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$,介电常数约为 $6.2\sim 6.5$ 。该复合材料制备工艺简单,熔化温度和烧结温度较低,对环境友好,生产成本较低。制得的复合材料具有较好的应用前景,可部分替代现有的高温结构材料,使用在国防军工、电子器件、高热导率陶瓷基板以及高端陶瓷零部件等高科技领域。

附图说明

[0045] 图1为本发明实施例1制备的自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料的玻璃粉末的DSC曲线；

[0046] 图2为本发明实施例1制备的自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料的XRD图；

[0047] 图3为本发明实施例1所制备的自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料断面放大10000倍的二次电子SEM图片。

[0048] 图4为实施例1所制备自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料的抛光面的背散射SEM图。

具体实施方式

[0049] 下面结合实施例对本发明内容作进一步说明,但不应以此限制本发明的保护范围。

[0050] 本发明尝试了直接将 La_2O_3 、 BaCO_3 、 Al_2O_3 、 SiO_2 、氮化铝粉末和 α -氮化硅粉直接混合均匀并压制成型后烧结,但该尝试方案以失败告终。

[0051] 实施例1

[0052] 原料组分包括镧钡铝硅酸盐玻璃粉末、氮化铝以及 α -氮化硅粉末,其质量百分比为玻璃粉末含量27.0%,氮化铝粉末含量16.0%, α -氮化硅粉末含量57.0%。其镧钡铝硅酸盐玻璃中各氧化物成分的质量百分比: La_2O_3 为25.0%, BaO 为10.0%, Al_2O_3 为10.0%, SiO_2 为55.0%。

[0053] 实施例2

[0054] 原料组分包括镧钡铝硅酸盐玻璃粉末、氮化铝以及 α -氮化硅粉末,其质量百分比为玻璃粉末含量27.0%,氮化铝粉末含量20.0%, α -氮化硅粉末含量53.0%。其镧钡铝硅酸盐玻璃中各氧化物成分的质量百分比: La_2O_3 为22.0%, BaO 为8.0%, Al_2O_3 为10.0%, SiO_2 为60.0%。

[0055] 实施例3

[0056] 原料组分包括镧钡铝硅酸盐玻璃粉末、氮化铝以及 α -氮化硅粉末,其质量百分比为玻璃粉末含量30.0%,氮化铝粉末含量18.0%, α -氮化硅粉末含量52.0%。其镧钡铝硅酸盐玻璃中各氧化物成分的质量百分比: La_2O_3 为28.0%, BaO 为12.0%, Al_2O_3 为10.0%, SiO_2 为50.0%。

[0057] 实施例4

[0058] 原料组分包括镧钡铝硅酸盐玻璃粉末、氮化铝以及 α -氮化硅粉末,其质量百分比为玻璃粉末含量33.0%,氮化铝粉末含量16.0%, α -氮化硅粉末含量51.0%。其镧钡铝硅酸盐玻璃中各氧化物成分的质量百分比: La_2O_3 为25.0%, BaO 为10.0%, Al_2O_3 为8.0%, SiO_2 为57.0%。

[0059] 实施例5

[0060] 原料组分包括镧钡铝硅酸盐玻璃粉末、氮化铝以及 α -氮化硅粉末,其质量百分比为玻璃粉末含量33.0%,氮化铝粉末含量20.0%, α -氮化硅粉末含量47.0%。其镧钡铝硅酸

盐玻璃中各氧化物成分的质量百分比： La_2O_3 为25.0%， BaO 为10.0%， Al_2O_3 为12.0%， SiO_2 为53.0%。

[0061] 实施例1、2、3、4和5的化学组成不同，但玻璃、配合料及复合材料的制备工艺相近，具体过程为：

[0062] 第一步：基础玻璃制备

[0063] 按设计的基础玻璃组分配比换算成原料质量百分比取各组分混合；原料分别以 La_2O_3 、 BaCO_3 、 Al_2O_3 和 SiO_2 的形式加入；在硅钼棒电阻炉中加热至熔化温度 1580°C ，保温2~3小时左右，水淬制备出玻璃碎渣；再将玻璃碎渣用高能球磨机球磨10小时后过200目筛，得到所述玻璃粉末。

[0064] 第二步：配合料的制备：

[0065] 将上述基础玻璃粉末、氮化铝粉末以及 α -氮化硅粉末按照一定比例装入球磨罐中进行高能球磨，球磨24小时后过400目筛，即制成非晶态粉末配合料。

[0066] 第三步：复合材料的制备

[0067] 将球磨后的非晶态粉末配合料通过不锈钢模具缓慢加压至预定压力，制成坯体。坯体干燥后，置于真空烧结炉中以 $5^\circ\text{C}/\text{分钟}$ 的升温速率加热到 $1610\sim 1630^\circ\text{C}$ 下进行无压烧结，保温2~3小时左右，然后降温到 $1250\sim 1270^\circ\text{C}$ ，保温4~5小时左右，烧结过程结束后随炉冷却至室温，即制得自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料。在所述复合材料的制备过程中，烧结开始前，对炉膛进行抽真空处理，抽到真空状态随即通满氮气，再抽真空，反复3次。在烧结过程中，用作保护气氛的氮气压力约为 0.18MPa 。

[0068] 本发明实施例1~5制备的自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料的性能指标如表1所示。

[0069] 表1实施例1~5制备的自增强增韧的氮化硅/氮化铝/镧钡铝硅酸盐微晶玻璃三元复合材料的性能指标

[0070]

性能	实施例 1	实施例 2	实施例 3	实施例 4	实施例 5
密度 (g/cm ³)	3.56	3.54	3.53	3.43	3.45
抗弯强度 (MPa)	392	384	376	367	358
断裂韧性 (MPa·m ^{1/2})	3.21	3.24	3.12	3.09	2.96
热导率 (W/(m·K))	18.82	19.23	19.45	20.31	20.38
介电常数	6.5	6.2	6.4	6.2	6.3
25-600°C热膨 胀系数 (10 ⁻⁶ /°C)	5.25	5.35	5.47	5.52	5.61

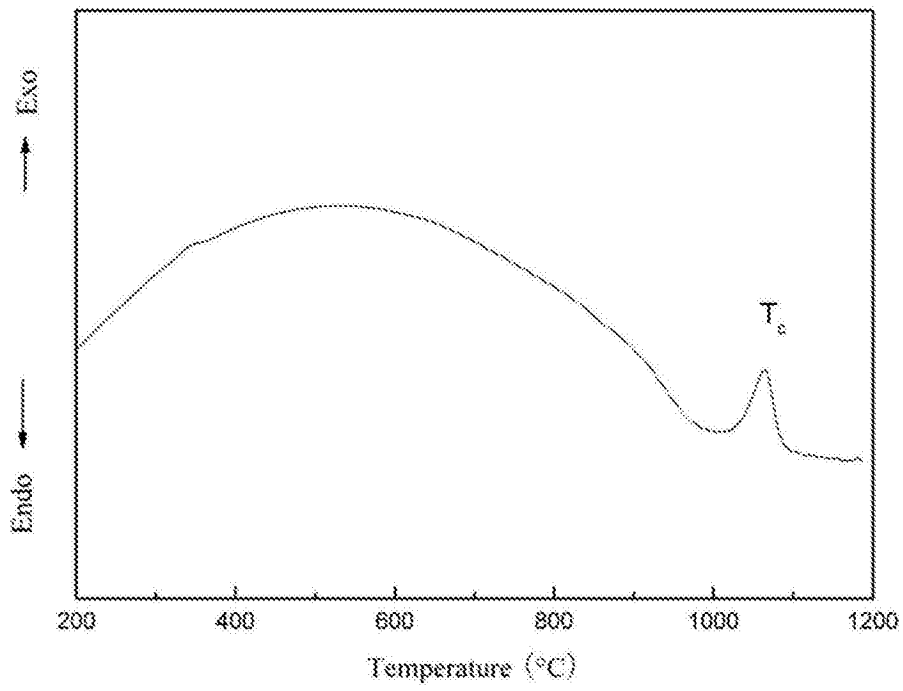


图1

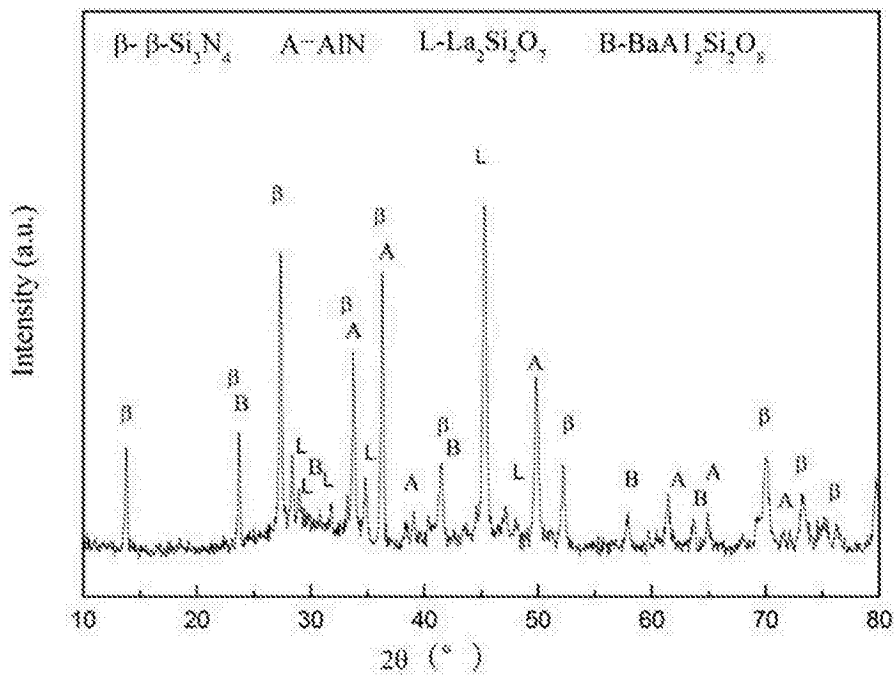


图2

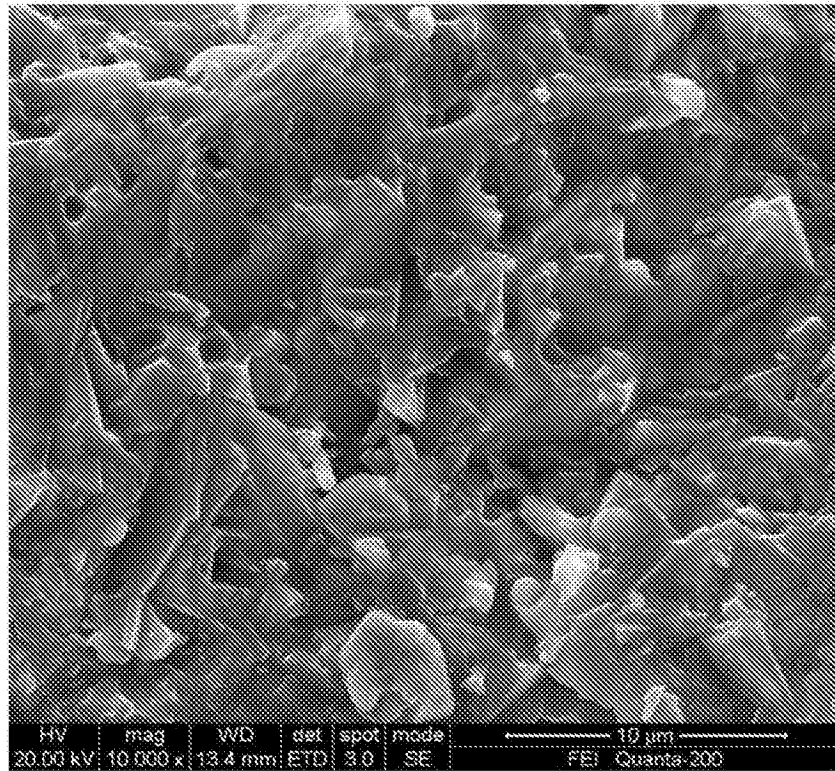


图3

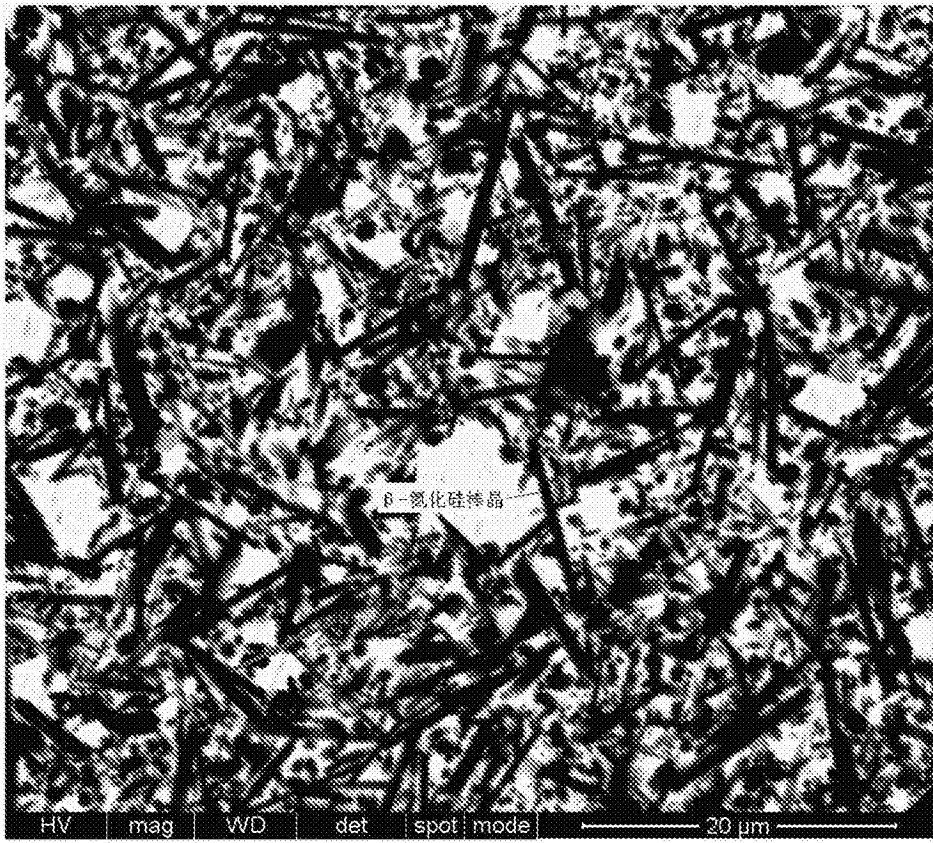


图4