



รายงานวิจัยฉบับสมบูรณ์

โครงการ: การพัฒนาเซรามิกคอมโพสิตอลูมินา/ซิลิกอนคาร์ไบด์
ที่เผาผืนึกในอากาศ: ความท้าทายในกระบวนการผลิต
เซรามิกโครงสร้าง

โดย อภิชาติ ลิ้มปิชัยพานิช

พฤษภาคม 2558

สัญญาเลขที่ MRG5680060

รายงานวิจัยฉบับสมบูรณ์

โครงการ: การพัฒนาเซรามิกคอมโพสิตอลูมินา/ซิลิกอนคาร์ไบด์
ที่เผาผลาญในอากาศ: ความท้าทายในกระบวนการผลิต
เซรามิกโครงสร้าง

ผู้วิจัย

สังกัด

อภิชิต ลิ้มพิชัยพานิช คณะวิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยเชียงใหม่

สนับสนุนโดยสำนักงานกองทุนสนับสนุนการวิจัย สำนักงาน
คณะกรรมการการอุดมศึกษา และมหาวิทยาลัยเชียงใหม่

(ความเห็นในรายงานนี้เป็นของผู้วิจัย สกว. และ สกอ.
ไม่จำเป็นต้องเห็นด้วยเสมอไป)

Abstract

Project Code : MRG5680060

Project Title : Development of $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiC}$ Ceramic Composites Sintering in Air:
A Challenge to Structural Ceramic Processing

Investigator : Apichart Limpichaipanit, Department of Physics and Materials Science,
Faculty of Science, Chiang Mai University

E-mail Address : apichart.l@cmu.ac.th

Project Period : 2 years

There has been an interest to fabricate ceramic composites containing non-oxide phase(s) by powder processing and subsequent atmospheric sintering (sintering in air). In this work, the powder mixtures of alumina (Al_2O_3) and silicon carbide (SiC) were used to fabricate ceramic composites. The sintering temperatures were between 1400 and 1550°C and the dwell time was kept constant at 30 mins. Physical properties (density and grain size) and mechanical properties (hardness and fracture toughness) were investigated. The results showed that Al_2O_3 /mullite composites with the grain size of 0.6-6.0 μm could be obtained. It was due to the complete oxidation reaction of SiC to form silica (SiO_2), which further reacted with Al_2O_3 to form mullite ($3\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$). X-ray diffraction (XRD) patterns revealed that there was no SiC particles in the composite structure. Fracture surfaces of the composites exhibited transgranular fracture in the greater degree compared to almost intergranular fracture in pure alumina. The hardness of the composites was higher than alumina but the fracture toughness was not significantly different. Although the fabrication of $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiC}$ composites has not been successful in this work, the resulting Al_2O_3 /mullite composites show promising mechanical properties which could be enhanced by sintering at the optimal condition. The Al_2O_3 /mullite composite sintered at 1550°C had the highest density and fracture toughness with reasonably high hardness.

Keywords : Ceramics; Composite; Fracture; Mechanical properties

บทคัดย่อ

รหัสโครงการ : MRG5680060

ชื่อโครงการ : การพัฒนาเซรามิกคอมโพสิตอลูมินา/ซิลิกอนคาร์ไบด์ที่เผาผนึกในอากาศ: ความท้าทายในกระบวนการผลิตเซรามิกโครงสร้าง

ชื่อนักวิจัย : อภิชาติ ลิ้มปชัยพานิช ภาควิชาฟิสิกส์และวัสดุศาสตร์ คณะวิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยเชียงใหม่

E-mail Address : apichart.l@cmu.ac.th

ระยะเวลาโครงการ : 2 ปี

ในปัจจุบันมีงานวิจัยที่สนใจในการประดิษฐ์เซรามิกคอมโพสิตที่ประกอบด้วยเฟสที่ไม่ใช่ออกไซด์โดยกระบวนการผลิตผงและตามด้วยการเผาผนึกในสภาวะบรรยากาศ (การเผาผนึกในอากาศ) ในงานวิจัยชิ้นนี้ ส่วนผสมของผงอลูมินาและซิลิกอนคาร์ไบด์ถูกนำมาใช้เพื่อประดิษฐ์เซรามิกคอมโพสิต อุณหภูมิที่ใช้ในการเผาผนึกอยู่ระหว่าง 1400-1550 องศาเซลเซียส และเวลาที่ใช้ในการเผาผนึกอยู่ที่ 30 นาที โดยมีการศึกษาสมบัติทางกายภาพ (ความหนาแน่นและขนาดเกรน) และสมบัติเชิงกล (ความแข็งแรงและความทนทานต่อการแตกหัก) ผลการทดลองแสดงให้เห็นว่าการเผาผนึกด้วยวิธีดังกล่าวทำให้ได้คอมโพสิตอลูมินา/มัลไลต์ที่มีขนาดเกรนอยู่ในช่วง 0.6-6.0 ไมโครเมตร ซึ่งมีผลมาจากปฏิกิริยาออกซิเดชันที่สมบูรณ์ของซิลิกอนคาร์ไบด์ทำให้เกิดซิลิกาและซิลิกาน้ำทำปฏิกิริยาต่อกับอลูมินาเป็นมัลไลต์ รูปแบบการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์แสดงให้เห็นว่าไม่มีอนุภาคของซิลิกอนคาร์ไบด์ในโครงสร้างคอมโพสิต พื้นผิวรอยแตกของคอมโพสิตมีลักษณะแตกผาเกรนเมื่อเปรียบเทียบกับอลูมินาบริสุทธิ์ที่มีลักษณะแตกตามเกรน ความแข็งแรงของคอมโพสิตสูงกว่าอลูมินาแต่ความทนทานต่อการแตกหักไม่แตกต่างอย่างมีนัยสำคัญ ถึงแม้ว่าการผลิตคอมโพสิตอลูมินา/ซิลิกอนคาร์ไบด์จะไม่ประสบความสำเร็จในงานวิจัยชิ้นนี้ แต่คอมโพสิตอลูมินา/มัลไลต์ที่ผลิตได้แสดงสมบัติเชิงกลที่น่าสนใจโดยสามารถทำให้พัฒนาได้โดยการเลือกเงื่อนไขในการเผาผนึกที่เหมาะสม คอมโพสิตอลูมินา/มัลไลต์ที่เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1550 องศาเซลเซียสมีความหนาแน่นและความทนทานต่อการแตกหักสูงสุดโดยมีความแข็งแรงที่สูงพอสมควร

คำหลัก : เซรามิกส์; คอมโพสิต; การแตกหัก; สมบัติเชิงกล

สรุปข้อเสนอโครงการ (Executive summary)

1. ความสำคัญและที่มาของปัญหา

อลูมินาเป็นเซรามิกโครงสร้าง (structural ceramics) หรือเซรามิกเชิงวิศวกรรม (engineering ceramics) ที่มีการนำไปประยุกต์ใช้อย่างแพร่หลายในด้านวัสดุต้านทานการสึกหรอ ฉนวนกันความร้อน และวัสดุป้องกันการกระแทก ข้อดีของอลูมินาคือ ความแข็งแรงสูง จุดหลอมเหลวสูง ความสามารถในการต้านทานการกัดกร่อนทางเคมีและการสึกหรอเชิงกล ข้อเสียที่สำคัญเพียงอย่างเดียวคือ ความต้านทานการสึกหรอที่ต่ำ ดังนั้น การปรับปรุงสมบัติโดยการทำให้เป็นวัสดุผสมหรือคอมโพสิต (composites) เพื่อควบคุมโครงสร้างจุลภาคและทำให้สมบัติเชิงกลดีขึ้น

การปรับปรุงพัฒนาคุณสมบัติของอลูมินาโดยหลักเป็นการพัฒนาคุณสมบัติเชิงกล ซึ่งโดยทั่วไปแล้วมักนิยมเติมสารเสริมแรง (reinforcement) ทำให้อลูมินาอยู่ในรูปของเซรามิกเมทริกซ์คอมโพสิต (ceramic matrix composites—CMCs) คือ วัสดุผสมที่มีเซรามิกเป็นองค์ประกอบหลักหรือเป็นเมทริกซ์ โดยมีสารเสริมแรงเป็นองค์ประกอบรองซึ่งอาจอยู่ในรูปของอนุภาค (particulates) เส้นใย (whiskers) หรือเส้นใยต่อเนื่อง (fibers) วัสดุผสมที่มีอลูมินาเป็นองค์ประกอบหลักมีคุณสมบัติเชิงกลที่ดีกว่าอลูมินาบริสุทธิ์ (monolith) คือ มีความทนทานต่อการสึกหรอสูงขึ้น มีความแข็งแรงและความทนทานต่อการแตกหักสูงขึ้น

งานวิจัยที่สร้างความตื่นตัวในด้านวัสดุผสมเซรามิกเริ่มขึ้นในปี ค.ศ. 1989 (พ.ศ. 2532) เมื่อ Niihara และคณะรายงานว่า การเติมซิลิกอนคาร์ไบด์ขนาดอนุภาค 200 nm ลงในอลูมินาเพียง 5% โดยปริมาตร (5 vol% SiC) สามารถเพิ่มความแข็งแรงของอลูมินาได้ถึง 3 เท่า แนวคิดเกี่ยวกับเซรามิกคอมโพสิตได้มีการพัฒนาเรื่อยมาตั้งแต่นั้น ต่อมา Niihara ได้ผลิตวัสดุผสมเซรามิกอื่น ๆ ขึ้นอีกหลายระบบเพื่อศึกษาคุณสมบัติเชิงกลของสารผสมนั้น คือ $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Si}_3\text{N}_4$ $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{SiC}$ MgO/SiC และ $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiC}$ โดยที่วัสดุผสมระบบสุดท้ายได้รับความสนใจและมีการศึกษาในช่วงเวลานั้นอย่างกว้างขวาง อย่างไรก็ตามกลไกการพัฒนาคุณสมบัติเชิงกลของวัสดุผสมยังเป็นประเด็นที่ถกเถียงกันในปัจจุบันเนื่องจากผลการทดลองหลังจาก Niihara ของคณะวิจัยต่าง ๆ ไม่สามารถผลิตคอมโพสิตที่สามารถเพิ่มความแข็งแรงได้มากถึง 3 เท่า

ขั้นตอนการผลิตเซรามิกโดยทั่วไปมักเริ่มจากการผลิตผงเซรามิก จากนั้นจะนำผงเซรามิกที่ได้ไป ขึ้นรูป และเผาผนึกโดยการให้ความร้อนจนกระทั่งได้ชิ้นงานเซรามิก จากนั้นจะมีการบดผงเพื่อปรับปรุงชิ้นงานจนกระทั่งได้ชิ้นงานสุดท้าย การผลิตผงเซรามิกสามารถทำได้หลายวิธีโดยวิธีที่ง่ายและสะดวกที่สุด คือ การผสมแบบบดเชิงกล (mechanical milling) ซึ่งการผสมดังกล่าวจะใช้ของเหลวที่เป็นสารอินทรีย์หรือน้ำเพื่อช่วยในการกระจายตัว โดยอาจใช้สารช่วยกระจายตัว เมื่อผ่านกระบวนการบดจะได้ของเหลวที่มีส่วนผสมของเซรามิกที่มีการกระจายตัวสม่ำเสมอ (slurry) จากนั้นจะทำให้แห้งเพื่อให้ได้ผงเซรามิกสำหรับขั้นตอนการผลิตต่อไป การผลิตผงเซรามิกโดยกระบวนการทางเคมีโดยกระบวนการโซล-เจลสามารถทำได้โดย

ใช้สารตั้งต้นที่มีอลูมิเนียมออกไซด์เป็นองค์ประกอบผสมกับผงซิลิกอนคาร์ไบด์ หรือใช้สารตั้งต้นเป็นสารอินทรีย์ที่มีอลูมิเนียมและซิลิกอนคาร์ไบด์เป็นองค์ประกอบ

การขึ้นรูปเซรามิกมักใช้ความดันเพื่ออัดผงเซรามิกให้เป็นรูปร่างที่ต้องการ (green compact) ก่อนที่จะนำไปเผาผนึก การเผาผนึกจำเป็นต้องใช้อุณหภูมิและความดันสูง ซึ่งวิธีที่เหมาะสมที่สุด คือ การเผาผนึกโดยใช้ความดัน (hot pressing) ที่บรรยากาศเฉื่อย (ใช้ก๊าซอาร์กอน) หรือก๊าซไนโตรเจน การเผาผนึกสามารถทำได้โดยไม่ใช้ความดันเช่นกัน โดยชิ้นงานต้องผ่านกระบวนการขึ้นรูปด้วยการอัดแบบ Cold Isostatic Pressing (CIP) ที่ความดันสูงเพื่อให้ชิ้นงานมีความหนาแน่นสูงก่อนการเผาผนึก วิธีการเผาผนึกที่ได้รับความนิยมอีกรูปแบบหนึ่งคือ กระบวนการสปาร์คพลาสมา (spark plasma) เป็นกระบวนการที่ใช้อุณหภูมิสูงในช่วงเวลาอันสั้นเพื่อเผาผนึกเซรามิก อย่างไรก็ตามวิธีที่ทำให้ชิ้นงานมีความแน่นตัวสูงสุดและมีโครงสร้างจุลภาคที่ดีที่สุดคือ การเผาผนึกโดยใช้ความดัน

งานวิจัยนี้จะเน้นการศึกษากระบวนการผลิตและการจำแนกคุณสมบัติของเซรามิกคอมโพสิตที่มีอลูมินาเป็นองค์ประกอบหลัก การผลิตเซรามิกเป็นแบบดั้งเดิมโดยการผสมแบบบดเชิงกลและเผาผนึกโดยไม่ใช้ความดันที่เงื่อนไขการเผาต่างกัน (เพื่อลดต้นทุนและเวลาที่ใช้) งานวิจัยนี้มีจุดมุ่งหมายคือ ความสามารถในการผลิตเซรามิกคอมโพสิตที่มีอลูมินาเป็นองค์ประกอบหลักให้มีสมบัติเชิงกลตามต้องการ โดยการควบคุมการผลิตเพื่อให้ได้โครงสร้างจุลภาคตามต้องการ โดยให้ต้นทุนการผลิตต่ำและสร้างองค์ความรู้ที่เกี่ยวข้องกับการผลิตเซรามิกคอมโพสิต

2. วัตถุประสงค์

2.1 เพื่อพัฒนากระบวนการผลิตเซรามิกคอมโพสิตที่มีอลูมินาเป็นองค์ประกอบหลักด้วยวิธีใหม่เพื่อลดต้นทุนการผลิต

2.2 เพื่อศึกษาความสัมพันธ์ระหว่างกระบวนการผลิต โครงสร้างจุลภาค และสมบัติเชิงกลของเซรามิกคอมโพสิตที่มีอลูมินาเป็นองค์ประกอบหลัก

3. ระเบียบวิธีวิจัย

งานวิจัยเริ่มจากการผลิตผงเซรามิกอลูมินา อลูมินา/ซิลิกอนคาร์ไบด์ที่ประกอบด้วยซิลิกอนคาร์ไบด์ร้อยละ 5 และ 10 โดยปริมาตร และอลูมินา/ซิลิกา โดยการบดผสมแบบเชิงกลในเอทานอลและใช้เม็ดบอลเซอรโคเนียเป็นตัวบดย่อย จากนั้นทดลองเผาผนึกในบรรยากาศที่เงื่อนไขต่างกัน (อุณหภูมิและเวลาที่ใช้ในการเผาผนึก) เพื่อหาเงื่อนไขที่เหมาะสมในการผลิตชิ้นงานเซรามิก อุณหภูมิที่ใช้อยู่ในช่วง 1400-1550 องศาเซลเซียส และเวลาเผาผนึก 30 นาที เพื่อป้องกันปฏิกิริยาออกซิเดชันที่เกิดขึ้นกับซิลิกอนคาร์ไบด์ การเผาผนึกโดยไม่ใช้ก๊าซเฉื่อยเป็นการลดต้นทุนการผลิตและไม่ทำให้อลูมินา/ซิลิกอนคาร์ไบด์เซรามิกคอมโพสิตเสียสมบัติเชิงกลที่ดี จากนั้นนำเม็ดเซรามิกมาจำแนกสมบัติเชิงกายภาพ สมบัติเชิงเคมีและสมบัติเชิงกลสมบัติเชิงกายภาพที่สนใจศึกษาคือ ความหนาแน่นของชิ้นงาน (หาได้จากวิธีอาร์คิมิดีส) และ

ขนาดเกรน (จากการส่องกล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องกราด) สมบัติเชิงเคมีที่สนใจศึกษา คือ เฟสของเซรามิก (จากเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์) สมบัติเชิงกลที่สนใจศึกษาคือ ความแข็ง (จากการวัดด้วยเครื่องวัดความแข็งแบบวิกเกอร์ส) และความต้านทานการสึกหรอแบบขัดถู (abrasive wear) โดยใช้กล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องกราดศึกษาลักษณะพื้นผิวแตกหัก (fracture surface)

งานวิจัยจะแบ่งออกเป็น 2 ส่วน โดยส่วนแรกเกี่ยวข้องกับการศึกษากระบวนการผลิตและการจำแนกสมบัติของอลูมินาและอลูมินา/ซิลิกอนคาร์ไบด์เซรามิกคอมโพสิต โดยที่ซิลิกอนคาร์ไบด์เป็นอนุภาคเสริมแรงในเรซินไมโครเมตร การทำให้แน่นตัวโดยการเผาผนึกในบรรยากาศเป็นขั้นตอนที่ไม่ซับซ้อนในการดำเนินการ ส่วนที่สองเกี่ยวข้องกับการศึกษากระบวนการผลิตและการจำแนกสมบัติของอลูมินาและอลูมินา/ซิลิกอนคาร์ไบด์เซรามิกคอมโพสิต โดยที่ซิลิกอนคาร์ไบด์เป็นอนุภาคเสริมแรงในเรซินนาโนเมตร การหาเงื่อนไขการเผาผนึกที่เหมาะสมเป็นสิ่งสำคัญเนื่องจากอนุภาคซิลิกอนคาร์ไบด์จะต้องคงอยู่ในชิ้นงานเซรามิก นอกจากนี้จะมีการผลิตและจำแนกสมบัติของอลูมินา/ซิลิกาเซรามิกคอมโพสิตเพื่อเปรียบเทียบกับอลูมินาและอลูมินา/ซิลิกอนคาร์ไบด์เซรามิกคอมโพสิต โดยใช้ประกอบการพิจารณาว่าซิลิกอนคาร์ไบด์ถูกออกซิไดส์ระหว่างขั้นตอนการเผาผนึกหรือไม่ หากสมบัติทั้งเชิงกายภาพเชิงเคมี และเชิงกลของอลูมินา/ซิลิกาเซรามิกคอมโพสิตและอลูมินา/ซิลิกอนคาร์ไบด์เซรามิกคอมโพสิตไม่ต่างกันแสดงว่าซิลิกอนคาร์ไบด์ผ่านกระบวนการออกซิเดชันระหว่างการเผาผนึกในบรรยากาศ การศึกษาพื้นผิวแตกหักจากกล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องกราดสามารถนำมาใช้ค้นหาอนุภาคซิลิกอนคาร์ไบด์ได้

ในขั้นตอนสุดท้ายของงานวิจัยจะมีการศึกษาความสัมพันธ์ระหว่างกระบวนการผลิต โครงสร้างจุลภาค และสมบัติเชิงกลเพื่อสรุปเงื่อนไขการเผาผนึกที่ดีที่สุดในการผลิตเซรามิกที่มีอลูมินาเป็นองค์ประกอบหลัก โดยมีการเปรียบเทียบสมบัติเชิงกลและโครงสร้างจุลภาค การศึกษาดังกล่าวจะทำให้เกิดประโยชน์และการพัฒนากระบวนการผลิตเซรามิกคอมโพสิตที่มีอลูมินาเป็นองค์ประกอบหลักต่อไปในอนาคต

4. ผลการดำเนินงานของโครงการ (ดูตารางประกอบ)

4.1 ช่วง 6 เดือนแรกได้ทำการทดลองผลิตผงเซรามิกอลูมินาและอลูมินา/ซิลิกอนคาร์ไบด์ เผาผนึกผงเซรามิกดังกล่าว (หาเงื่อนไขที่เหมาะสม) และจำแนกสมบัติทางกายภาพเบื้องต้น (1-3)

4.2 ช่วง 6 เดือนที่สองได้ทำการจำแนกสมบัติทางกายภาพของเซรามิกต่อ และดำเนินการจำแนกสมบัติเชิงกลของเซรามิกให้เสร็จสิ้น (3-4)

4.3 ช่วง 6 เดือนที่สามได้ทำการผลิตผงเซรามิกอลูมินาและอลูมินา/ซิลิกอนคาร์ไบด์ที่มีอนุภาคเสริมแรงในเรซินนาโนเมตร เผาผนึกผงเซรามิกดังกล่าว (หาเงื่อนไขที่เหมาะสม) และจำแนกสมบัติทางกายภาพเบื้องต้น (5-6)

4.4 ช่วง 6 เดือนสุดท้ายได้ทำการจำแนกสมบัติทางกายภาพของเซรามิกต่อ และ
ดำเนินการจำแนกสมบัติเชิงกลของเซรามิกให้เสร็จสิ้น (7-8)

คำอธิบาย	ปีที่ 1 ไตรมาสที่				ปีที่ 2 ไตรมาสที่			
	1	2	3	4	1	2	3	4
1. การผลิตผง $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiC}$								
2. การเผาผนึก $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiC}$								
3. การจำแนกสมบัติทางกายภาพของ $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiC}$								
4. การจำแนกสมบัติเชิงกลของ $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiC}$								
5. การผลิตผงนาโน $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiC}$								
6. การเผาผนึกนาโน $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiC}$								
7. การจำแนกสมบัติทางกายภาพของนาโน $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiC}$								
8. การจำแนกสมบัติเชิงกลของนาโน $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiC}$								
9. รายงานความก้าวหน้าและรายงานฉบับสมบูรณ์								

5. ผลงานหัวข้อเรื่องที่คาดว่าจะตีพิมพ์ในวารสารวิชาการระดับนานาชาติ

5.1 ชื่อเรื่องที่คาดว่าจะตีพิมพ์ : Relationship between processing and mechanical properties of $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiC}$ composites

ชื่อวารสารที่คาดว่าจะตีพิมพ์ : Current Applied Physics

5.2 ชื่อเรื่องที่คาดว่าจะตีพิมพ์ : Mechanical properties of $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiC}$ composites prepared by pressureless sintering

ชื่อวารสารที่คาดว่าจะตีพิมพ์ : Current Applied Physics

หมายเหตุ: โครงการต้องมีผลงานการตีพิมพ์อย่างน้อย 1 เรื่อง

เนื้อหางานวิจัย

1. วัตถุประสงค์

- 1.1 เพื่อพัฒนากระบวนการผลิตเซรามิกคอมโพสิตที่มีอลูมินาเป็นองค์ประกอบหลักด้วยวิธีใหม่เพื่อลดต้นทุนการผลิต
- 1.2 เพื่อศึกษาความสัมพันธ์ระหว่างกระบวนการผลิต โครงสร้างจุลภาค และสมบัติเชิงกลของเซรามิกคอมโพสิตที่มีอลูมินาเป็นองค์ประกอบหลัก

2. วิธีการทดลอง

2.1 การผลิตผงเซรามิก

1) ชั่งผงเซรามิกโดยคำนวณปริมาณของผงเซรามิกแต่ละชนิดที่จะต้องใช้ จากนั้นเติมแมกนีเซียมออกไซด์ (MgO) ร้อยละ 0.25 โดยมวล เพื่อป้องกันการเติบโตของเกรนที่ผิดปกติ (Abnormal Grain Growth-AGG)

ผงเซรามิกที่ผลิตประกอบด้วย

- ผงอลูมินา ประกอบด้วยอลูมินา 50 กรัม
- ผงอลูมินาผสมกับซิลิกอนคาร์ไบด์ร้อยละ 4.1 โดยน้ำหนัก
- ผงอลูมินาผสมกับซิลิกอนไดออกไซด์ร้อยละ 5 โดยน้ำหนัก

ปริมาณของผงที่ใช้เพื่อผลิตผงเซรามิก 50 กรัม สรุปดังตาราง 1

(การคำนวณอ้างอิงจากความหนาแน่นของผงเซรามิกจากผู้ผลิตโดยความหนาแน่นของอลูมินา ซิลิกอนคาร์ไบด์ ซิลิกอนไดออกไซด์ และคาร์บอนเท่ากับ 3.96, 3.21, 2.2 และ 2.2 gcm⁻³ ตามลำดับ)

2) นำผงเซรามิกที่ชั่งได้ไปเทใส่ขวดพลาสติกที่จะใช้ทำการบดผสมด้วยเม็ดบอล (Ball mill) โดยใช้เม็ดบดเซอร์โคเนีย (ZrO₂) สำหรับบดปริมาณ 750 กรัม และเอทิลแอลกอฮอล์ ปริมาตร 350 มิลลิลิตร จากนั้นปิดฝาขวดให้แน่นแล้วนำไปบดโดยเปิดเครื่องบดแบบเม็ดบอลเป็นเวลา 2 ชั่วโมง

3) กรองเอาเฉพาะของเหลวจากการบดผสมลงในบีกเกอร์ขนาด 1000 มิลลิลิตรโดยมีตะแกรงกรองวางอยู่ข้างๆ บีกเกอร์เพื่อเป็นการแยกเม็ดบดเซอร์โคเนียออก จากนั้นนำของเหลวที่อยู่ในบีกเกอร์ ใช้อะลูมิเนียมฟอยล์ที่เจาะแล้วปิดปากบีกเกอร์ นำไปเข้าในเตาอบที่อุณหภูมิ 120 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 24 ชั่วโมงเพื่อไล่เอทิลแอลกอฮอล์ ทำให้ได้ผงเซรามิกคอมโพสิต

4) นำผงเซรามิกที่ได้จากการบดมาร้อนตะแกรงขนาด 150 ไมโครเมตร

ตาราง 1 องค์ประกอบทางเคมีของเซรามิกนาโนคอมโพสิต

ที่	องค์ประกอบทางเคมี	ปริมาณรวม	Al ₂ O ₃ (g)	SiC(g)	SiO ₂ (g)
1	Al ₂ O ₃	50กรัม	50	-	-
2	Al ₂ O ₃ + 4.1wt%SiC		48.06	1.94	-
3	Al ₂ O ₃ + 5wt%SiO ₂		50	-	2.5

2.2 การผลิตชิ้นงานเซรามิกโดยการเผาผืนึก

- นำผงเซรามิกที่ได้จากการร่อนมาอัดขึ้นรูปด้วยเครื่องอัดแกนเดียวด้วยความดันขนาด 100 เมกะปาสคาล ให้มีขนาดเส้นผ่านศูนย์กลาง 1 เซนติเมตร
- นำเม็ดเซรามิกที่ได้เข้าเตาเผาที่อุณหภูมิที่ 1400, 1450, 1500 และ 1550 องศาเซลเซียส เวลาที่ใช้ในการเผา 30 นาทีโดยมีอัตราการให้ความร้อนเท่ากับ 300 เซลเซียสต่อชั่วโมง และอัตราการเย็นตัวเท่ากับ 300 เซลเซียสต่อชั่วโมงเช่นเดียวกัน

2.3 การตรวจสอบสมบัติทางกายภาพและสมบัติเชิงกลของเซรามิก

2.3.1 การตรวจสอบเฟสที่เกิดขึ้นด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์ (XRD)

ในงานวิจัยนี้ใช้เทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์ (X-ray diffraction technique) ในการตรวจสอบองค์ประกอบทางเคมีและชนิดของเฟสที่เกิดขึ้น โดยอาศัยหลักการการตกกระทบของรังสีเอ็กซ์ลงบนพื้นผิวของวัสดุแล้วเกิดการกระเจิง (scattering) และการเลี้ยวเบนโดยมีมุมการเลี้ยวเบนแตกต่างกันออกไปขึ้นอยู่กับโครงสร้างและระนาบ (hkl) ที่รังสีตกกระทบภายในวัสดุ โดยรูปแบบการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์ของแต่ละชนิดจะมีความจำเพาะเจาะจงสำหรับวัสดุนั้นๆ ดังนั้นเมื่อนำเครื่องมือสำหรับตรวจวัด (detector) มารองรับรังสีเอ็กซ์ที่กระเจิงออกมาจากวัสดุในตำแหน่งต่างๆ ก็จะสามารถตรวจสอบได้ว่าวัสดุนั้นเป็นวัสดุประเภทใด โดยการพิจารณาจากความสัมพันธ์ค่ามุมของแบรกก์ (Bragg's angle) และความเข้มของรูปแบบการเลี้ยวเบนที่ปรากฏ

ขั้นตอนการตรวจสอบเฟสด้วยเทคนิค XRD

- นำชิ้นงานเซรามิกที่เตรียมได้มาขัดด้วยกระดาษทรายเบอร์ 1200 และบรรจุใส่แผ่นบรรจุสารตัวอย่าง (sample holder)
- นำชิ้นงานวางที่บริเวณช่องสำหรับวางชิ้นงานในเครื่อง X-ray diffractometer แล้วจึงเดินเครื่องทดสอบ โดยใช้เป้าทองแดง (CuK α) ที่มีค่าความยาวคลื่นประมาณ 1.54 Å โดยทำการวัดจากมุม 2 θ ระหว่าง 20° และ 80° ผลที่แสดงออกมาจะอยู่ในรูปของกราฟความสัมพันธ์ระหว่างค่าความเข้ม (intensity) กับค่ามุม 2 θ
- จากนั้นนำผลที่ได้มาเปรียบเทียบกับข้อมูลมาตรฐาน (JCPDS files หรือ ICDD files)

เพื่อตรวจสอบเฟสและความบริสุทธิ์ของชิ้นงานตัวอย่างที่เกิดขึ้นโดยนำค่ามุม 2θ ที่ได้มาหาค่า d-spacing จากกฎของแบรกก์ (Bragg's law) ตามสมการ

$$d = \frac{\lambda}{2 \sin \theta}$$

เมื่อ d คือ ระยะห่างระหว่างระนาบ (d-spacing)

λ คือ ความยาวคลื่นของรังสีเอกซ์ มีค่าเท่ากับ 1.54 อังสตรอม

2.3.2 การตรวจสอบสมบัติทางกายภาพ

2.3.2.1 การหาความหนาแน่น

นำชิ้นงานที่ผ่านการเผาไหม้มาหาความหนาแน่นโดยใช้หลักการแทนที่น้ำของอาร์คิมิดีส (Archimedes method) โดยมีหลักการว่า “วัตถุใดๆ ที่จมอยู่ในของไหลทั้งก้อนหรือจมอยู่เพียงบางส่วน จะถูกแรงลอยตัวกระทำและขนาดของแรงลอยตัวนั้นจะเท่ากับขนาดของน้ำหนักของของไหลที่ถูกวัตถุแทนที่” โดยการชั่งมวลของชิ้นงานในอากาศและในน้ำเพื่อคำนวณหาความหนาแน่นจากสมการ

$$\rho_c = \frac{W_1}{W_2 - W_3} \times \rho_{H_2O}$$

เมื่อ ρ_c และ ρ_{H_2O} คือ ความหนาแน่นของเซรามิกและน้ำตามลำดับ

W_1 คือ น้ำหนักของเซรามิกหลังการอบแห้ง

W_2 คือ น้ำหนักของเซรามิกที่ชั่งในน้ำ

W_3 คือ น้ำหนักของเซรามิกที่ชั่งในอากาศขณะเปียก

2.3.2.2 ขนาดเกรน

เตรียมชิ้นงานจากการขัดผิวด้วยกระดาษทรายน้ำ เบอร์ 400, 600, 800, 1000 และ 1200 ตามลำดับ เพื่อให้ผิวหน้าของชิ้นงานอยู่ในระนาบเดียวกัน และนำไปขัดให้เกิดเงา โดยใช้ผงขัดเพชรที่มีขนาดอนุภาค 3 ไมครอน ขัดชิ้นงานบนเครื่องขัดสาร เมื่อได้ชิ้นงานที่เงาจึงนำมาเผาที่อุณหภูมิต่ำกว่าอุณหภูมิเผาไหม้ 50 องศาเซลเซียสเพื่อให้เห็นขอบเกรนที่ชัดเจน การหาขนาดขอบเกรนใช้ภาพถ่ายจากกล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องกราด (Scanning Electron Microscope-SEM) และใช้วิธี linear interception method โดยผิวดังกล่าวจะต้องเคลือบทองด้วยวิธีสปัตเตอริงเพื่อให้ผิวดังกล่าวนำไฟฟ้า

2.3.3 การตรวจสอบสมบัติเชิงกล

2.3.3.1 ลักษณะรอยแตก

นำชิ้นงานมาหักเพื่อศึกษาลักษณะของผิวที่เกิดจากการแตกหัก(Fracture surface) และโครงสร้างจุลภาคของชิ้นงาน ด้วยกล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องกราด ผิวที่เกิดการแตกหักสามารถนำมาวัดขนาดเกรนของชิ้นงานแต่ละชิ้นได้ โดยผิวดังกล่าวจะต้องเคลือบทองด้วยวิธีสปัตเตอริงเพื่อให้ผิวดังกล่าวนำไฟฟ้า

2.3.3.2 การวัดความแข็งแบบวิกเกอร์ส

เตรียมชิ้นงานจากการขัดผิวด้วยกระดาษทรายน้ำ เบอร์ 400, 600, 800, 1000 และ 1200 ตามลำดับ เพื่อให้ผิวหน้าของชิ้นงานอยู่ในระนาบเดียวกัน และนำไปขัดให้เกิดเงา โดยใช้ผงขัดเพชรที่มีขนาดอนุภาค 3 ไมครอน ขัดชิ้นงานบนเครื่องขัดสาร เมื่อได้ชิ้นงานที่เงา จึงนำมาทดสอบหาค่าความแข็งแบบวิกเกอร์ส โดยใช้เครื่องวัดค่าความแข็งระดับจุลภาค ให้แรงกดขนาด 9.8 N กดแช่เป็นเวลา 10 วินาที รอยกดจะเป็นรูปสี่เหลี่ยมจัตุรัสจะได้ความยาวของเส้นทแยงมุมบนรอยกด กดไปที่เม็ดชิ้นงานเซรามิกแต่ละชิ้นจำนวน 5 จุด เพื่อลดความผิดพลาดที่จะเกิดขึ้นได้จากการกดหั่วกด (Indentor) ซึ่งทำให้ค่าที่วัดได้อาจคลาดเคลื่อนจากความเป็นจริง จากนั้นนำค่าที่ได้มาคำนวณค่าความแข็งแล้วหาค่าเฉลี่ยของความแข็งในแต่ละเงื่อนไข นำค่าที่ได้ไปคำนวณหาความแข็งแบบวิกเกอร์ส ได้ดังสมการ

$$HV = 1.854 \frac{P}{d^2}$$

เมื่อ	HV	คือ ความแข็งของเซรามิก (Pa)
	P	คือ น้ำหนักที่ให้ของหั่วกด (N)
	d	คือ ความยาวเฉลี่ยของเส้นทแยงมุมของรอยกด (m)

2.3.3.3 การวัดความทนทานต่อการแตกหัก

เมื่อนำชิ้นงานที่ทดสอบความแข็งแบบวิกเกอร์สมาถ่ายภาพด้วยกล้องจุลทรรศน์แสงแล้ว สามารถนำรูปถ่ายมาวิเคราะห์หาความยาวของรอยแตกที่เกิดจากรอยกดวิกเกอร์สเพื่อนำมาคำนวณความทนทานต่อการแตกหักดังสมการ

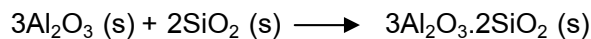
$$K_{Ic} = 0.016 \left(\frac{E}{H_V} \right)^{1/2} \frac{P}{c^{3/2}}$$

เมื่อ	E	คือ โมดูลัสของยังของเซรามิก
	HV	คือ ความแข็งของเซรามิก (Pa)
	P	คือ น้ำหนักที่ให้ของหั่วกด (N)
	d	คือ ความยาวเฉลี่ยของรอยแตก (m)

3. ผลการทดลองและอภิปรายผลการทดลอง

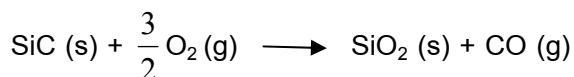
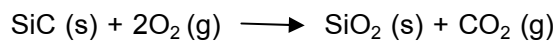
3.1 ผลการตรวจสอบเฟสที่เกิดขึ้นด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์ (XRD)

เมื่อพิจารณาผลของการเลี้ยวเบนด้วยรังสีเอ็กซ์ (XRD) ที่ผ่านการซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1550 °C เป็นเวลา 30 นาที (รูป 1) พบว่าชั้นงาน Al_2O_3 (A) เป็นอลูมินาบริสุทธิ์ที่มีโครงสร้างผลึกเป็นแบบเฮกซะโกนัล (Hexagonal) ชั้นงานที่เคลือบผิวพบมัลไลต์ ซึ่งเป็นสารประกอบระหว่างอลูมินาและซิลิกา ($3\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{SiO}_2$) มีโครงสร้างผลึกเป็นแบบออร์โธโรมบิก (Orthorhombic) แสดงว่า ซิลิกาที่เติมลงไปทำปฏิกิริยากับอลูมินาระหว่างการเผาซินเตอร์ แสดงดังสมการ



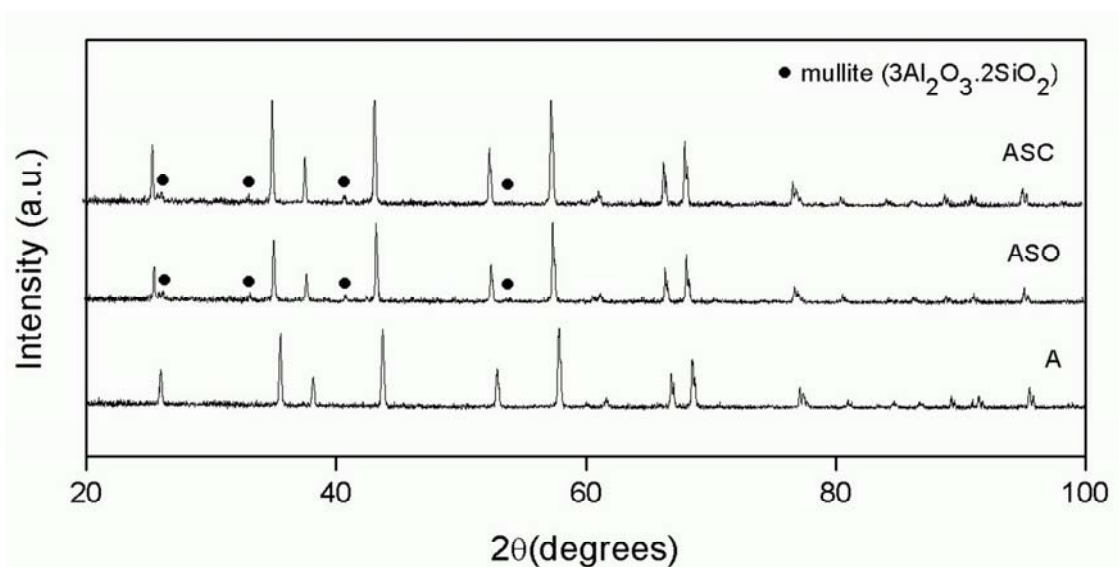
โดยปฏิกิริยาดังกล่าว สามารถเกิดขึ้นที่อุณหภูมิ 1550 °C ทั้งในสภาพบรรยากาศปกติ และบรรยากาศคาร์บอน

ซิลิกอนคาร์ไบด์ที่เติมลงไปเกิดปฏิกิริยาออกซิเดชัน ได้ผลิตภัณฑ์ คือ ซิลิกา แสดงดังสมการสองสมการข้างล่าง



ซึ่งซิลิกาที่ได้จากปฏิกิริยาจะไปทำปฏิกิริยากับอลูมินาได้ผลิตภัณฑ์ คือ มัลไลต์ ดังนั้นชั้นงานที่เติมซิลิกอนคาร์ไบด์ จึงตรวจพบแต่มัลไลต์ แต่ไม่พบซิลิกอนคาร์ไบด์หรือซิลิกา ในชั้นงาน ASC และในชั้นงานที่เติมซิลิกา (ASO) ตรวจพบอลูมินาและมัลไลต์

เมื่อสังเกตความสูงของพีคหลัก ($2\theta = 26.32$) พบว่าเกิดเฟสของมัลไลต์ในปริมาณน้อย เมื่อมีการเติมซิลิกาหรือซิลิกอนคาร์ไบด์เพียงอย่างเดียวลงในอลูมินา เมื่อมีการเติมทั้งซิลิกาหรือซิลิกอนคาร์ไบด์ลงในอลูมินาพบว่า เกิดเฟสของมัลไลต์ในปริมาณเพิ่มขึ้น เนื่องจากมีซิลิกา ซึ่งเป็นสารตั้งต้นจากทั้งซิลิกาที่เติมลงไปและซิลิกาจากปฏิกิริยาออกซิเดชันของซิลิกอนคาร์ไบด์ จึงทำให้เกิดมัลไลต์มากขึ้น [1]



รูป 1 รูปแบบการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์ของชั้นงานเซรามิก

3.2 สมบัติทางกายภาพของชิ้นงานเซรามิก

ตาราง 2 สรุปสมบัติทางกายภาพของชิ้นงานเซรามิก (ความหนาแน่นและขนาดเกรน) จากตารางจะเห็นได้ว่าความหนาแน่นและขนาดเกรนของเซรามิกมีแนวโน้มเพิ่มขึ้นเมื่ออุณหภูมิเผาผนึกสูงขึ้นเนื่องจากการเติบโตของเกรนอลูมินาซึ่งผลการทดลองดังกล่าวสอดคล้องกับงานวิจัยที่ผ่านมา [2-4] ความหนาแน่นของเซรามิกอยู่ระหว่าง 91.0 และ 99.4% และขนาดเกรนของเซรามิกอยู่ระหว่าง 0.6 และ 6.0 μm ในช่วงอุณหภูมิเผาผนึกตั้งแต่ 1400 ถึง 1550°C

จะเห็นได้ว่าเมื่อเผาผนึกที่อุณหภูมิสูงสุดต่าง ๆ ที่เวลาเท่ากันความหนาแน่นของชิ้นงาน ASC มีความหนาแน่นต่ำสุดเทียบกับเซรามิกอื่น โดยมีความหนาแน่นในช่วง 91.0 ถึง 92.5% การเติมซิลิกอนคาร์ไบด์ทำให้อลูมินามีความหนาแน่นต่ำลงเนื่องจากอนุภาคซิลิกอนคาร์ไบด์ทำหน้าที่ขัดขวางการเติบโตของเกรนอลูมินาขณะเผาผนึก ซึ่งจะส่งผลให้ความหนาแน่นและขนาดเกรนของเซรามิกหลังการเผาผนึกลดลงด้วย อย่างไรก็ตามในงานวิจัยชิ้นนี้ขนาดของอนุภาคซิลิกอนคาร์ไบด์ถือว่าใหญ่มาก ($\sim 3 \mu\text{m}$) ดังนั้น กลไกการขัดขวางการเติบโตของเกรนอลูมินาจึงเกิดขึ้นไม่มากนัก ซึ่งตรงกับผลการทดลองจากงานวิจัยของ Todd และ Limpichaipanit [3] ความแตกต่างระหว่างงานวิจัยที่อ้างอิงถึงทั้งหมดกับงานชิ้นนี้ คือ เงื่อนไขการเผาผนึก ซึ่งงานวิจัยนี้เผาผนึกเซรามิกที่สภาพบรรยากาศขณะทำงานวิจัยอื่นเผาผนึกเซรามิกในสภาพบรรยากาศเฉื่อย (อาร์กอน)

สำหรับชิ้นงาน ASO ความหนาแน่นของเซรามิกใกล้เคียงกับอลูมินาบริสุทธิ์โดยมีความหนาแน่นต่ำกว่าเล็กน้อยที่อุณหภูมิเผาผนึก 1400 และ 1450°C และสูงกว่าเล็กน้อยที่อุณหภูมิ 1550°C ที่อุณหภูมิ 1500°C ความหนาแน่นของชิ้นงาน ASO สูงกว่าอลูมินาบริสุทธิ์ค่อนข้างมากเนื่องจากอลูมินาบริสุทธิ์ไม่แน่นตัวจากการเผาเท่ากับชิ้นงาน ASO [5-6]

เมื่อพิจารณาจากตาราง 2 จะเห็นได้ว่าอลูมินาที่ไม่แน่นตัวมีขนาดเกรนน้อยกว่า 1 μm ซึ่งอลูมินาเหล่านี้อุณหภูมิเผาผนึกต่ำกว่า 1550°C (จะได้อภิปรายต่อไปเกี่ยวกับการเผาผนึกเซรามิก) สำหรับอลูมินาที่มีการแน่นตัวมีขนาดเกรน 2.9 μm เมื่อมีการเติมซิลิกอนคาร์ไบด์พบว่าไม่เกิดปัญหาเซรามิกไม่แน่นตัวที่อุณหภูมิเผาผนึกทั้งหมด ขนาดเกรนของเซรามิกมีขนาดใกล้เคียงกับอลูมินาบริสุทธิ์ที่อุณหภูมิเผาผนึก 1400 และ 1450°C ที่อุณหภูมิเผาผนึก 1550°C เซรามิก ASC55 มีขนาดเกรนใหญ่กว่าอลูมินาบริสุทธิ์เล็กน้อย และเซรามิกมีขนาดเกรนใหญ่กว่าอลูมินาบริสุทธิ์มากที่อุณหภูมิเผาผนึก 1500°C เมื่อเปรียบเทียบขนาดเกรนของอลูมินาและอลูมินาผสมกับซิลิกาที่อุณหภูมิเผาผนึก 1400 และ 1450°C พบว่าขนาดเกรนของอลูมินาและอลูมินาผสมกับซิลิกาใกล้เคียงกัน เมื่ออุณหภูมิเผาผนึกเพิ่มขึ้นเป็น 1500 และ 1550°C พบว่า ASO50 และ ASO55 มีขนาดเกรนใหญ่กว่ามาก เนื่องจากการเติมซิลิกาในปริมาณเพียงเล็กน้อยในอลูมินามีผลทำให้ขนาดของเกรนใหญ่ขึ้นเนื่องจากการเติบโตของเกรนที่ผิดปกติ (abnormal grain growth-AGG) เนื่องจากการเกิดเฟสของเหลว (liquid phase) ของสารประกอบอลูมินาและซิลิกาหรือมัลไลต์ระหว่างเผาผนึก [5-6]

ชิ้นงาน	ความหนาแน่น (%)	ขนาดเกรน (μm)
A55	98.7	2.9 ± 0.3
ASO55	99.4	6.0 ± 0.2
ASCm55	92.5	3.6 ± 0.4
ASCn55	92.0	1.5 ± 0.2
A50	97.4	1.1 ± 0.2
ASO50	98.1	3.9 ± 0.1
ASCm50	92.3	5.0 ± 0.1
A45	96.8	1.0 ± 0.1
ASO45	97.2	0.6 ± 0.1
ASCm45	91.0	1.3 ± 0.1
A40	95.0	0.7 ± 0.1
ASO40	96.2	0.6 ± 0.1
ASCm40	92.4	0.9 ± 0.2
ASCn40	91.0	0.7 ± 0.1

ตาราง 2 สมบัติทางกายภาพของชิ้นงานเซรามิก

หมายเหตุ เลขท้ายสองตัวแสดงถึงอุณหภูมิเผาผนึก 1xx0 (เช่น 55 = 1550 องศาเซลเซียส)

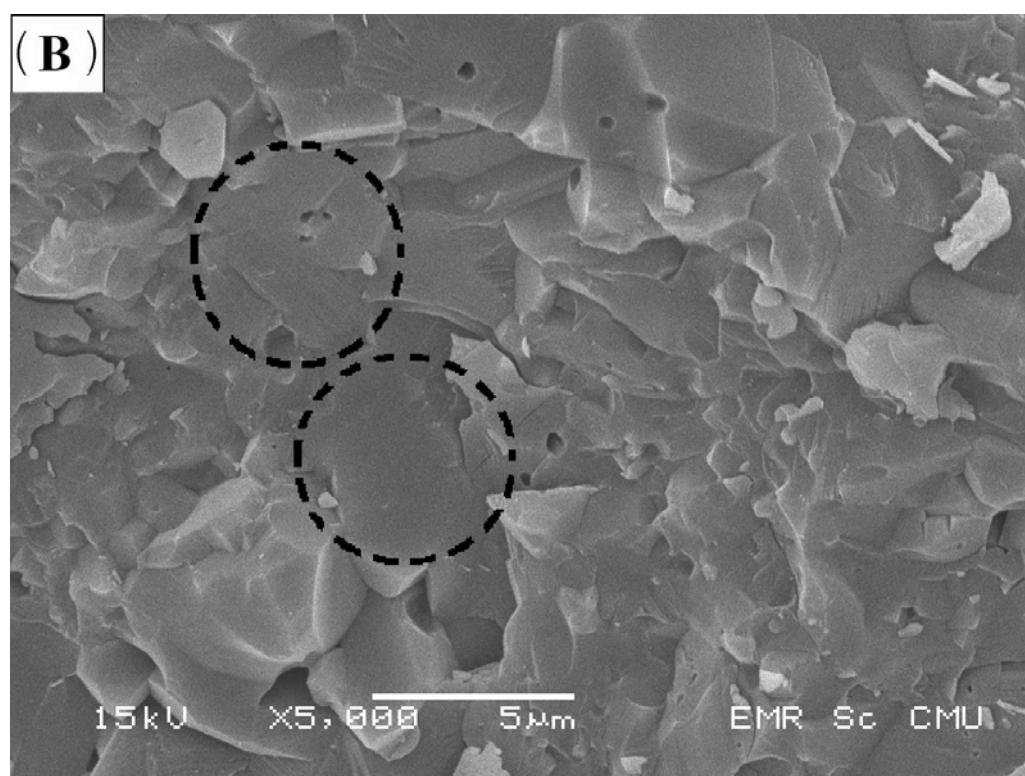
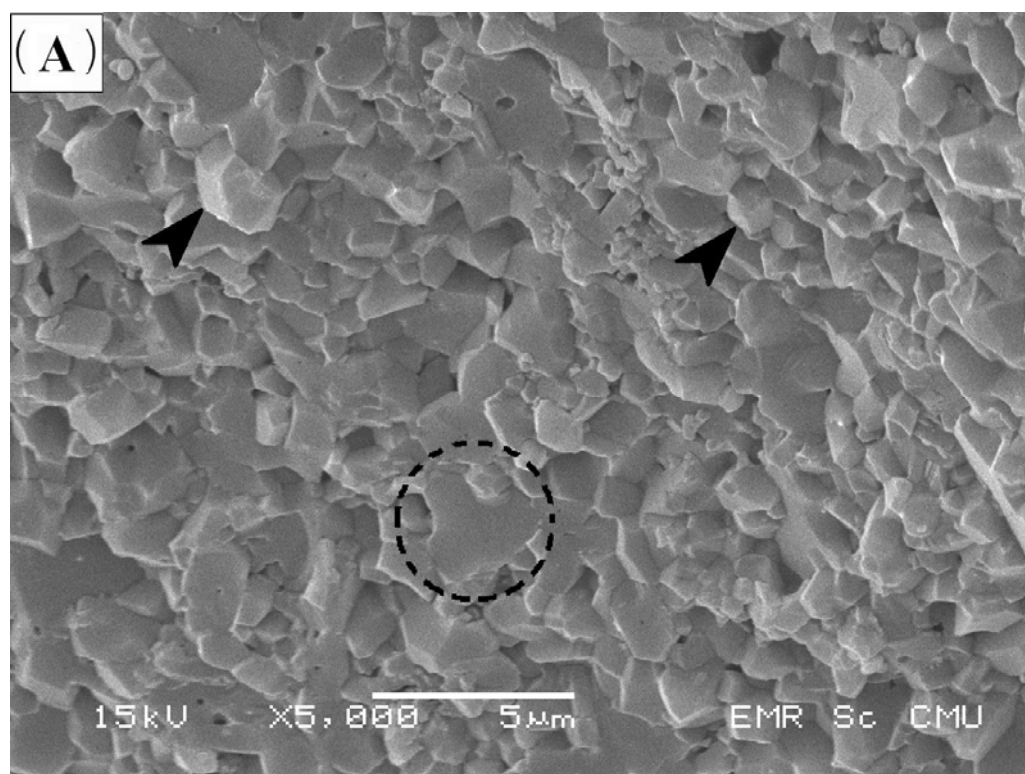
A = อลูมินา, ASO = อลูมินาผสมซิลิกา, ASCm = อลูมินาผสมซิลิกอนคาร์ไบด์

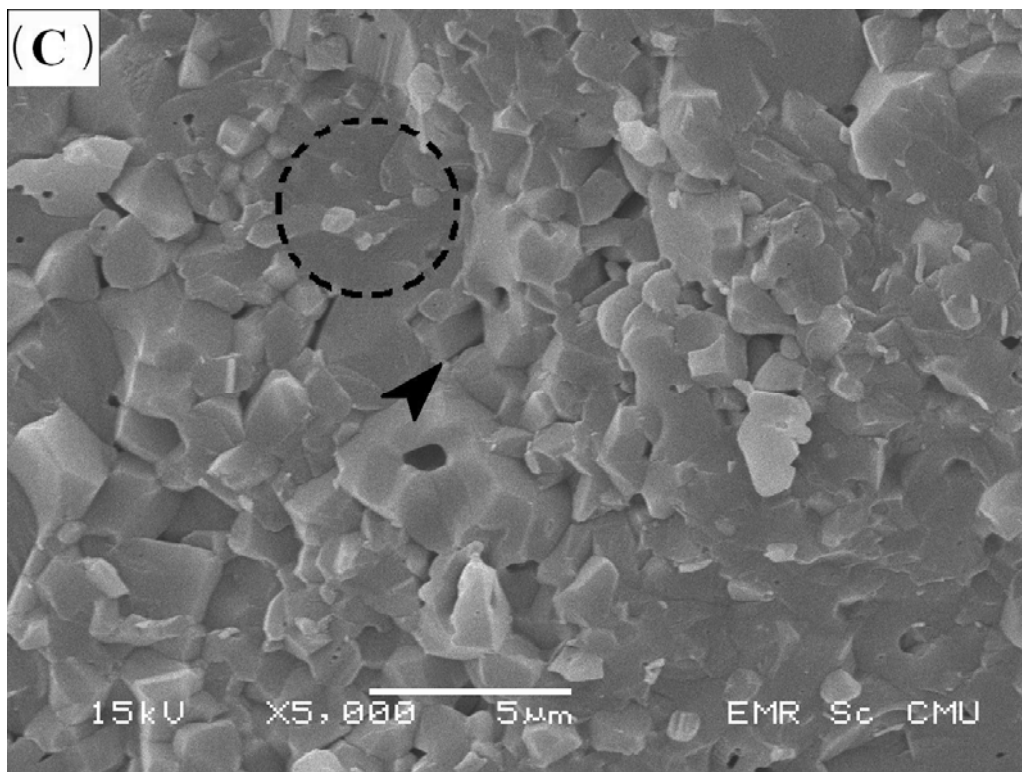
3 ไมโครเมตร, ASCn = อลูมินาผสมซิลิกอนคาร์ไบด์ 50 นาโนเมตร

3.3 สมบัติเชิงกลของเซรามิก

3.3.1 ลักษณะรอยแตก

รูป 2 แสดงผิวที่เกิดจากการแตกหักของชิ้นงานเซรามิกทั้งหมดหลังจากการเผาผนึกที่อุณหภูมิระหว่าง 1550°C เป็นเวลา 30 นาที โดยรูปดังกล่าวสามารถนำมาใช้ศึกษาขนาดของเกรนโดยการวัดด้วยวิธี linear interception การแตกหักในอลูมินาโดยทั่วไปเป็นการแตกหักแบบตามเกรน (intergranular fracture) จากรูป 2(A) การแตกหักในชิ้นงาน ASC (รูป 2(B)) โดยทั่วไปแล้วเป็นการแตกหักแบบข้ามเกรน (transgranular fracture) การเติมซิลิกาลงในอลูมินาทำให้เกิดการเปลี่ยนแปลงกลไกการแตกหักเล็กน้อย เป็นการแตกหักผสมระหว่างการแตกหักแบบตามเกรนและแบบข้ามเกรน แสดงดังรูป 2(C) กลไกการแตกหักในชิ้นงานที่ต่างกันมีสาเหตุอันเนื่องมาจากการเติมซิลิกาและซิลิกอนคาร์ไบด์ลงในอลูมินาและเฟสของมัลไลต์ที่เกิดขึ้นจากปฏิกิริยาระหว่างเผาผนึก [7]





รูป 2 ลักษณะผิวย่อยแตกของชิ้นงาน (A) A55, (B) ASC55 และ (C) ASO55 ลูกศรแสดงบริเวณที่มีการแตกหักตามเกรนและวงกลมประแสดงบริเวณที่มีการแตกหักผ่าเกรน

3.3.2 ความแข็งของวิกเกอร์สและความทนทานต่อการแตกหัก

ตาราง 3 สรุปสมบัติเชิงกลของเซรามิก (ความแข็งแบบวิกเกอร์สและความทนทานต่อการแตกหัก) พบว่าชิ้นงานอลูมินา (A) มีความแข็งต่ำกว่าชิ้นงาน ASO และ ASC ที่อุณหภูมิเผาผนึกที่เท่ากัน โดยมีความแข็งต่ำสุดเท่ากับ 9.4 ± 1.0 GPa ที่อุณหภูมิเผาผนึก 1400°C นอกจากนี้ชิ้นงาน ASC มีความแข็งสูงสุดเมื่อเทียบกับชิ้นงานอื่นที่อุณหภูมิเผาผนึกเดียวกัน โดยมีความแข็งสูงสุดเท่ากับ 17.6 ± 1.6 GPa ที่อุณหภูมิเผาผนึก 1500°C แนวโน้มของความแข็งของชิ้นงานขึ้นอยู่กับอุณหภูมิเผาผนึก ที่อุณหภูมิเผาผนึก 1400°C ชิ้นงานมีความแข็งต่ำ และมีความแข็งสูงสุดที่อุณหภูมิเผาผนึก 1500°C เนื่องจากแนวโน้มความหนาแน่นของชิ้นงานเพิ่มขึ้นเมื่ออุณหภูมิเผาผนึกสูงขึ้น [8] ขณะเดียวกันขนาดเกรนมีความสัมพันธ์กับความแข็งเช่นเดียวกันในกรณีของชิ้นงานอลูมินาที่มีความแข็งลดลงเมื่อขนาดของเกรนเพิ่มขึ้นที่อุณหภูมิ 1550°C เมื่อพิจารณาเวลาเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1400°C พบว่าการเผาผนึกเป็นเวลานานขึ้นทำให้ความแข็งลดลงเนื่องจากความหนาแน่นลดลง โดยแนวโน้มของความแข็งมีความสัมพันธ์กับความหนาแน่นของชิ้นงาน จะเห็นได้ว่าความแข็งของอลูมินาเพิ่มขึ้นเนื่องจากความหนาแน่นมากขึ้น ส่วนชิ้นงาน ASC ที่เวลาเผาผนึกต่างกันมีความแข็งไม่เปลี่ยนแปลงมากนักเนื่องจากความหนาแน่นแตกต่างกันเพียงเล็กน้อย อย่างไรก็ตามความแข็งของชิ้นงานไม่มีความสัมพันธ์กับขนาดเกรนอย่างเด่นชัด

เมื่อพิจารณาความทนทานต่อการแตกหักในตาราง 3 พบว่าความทนทานต่อการแตกหักมีค่าไม่แตกต่างกันอย่างมีนัยสำคัญ ทั้งนี้เนื่องจากมีลัทธิที่เกิดขึ้นไม่เกี่ยวข้องในการช่วยทำให้ความยาวของรอยแตกเปลี่ยนแปลงเนื่องจากการเคลื่อนที่ของรอยแตกอัดมอดูภาคมีลัทธิ (crack deflection) [9] ชิ้นงานที่มีความทนทานต่อการแตกหักสูงสุดคือ อลูมินาบริสุทธิ์ ที่อุณหภูมิเผาผนึก 1550 องศาเซลเซียส ($3.1 \pm 0.3 \text{ MPam}^{1/2}$)

ชิ้นงาน	ความแข็ง (GPa)	$K_{IC} (\text{MPam}^{1/2})$
A55	11.9 ± 1.6	3.1 ± 0.3
ASO55	18.5 ± 1.7	2.5 ± 0.2
ASCm55	17.6 ± 1.6	2.5 ± 0.2
ASCn55	16.2 ± 2.4	2.5 ± 0.2
A50	15.3 ± 2.2	2.4 ± 0.2
ASO50	17.4 ± 1.7	2.4 ± 0.2
ASCm50	17.6 ± 1.6	2.4 ± 0.2
A45	9.8 ± 0.6	2.4 ± 0.1
ASO45	12.6 ± 1.7	2.6 ± 0.2
ASCm45	17.5 ± 1.3	2.2 ± 0.1
A40	9.4 ± 1.0	2.7 ± 0.1
ASO40	12.0 ± 0.8	2.7 ± 0.1
ASCm40	13.9 ± 1.1	2.3 ± 0.1
ASCn40	12.0 ± 1.2	2.1 ± 0.1

ตาราง 3 สมบัติเชิงกลของชิ้นงานเซรามิก

4. สรุปผลการทดลอง

จากการทดลองการผลิตเซรามิกที่มีอลูมินาเป็นองค์ประกอบหลักโดยการเติมซิลิกอนคาร์ไบด์หรือซิลิกาเป็นองค์ประกอบรองหรือตัวเสริมแรงโดยการเผาผนึกในบรรยากาศแสดงให้เห็นว่า การเติมตัวเสริมแรงเหล่านี้ส่งผลต่อคุณสมบัติเชิงกลของอลูมินา โดยคอมโพสิตที่ผลิตได้เป็นอลูมินา/มีลัทธิเซรามิกคอมโพสิต เมื่อเติมซิลิกอนคาร์ไบด์ลงในอลูมินาพบว่าเซรามิกมีความหนาแน่นต่ำลงเนื่องจากการยับยั้งการเติบโตของเกรนแต่เซรามิกมีความหนาแน่นตัวที่อุณหภูมิเผาผนึกต่ำ การเติมซิลิกอนคาร์ไบด์จึงเป็นการควบคุมขนาดเกรนของอลูมินาวิธีหนึ่งซึ่งสามารถนำมาพัฒนาคุณสมบัติเชิงกลของเซรามิกที่มีอลูมินาเป็นองค์ประกอบหลักได้ เมื่อเติมซิลิกาขนาดอนุภาคนาโนลงในอลูมินาพบว่าเซรามิกมีความหนาแน่นใกล้เคียงกับอลูมินาแต่มีขนาดเกรนใหญ่กว่าเนื่องจากเกิดการเร่งการเติบโตของเกรนอลูมินา

พื้นผิวรอยแตกของคอมโพสิตมีลักษณะแตกผ่าเกรนเมื่อเปรียบเทียบกับอลูมินาบริสุทธิ์ที่มีลักษณะแตกจะแตกตามเกรน ความแข็งแรงของคอมโพสิตสูงกว่าอลูมินาแต่ความทนทานต่อการแตกหักไม่แตกต่างกันมากนัก ถึงแม้ว่าการผลิตคอมโพสิตอลูมินา/ซิลิกอนคาร์ไบด์จะไม่ประสบความสำเร็จในงานวิจัยชิ้นนี้ แต่คอมโพสิตอลูมินา/มัลไลต์ที่ผลิตได้แสดงสมบัติเชิงกลที่น่าสนใจโดยสามารถทำให้พัฒนาได้โดยการเลือกเงื่อนไขในการเผาผนึกที่เหมาะสม คอมโพสิตอลูมินา/มัลไลต์ที่เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1550 องศาเซลเซียสมีความหนาแน่นและความทนทานต่อการแตกหักสูงสุดโดยมีความแข็งแรงที่สูงพอสมควร

5. ความเห็นและข้อเสนอแนะเพิ่มเติม

5.1 ควรทำการทดลองเพิ่มเติมในสภาพที่มีแก๊สเฉื่อยผสม เช่น ไนโตรเจน (N_2) หรือ อาร์กอน (Ar) เพื่อชะลอการเกิดปฏิกิริยาออกซิเดชัน

5.2 ควรเตรียมผงดัดด้วยวิธีอื่นเพิ่มเติม เช่น โซล-เจล เพื่อศึกษาถึงความเป็นไปได้ในการผลิตเซรามิกคอมโพสิตอลูมินา/ซิลิกอนคาร์ไบด์ที่เผาผนึกในอากาศ

6. เอกสารอ้างอิง

- [1] Luo HH, Zhang FC, Roberts SG, *Mat. Sci. Eng. A* 2008, 478, 270-275.
- [2] Ortiz-Merino JL, Todd RI, *Acta Mater* 2005, 53, 3345-57.
- [3] Todd RI, Limpichaipanit A, *Adv in Sci and Tech* 2007, 45, 555-63.
- [4] Limpichaipanit A, Todd RI, *J Eur Ceram Soc* 2009, 29, 2841-48.
- [5] Louet N, Gonon M, Fantozzi G, *Ceram Inter* 2005, 31, 981-87.
- [6] Louet N, Reveron H, Fantozzi G, *J Eur Ceram Soc* 2008, 28, 205-15.
- [7] Svancarek P, Lendvayova S, Galusek D, Hnatko M, Vavra I, Wang X, *Wear* 2011, 271, 760-769.
- [8] Rice RW, *Porosity of Ceramics*, Marcel Dekker, New York, 1998.
- [9] Burgos-Montes O, Moreno R, Baudin C, *J. Eur. Ceram. Soc.* 2010, 30, 857-863.

ผลงานจากโครงการที่ได้รับทุนจาก สกว.

ผลงานตีพิมพ์ในระดับนานาชาติ

1. A. Limpichaipanit*, S. Jiansirisomboon, G. Rujijanagul, T. Tunkasiri, Effect of sintering temperature on microstructure and mechanical properties of alumina/mullite composites, submitted to Science and Engineering of Composite Materials.

Effect of Sintering Temperature on Microstructure and Mechanical Properties of Alumina/mullite Composites

Apichart Limpichaipanit*, Sukanda Jiansirisomboon, Gobwute Rujijanagul and
Tawee Tunkasiri

Abstract

Alumina/mullite composites were fabricated by reaction sintering from two different sintering powder mixtures-alumina with silica and alumina with silicon carbide (to allow oxidation to form silica). After sintering, silica underwent complete reaction to form alumina/mullite composites. In terms of microstructure, density and grain size of ceramic samples were investigated. The density of the composites prepared by alumina and silicon carbide was lower than those of alumina and the composites prepared by alumina and silica. The grain size increased as the sintering temperature increased. In terms of mechanical properties, fracture surfaces, hardness and fracture toughness were investigated. It was found that the fracture surface of alumina was rather intergranular whereas the fracture surface of the composites was more transgranular. The hardness of the composites was higher than that of alumina at the same sintering temperature. However, the fracture toughness of the composites was not significantly different compared to that of alumina.

Keywords: Ceramics; Composite; Fracture; Mechanical properties

***Corresponding author: Apichart Limpichaipanit**, Department of Physics and Materials Science, Faculty of Science, Chiang Mai University, Chiang Mai, 50200, Thailand, e-mail: apichart_l@cmu.ac.th

Sukanda Jiansirisomboon, Gobwute Rujijanagul and Tawee Tunkasiri,

Department of Physics and Materials Science, Faculty of Science, Chiang Mai

University, Chiang Mai, 50200, Thailand

Introduction

The most common method to improve mechanical properties of ceramics is to incorporate second phase particle into the based ceramic, so-called Ceramic Matrix Composites (CMCs). Alumina-based composites are widely used in many applications because alumina has high melting point, hardness, wear and corrosion resistance. Second phase or reinforcement phase added to alumina results in an increase of fracture toughness, hardness and strength [1-2], which can be non-oxide (e.g. SiC, Si₃N₄, TiC) [1,3-4] or oxide (e.g. ZrO₂, TiO₂) [5-6]. When silica (SiO₂) is added to alumina, the alumina/mullite composites can be formed due to the reaction between alumina and silica at high temperatures to create mullite (3Al₂O₃.2SiO₂) as the product.

There has been rather extensive research of alumina/mullite composites in terms of both processing and characterization. Reaction sintering is the most common method to fabricate alumina/mullite composites and in this case starting powders are required to produce ceramic green compact. The starting powders can be prepared by ball milling or sol-gel followed by calcination. She *et al.* [7] fabricated the composites using α -Al₂O₃, Al and α -SiC as the starting materials and ZrO₂ as the sintering aid. The powders were ball milled then uniaxially pressed and sintered in air so that SiC underwent oxidation to form silica (SiO₂), which can further reacted with alumina to form mullite. The composite with 15 vol% ZrO₂ exhibited high density after sintering at 1580°C for 2 h with intergranular fracture mode and high strength. Sedaghat *et al.* [8] utilized sol-gel method where starting precursors were aluminium chloride

hexahydrate ($\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$) and tetraethyl orthosilicate (TEOS). The composite powders were obtained by calcination at 900°C for 2 h followed by attrition milling, drying and sieving. The resulting composites contained intergranular and intragranular mullite and the alumina matrix grain size was decreased. Alumina/mullite composites can also be produced by infiltration technique. Marple and Green [9] prepared partially sintered alumina sample and the sample was infiltrated with hydrolyzed ethyl silicate solution. The composites had only mullite and alumina where the grain growth of alumina matrix was restricted by mullite. Young's modulus of the particular composites was lower than that of pure alumina and fracture toughness was increased up to 60% in some samples [10].

In comparison, it can be seen that reaction sintering is the simplest route of the production. Furthermore, reaction sintering is more economical compared to other methods of ceramic processing and can also ensure homogeneous distribution of the second phase (i.e. mullite) [11]. Silicon carbide is generally used as the starting powder to form silica via oxidation. Sakka *et al.* [11] fabricated alumina-mullite-SiC nanocomposites from alumina and silicon carbide powders. The silicon carbide powder was oxidized at the surface and the silica resulting from the oxidation reacted to alumina at the surface between Al_2O_3 and SiO_2 to form mullite, leaving the unreacted alumina and remaining unoxidized SiC surrounded by mullite. The study and modeling of oxidation behavior of SiC in alumina-based CMCs was also carried out and it was found that silica and mullite formation depends mainly on rate of oxidation (governed by sintering temperature), SiC geometry and SiC particle size (i.e. surface area) [12-13]. However, the fabrication of alumina/mullite composites from the mixture of alumina and silica is also possible and there is yet no study to compare the microstructure and mechanical properties of the composites from different starting powders.

In this study, alumina/mullite composites were fabricated by reaction sintering using alumina, silica and silicon carbide (to be oxidized to form silica) as the starting powders. The objective is to investigate the effect of sintering temperature on microstructure and mechanical properties of alumina/mullite composites prepared by different starting powders with the same route of processing.

Experimental procedure

The starting powders consist of Al_2O_3 (200 nm), SiC (3 μm) and SiO_2 (0.007 μm). To fabricate alumina/mullite composites, two powder mixtures (Al_2O_3 +4.1 wt% SiC and Al_2O_3 +6 wt% SiO_2) was used. The amount of silicon carbide added (4.1 wt%) would be oxidized to 6 wt% SiO_2 provided that SiC undergoes complete oxidation. The ceramic powders were mechanically mixed by ball milling using ethanol as dispersing media and zirconia balls as milling media. To prevent abnormal grain growth, 0.25 wt% MgO was also added in the powders. Ball milling was performed for 5 h and then the slurry was dried in an oven for 24 h. After drying, the powder was obtained by crushing in mortar with pestle and then sieving through a 150 μm sieve. Ceramic pellets were produced by uniaxial pressing at 150 MPa and the ceramic samples were sintered in air at the temperatures between 1400 and 1550°C for 30 mins where the heating and cooling rate was 5°C/min. The pure alumina samples are denoted as A; the alumina/mullite composites prepared from alumina and silica powders are denoted as ASO; and the alumina/mullite composites prepared from alumina and silicon carbide powders are denoted as ASC. The numbers of the samples are sintering temperature where 40, 45, 50 and 55 are 1400, 1450, 1500 and 1550°C, respectively.

Phase identification of the sintered samples was carried out using X-Ray Diffraction (XRD) technique. The scanning step of the diffractometer (Miniflex 600, Rigaku, Japan) was 0.05° and 2θ was between 20° and 100°. The diffraction patterns

were matched with patterns in JCPDS file. The investigation of microstructure and mechanical properties include density, grain size, fracture surface, hardness and fracture toughness. Sample density was measured by Archimedes method. The morphology of ceramic grain and fracture surface was examined by Scanning Electron Microscope (SEM-LV5910, JEOL, Japan). To measure grain size and hardness of the ceramic samples, metallographic preparation for polishing was carried out as follows: grinding using 25 µm diamond suspension until flat and polishing using 6, 3 and 1 µm diamond suspension to the final surface finish. The samples were prepared for grain size determination by polishing and thermal etching at 50°C lower than the sintering temperature for 30 mins. The linear interception method was used to calculate the grain size of alumina. The fracture surfaces were prepared by breaking the samples with no further surface treatment. The samples for SEM observation were sputtered with gold to prevent surface charging. The polished surfaces were subjected to hardness measurement using Vickers microhardness tester (Wolpert W Group, England) with 1 kg load (9.8 N) and the dwell time of 10 s. Fracture toughness was calculated from the formula:

$$K_{Ic} = 0.016 \left(\frac{E}{H_v} \right)^{1/2} \frac{P}{c^{3/2}}$$

where K_{Ic} is fracture toughness, E is Young's modulus, H_v is Vickers hardness, P is indenter load and c is radial crack length. The Young's modulus values are obtained from Asmani *et al.* [14] where porosity of the alumina samples is taken into account.

Results and discussion

XRD patterns of alumina and alumina/mullite composites made from the two mixtures sintered at 1400°C are shown in Figure 1. It can be seen that the composites consisted of only alumina (JCPDS file no. 42-1468) and mullite (JCPDS file no. 79-

1456) with no peaks of silica (SiO_2) or silicon carbide (SiC). This can be concluded that mullite was completely formed by SiO_2 (either from deliberate addition or SiO_2 as a product of oxidation from SiC). In case of SiC addition, the temperature of 1400°C or higher could result in a complete oxidation for the SiC with a particle size of $3\text{ }\mu\text{m}$ since the oxidation of SiC started around 820°C for micron-sized SiC [15].

Density, grain size, hardness and fracture toughness of all ceramic samples are summarized in Table 1. The graph of density of samples as a function of sintering temperature is shown in Figure 2. It can be seen that alumina (A) and alumina/mullite prepared by alumina and SiO_2 mixture (ASO) had higher density as the sintering temperature was increased whereas the final density of alumina/mullite prepared by alumina and SiC mixture (ASC) tended to be insensitive to sintering temperature. The density of alumina/mullite from alumina and SiO_2 was slightly higher than that of alumina at the same sintering temperature (0.4-1.2%). The increase of final density of alumina due to an addition of SiO_2 to form alumina/mullite composites is also reported by Svancarek *et al.* [16] where the addition of up to 10 wt% SiO_2 could slightly improve the density of alumina samples. The density of the composites prepared by alumina and SiC was significantly lower than that of alumina at the same sintering temperature (2.6-6.2%). Luo *et al.* [17] reported the decrease in final density when alumina/mullite composites were prepared by the same method as this work. However, the decrease was quite small ($\sim 0.5\%$) and this was a lot smaller than this work. The possible explanation for the decrease of final density is that SiC prior to oxidation to silica hinders densification of alumina ceramics during sintering [18]. Also, oxidation of SiC results in CO_2 as a product, which could create open pores [12] and thus reduce the final density of the samples fabricated by alumina and SiC as the starting powders.

Figure 3 shows the graph of alumina grain size versus sintering temperature. It can be seen that the grain size increases as the sintering temperature is increased. All samples had the grain size of $\sim 1 \mu\text{m}$ when the sintering temperature was 1400 and 1450°C. At 1500°C, alumina (A50) had the grain size of $1.1 \mu\text{m}$ but the alumina/mullite composites (ASO50 and ASC50) had the larger grain size. The grain size of all samples was increased at the sintering temperature of 1550°C where alumina (A55) had the smaller grain size than the alumina/mullite samples (ASO55 and ASC55). It should be noted that at higher temperatures (i.e. 1500 and 1550°C) alumina/mullite from alumina and SiC powders had larger grain size than pure alumina because micron-size SiC particles before oxidation were not effective to inhibit grain growth from grain boundary pinning like nano-size SiC particles [19-20]. Moreover, SiO_2 in the powder mixture from both deliberate addition and oxidation could also act as a sintering aid and promote grain growth during sintering due to a formation of glassy thin films [21], resulting in the larger grain size and higher final density compared to pure alumina.

Figure 4 shows the micrographs of fracture surface of the alumina and alumina/mullite samples with similar grain size. Intergranular fracture is observed in alumina where faceted fracture surface is the characteristic. There is also a small area of transgranular fracture in alumina. In alumina/mullite composite, the fracture surface is rather transgranular with lesser extent of intergranular fracture compared to pure alumina. The morphology of alumina/mullite fracture surface is in good agreement to the previous report [22]. The change of fracture mode was caused by the presence of mullite from reaction sintering, which resulted in grain boundary strengthening [17]. From the micrographs, it can be seen that the fracture surface of ASO (Figure 4(b)) is more transgranular than ASC (Figure 4(c)). This could be due to the fact that mullite from SiO_2 obtained by oxidation of SiC (particle size of $3 \mu\text{m}$)

had a larger size than that obtained by direct addition (0.007 μm) as previously reported by Burgos-Montes *et al.* [22] or the mullite in ASO was more intergranular than that in ASC [23].

The graph of hardness as a function of sintering temperature is shown in Figure 5. The hardness of A and ASO samples increased as the sintering temperature was increased (except A50 sample where the hardness was higher than A55 sample). It can be seen that the increase of density plays an important role to improve the hardness of the ceramics [24]. Comparing at the same sintering temperature, the hardness of alumina was lower than those of alumina/mullite composites, which shows the same trend as the previous report [16-17]. However, alumina/mullite composites prepared from SiC starting powder (ASC) had higher hardness than that prepared from SiO₂ starting powder (ASO). It could be due to the fact that the higher hardness resulted from the greater amount of mullite formed or the more homogeneous distribution of mullite in ASC ceramic sample [16-17]. Figure 6 is the graph of fracture toughness versus sintering temperature. It can be seen that there is no significant difference in fracture toughness between alumina and alumina/mullite composites. The value of fracture toughness of alumina sintered at 1550°C is higher than the other samples because of the high value of $(E/H_V)^{1/2}$. In this work, the calculated volume fraction of mullite in the composites is ~14% (from the reaction sintering with 6 wt% SiO₂ from direct addition or oxidation) and the result of hardness and fracture toughness can be compared with the report from Luo *et al.* [17] and Svancarek *et al.* [16]. The value of hardness is agreeable and the value of fracture toughness is slightly lower because the calculation in this work takes the effect of porosity into account [14].

To summarize the results, the relationship between mechanical properties and microstructure is discussed in this paragraph. It can be seen that alumina/mullite composites could be obtained by ceramic processing from two different starting powder mixtures. The larger grain size of alumina/mullite composites compared to alumina, in most cases, at the same sintering temperature was caused by SiO_2 from direct addition or oxidation of SiC [21]. ASC ceramic sample had lower density than alumina due to the delay of densification resulting from SiC prior to oxidation or formation of CO_2 gas during oxidation whereas ASO ceramic had slightly higher density than alumina due to SiO_2 . The subsequent formation of mullite resulted in an increase of hardness and the change of fracture mode to transgranular. However, the mullite formation process in ASO and ASC was different, resulting in the difference of hardness and degree of transgranular fracture. When large SiC particles are used as starting powder for reaction sintering, mullite tends to form inside alumina matrix [11] while small SiO_2 particles react with alumina to form mullite at grain boundaries [22]. As a result, mullite in ASC was distributed more evenly whereas mullite in ASO tended to be situated at the grain boundary. Therefore, the hardness of ASC was higher with less transgranular fracture compared to ASO. In this work, it can be seen that reaction sintering process is beneficial to processing of alumina/mullite composites where the particle size of starting powders can be utilized to tailor the position and distribution of mullite, which affect the mechanical properties (i.e. fracture mode and hardness).

Conclusions

The effect of sintering temperature on microstructure and mechanical properties of alumina/mullite was studied and it was found that:

- 1) The density of pure alumina and alumina/mullite composites prepared by alumina with silica increased with sintering temperature but the density of the

composites was not changed when the powder mixture was alumina with silicon carbide.

2) The grain size increased with sintering temperature in both alumina and alumina/mullite composites.

3) The hardness of alumina/mullite composites was higher than that of alumina. Higher sintering temperature resulted in higher hardness because of the increase in density of ceramic sample.

4) The fracture toughness of alumina and alumina/mullite composites was not so different and it did not depend on sintering temperature.

Acknowledgements

AL would like to thank Electroceramics Research Laboratory, Chiang Mai University (CMU), for high temperature furnace usage. This work is supported by CMU New Researcher Grant 2013 and Thailand Research Fund (TRF) in conjunction with CMU and Office of the Higher Education (OHEC) grant no. MRG56800060.

References

- [1] Niihara K, *J. Ceram. Soc. Jap.* 1991, 99, 974-982.
- [2] Zhao J, Stearns LC, Harmer MP, Chan HM, Miller GA, *J. Am. Ceram. Soc.* 1993, 76, 503-510.
- [3] Walker CN, Borsa CE, Todd RI, Davidge RW, Brook RJ, *Br. Ceram. Proc.* 1994, 53, 249-264.
- [4] Gong J, Miao H, Zhao Z, *J. Eur. Ceram. Soc.* 2001, 21(13), 2377-2381.
- [5] Rittidech A, Tunkasiri T, *Ceram. Inter.* 2012, 38, S125-S129.
- [6] Wang CJ, Huang CY, *Mat. Sci. Eng. A* 2008, 492(1-2), 306-310.
- [7] She JH, Schneider H, Inoue T, Suzuki M, Sodeoka S, Ueno K, *Mater. Chem. Phys.* 2001, 68, 105-109.

- [8] Sedaghat A, Taheri-Nassaj E, Soraru GD, Ebadzadeh T, *Ceram. Inter.* 2014, 40, 2605-2611.
- [9] Marple BR, Green DJ, *J. Am. Ceram. Soc.* 1988, 71, C471-C473.
- [10] Marple BR, Green DJ, *J. Am. Ceram. Soc.* 1991, 74, 2453-2459.
- [11] Sakka Y, Bidinger DD, Askay IA, *J. Am. Ceram. Soc.* 1995, 78, 479-486.
- [12] Sciti D, Bellosi A, *J. Mat. Sci.* 1998, 33, 3823-3830.
- [13] Mogilevsky P, Zangvil A, *Mat. Sci. Eng. A* 1999, 262, 16-24.
- [14] Asmani M, Kermel C, Leriche A, Ourak M, *J. Eur. Ceram. Soc.* 2001, 21, 1081-1086.
- [15] Wu S, Claussen N, *J. Am. Ceram. Soc.* 1994, 77, 2898-2904.
- [16] Svancarek P, Lendvayova S, Galusek D, Hnatko M, Vavra I, Wang X, *Wear* 2011, 271, 760-769.
- [17] Luo HH, Zhang FC, Roberts SG, *Mat. Sci. Eng. A* 2008, 478, 270-275.
- [18] Stearns LC, Zhao J, Harmer MP, *J. Eur. Ceram. Soc.* 1992, 10, 473-477.
- [19] Ortiz-Merino JL, Todd RI, *Acta. Mater.* 2005, 53, 3345-3357.
- [20] Limpichaipanit A, Todd RI, *J. Eur. Ceram. Soc.* 2009, 29, 2841-2848.
- [21] Bae SI, Baik S, *J. Am. Ceram. Soc.* 1994, 77, 2499-2504.
- [22] Burgos-Montes O, Moreno R, Baudin C, *J. Eur. Ceram. Soc.* 2010, 30, 857-863.
- [23] Jiao S, Jenkins ML, Davidge RW, *J. Microscopy* 1997, 185, 259-264.
- [24] Rice RW, *Porosity of Ceramics*, Marcel Dekker, New York, 1998.

Table

Table 1 Physical and mechanical properties of all samples

Temperature (°C)	Sample	Density (%)	G (μm)	H _V (GPa)	K _{Ic} (MPam ^{1/2})
1400	A40	95.0± 0.1	0.7 ± 0.1	9.4 ± 1.0	2.7 ± 0.1
	ASO40	96.2± 0.1	0.6 ± 0.1	12.0 ± 0.8	2.7 ± 0.1
	ASC40	92.4± 0.1	0.9 ± 0.2	13.9 ± 1.1	2.3 ± 0.1
1450	A45	96.8± 0.1	1.0 ± 0.1	9.8 ± 0.5	2.4 ± 0.1
	ASO45	97.2± 0.1	0.6 ± 0.1	12.6 ± 1.7	2.6 ± 0.2
	ASC45	91.0± 0.1	1.3 ± 0.2	17.5 ± 1.3	2.2 ± 0.1
1500	A50	97.4± 0.1	1.1 ± 0.2	15.3 ± 2.2	2.4 ± 0.2
	ASO50	98.1± 0.1	3.9 ± 0.1	17.4 ± 1.7	2.4 ± 0.2
	ASC50	92.3± 0.1	5.0 ± 0.1	17.7 ± 1.6	2.4 ± 0.2
1550	A55	98.7± 0.1	2.9 ± 0.3	11.9 ± 1.7	3.1 ± 0.2
	ASO55	99.4± 0.1	6.0 ± 0.2	18.5 ± 1.8	2.5 ± 0.2
	ASC55	92.5± 0.1	3.6 ± 0.4	16.6 ± 1.7	2.5 ± 0.2

Figures

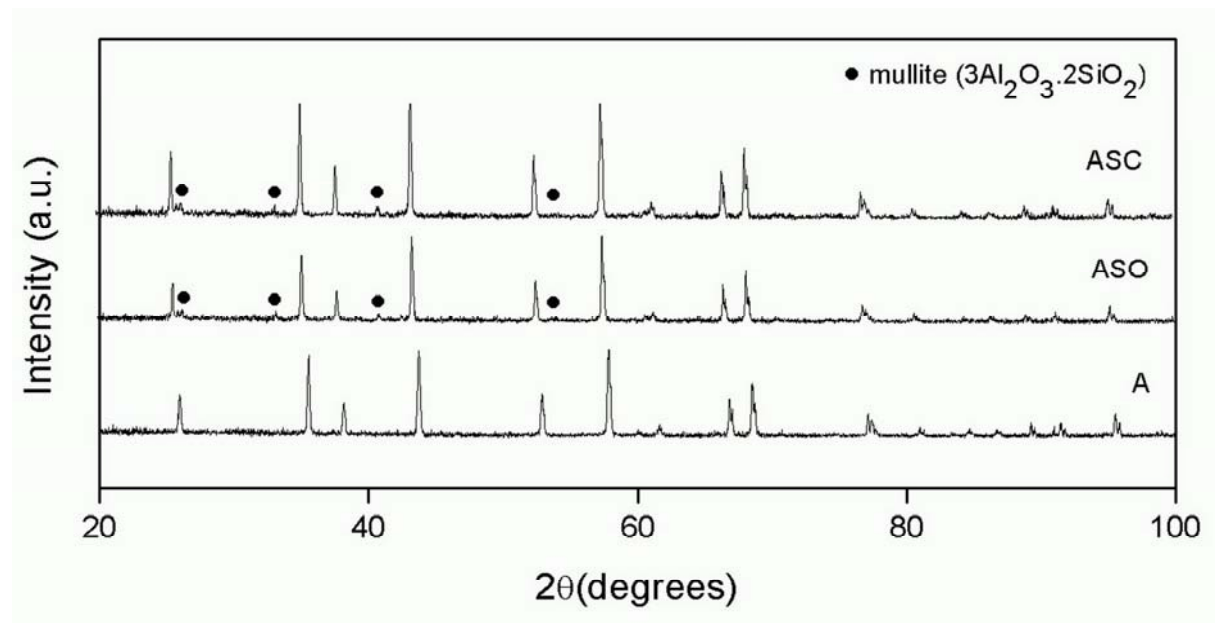


Figure 1 XRD patterns of alumina and alumina/mullite composites at 1400°C (dots show the presence of mullite)

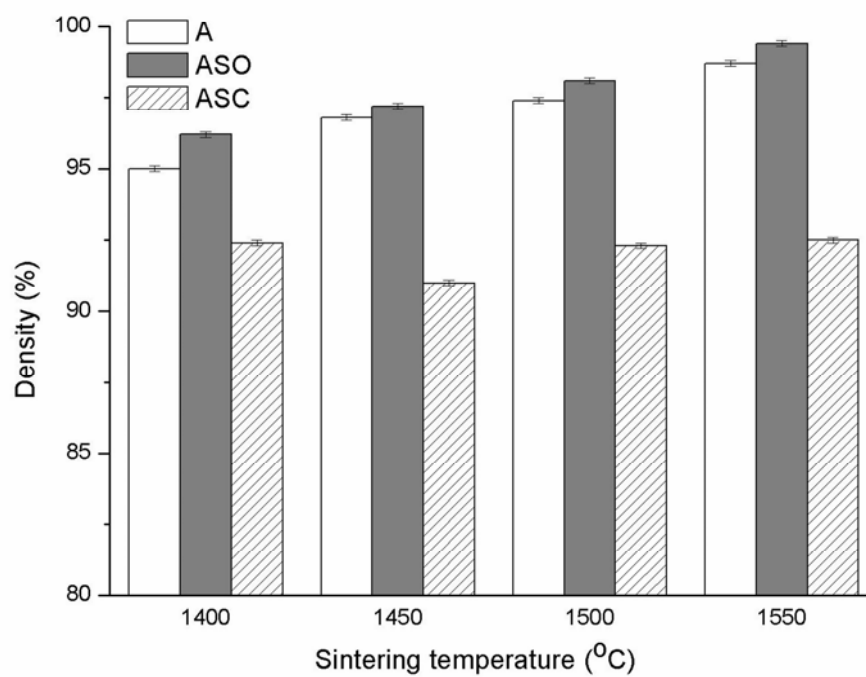


Figure 2 Graph of density as a function of sintering temperature

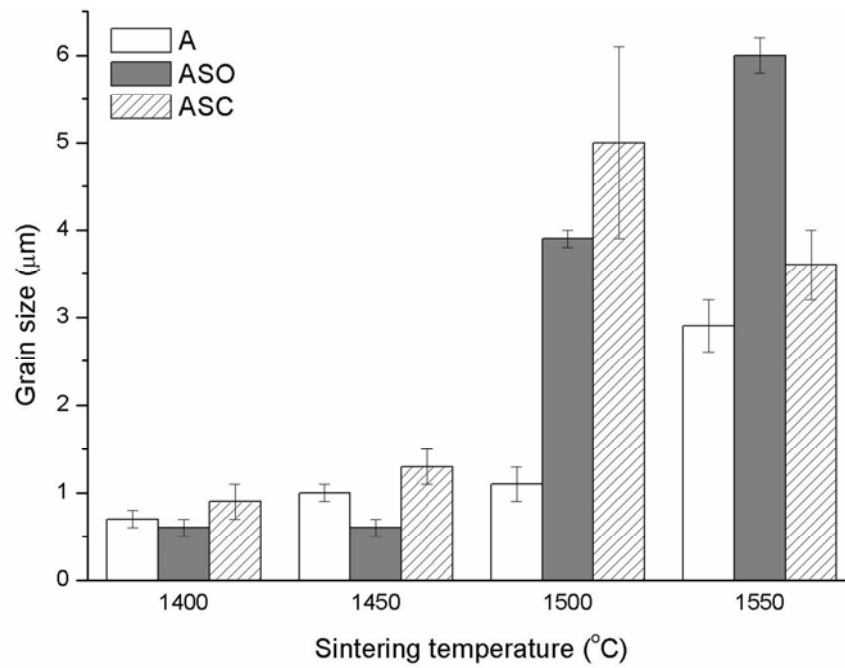
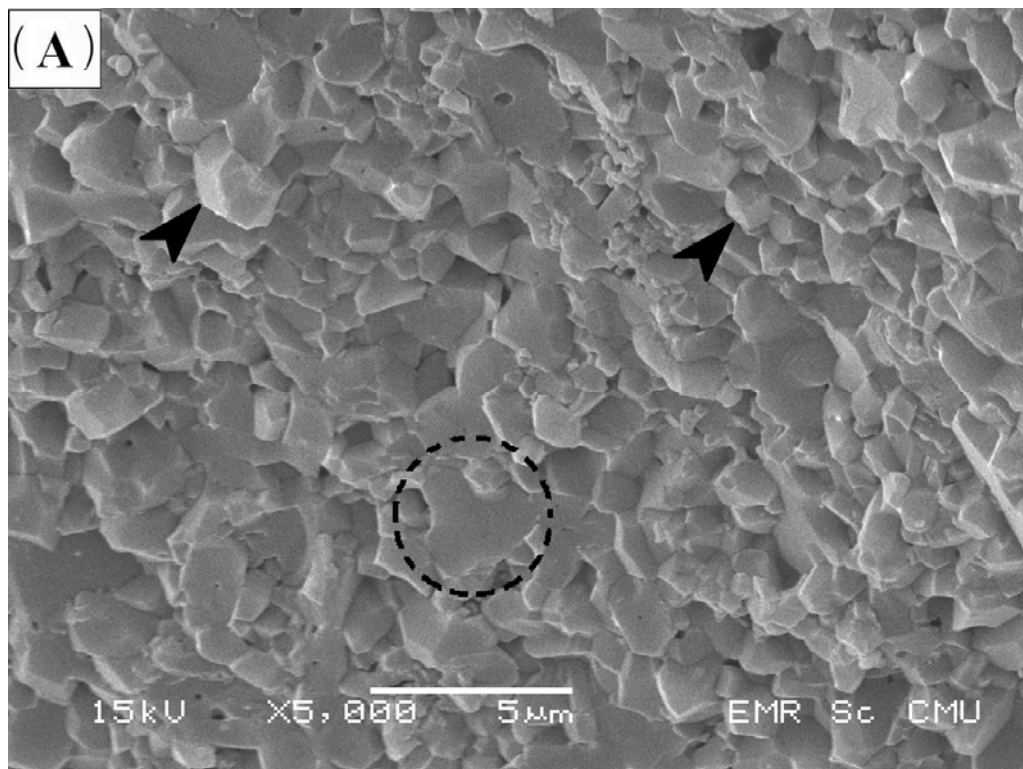


Figure 3 Graph of alumina grain size as a function of sintering temperature



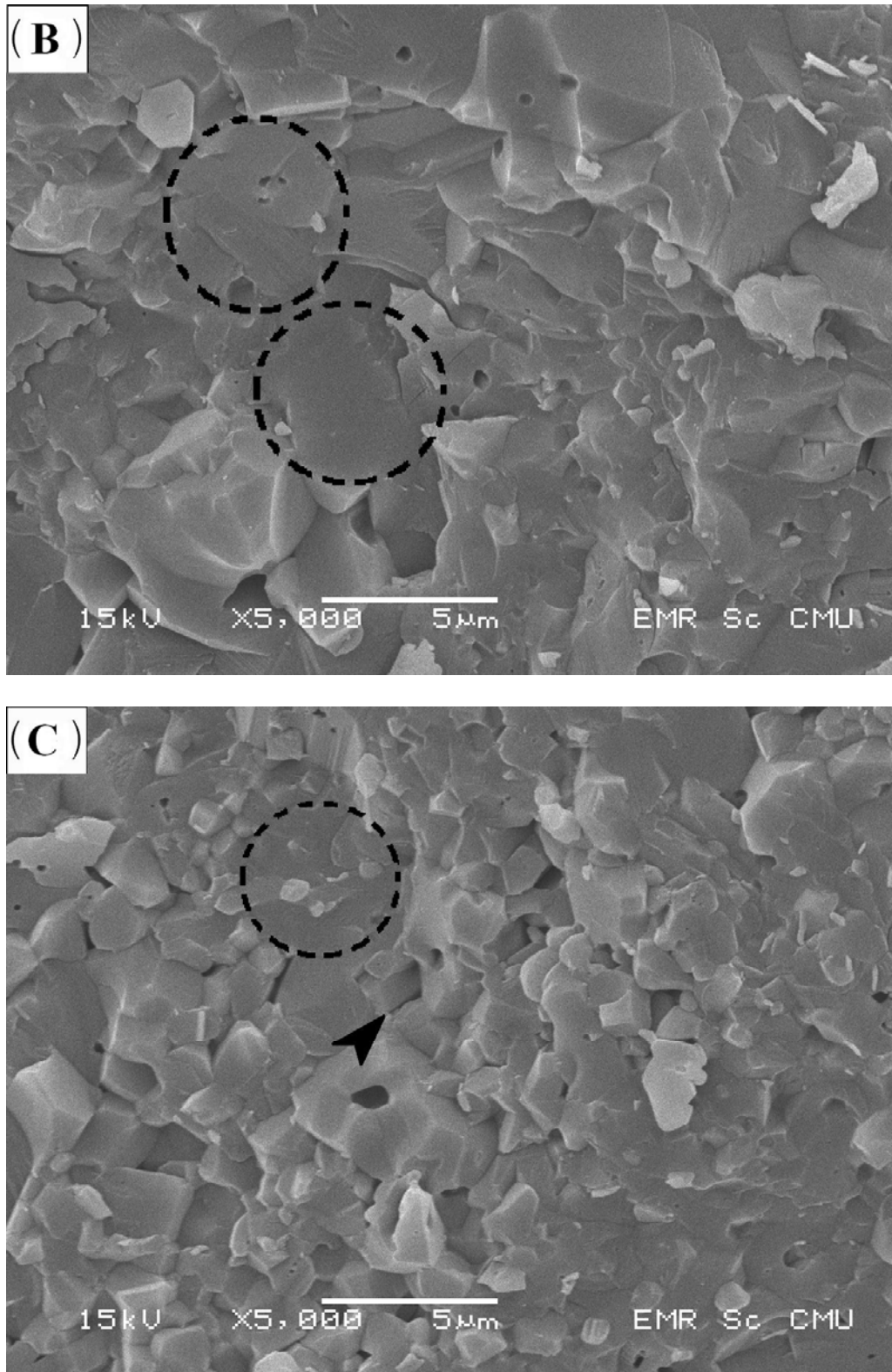


Figure 4 Fracture surfaces of alumina and alumina/mullite composites at 1550°C (A) alumina (A55) (B) alumina/mullite from alumina and silica (ASO55) and (C) alumina/mullite from alumina and silicon carbide (ASC55). The arrow indicates intergranular fracture and the area in dotted circle indicates transgranular fracture.

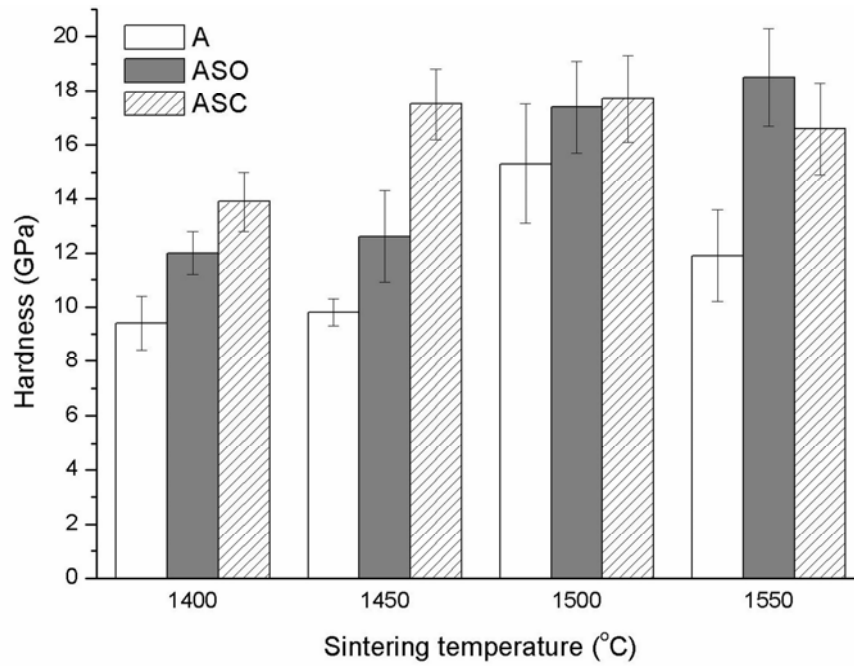


Figure 5 Graph of hardness versus sintering temperature

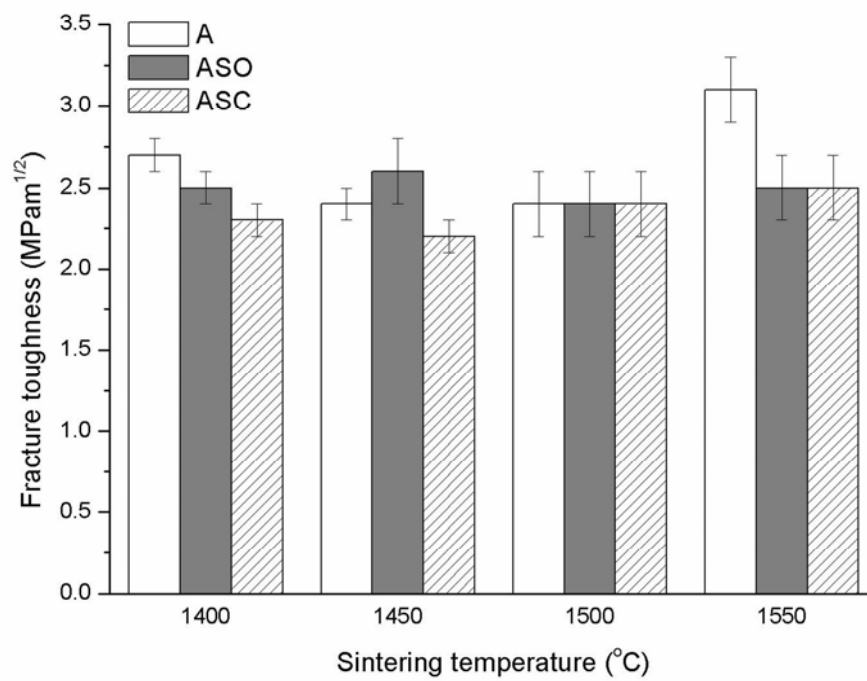


Figure 6 Graph of fracture toughness versus sintering temperature