# СТРОИТЕЛЬНЫЕ МАТЕРИАЛЫ И ИЗДЕЛИЯ

# CONSTRUCTION MATERIALS AND PRODUCTS

Вестник Томского государственного архитектурно-строительного университета. 2023. Т. 25. № 1. С. 152–165.

ISSN 1607-1859 (для печатной версии) ISSN 2310-0044 (для электронной версии)

НАУЧНАЯ СТАТЬЯ УДК 621.762.016 DOI: 10.31675/1607-1859-2023-25-1-152-165 Vestnik Tomskogo gosudarstvennogo arkhitekturno-stroitel'nogo universiteta – Journal of Construction and Architecture. 2023; 25 (1): 152–165. Print ISSN 1607-1859 Online ISSN 2310-0044

# ФИЗИКО-ХИМИЧЕСКИЕ И СТРУКТУРНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ ПРОДУКТА ПОРОШКОВОЙ СМЕСИ Si3N4 И AIN ПЛАЗМОХИМИЧЕСКИМ СПОСОБОМ

## В.А. Власов<sup>1</sup>, А.А. Клопотов<sup>1</sup>, К.А. Безухов<sup>1</sup>, Г.Г. Волокитин<sup>1</sup>, Н.П. Горленко<sup>1</sup>, Ю.С. Саркисов<sup>1</sup>, Е.В. Николаев<sup>2</sup>, Н.Н. Голобоков<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Томский государственный архитектурно-строительный университет, г. Томск, Россия,

*г. Томск, Госсия,* 

<sup>2</sup>Национальный исследовательский Томский политехнический университет, г. Томск, Россия,

<sup>3</sup>Томский филиал Института структурной макрокинетики СО РАН,

г. Томск, Россия

*Аннотация.* В работе представлены результаты исследований получения β-SiAlON из нитридов алюминия, кремния и мочевины при помощи воздействия высокоэнтальпийным потоком термической плазмы.

Методами рентгенофазового анализа, сканирующей электронной микроскопии и дифференциально-термического анализа исследованы физико-химические свойства β-SiAlON. Показано, что при заданных параметрах воздействия плазменной струи на исходный материал происходит термохимическая реакция с образованием β-Si<sub>5</sub>AlON<sub>7</sub>.

Выявлены и исследованы три области структурообразования, обусловленные градиентом температур в объеме образца в результате воздействия потоком плазмы. Первая область материала – область, непосредственно облученная плазмой. Вторая область материала – переходная, которая располагается между первой и третьей областями. Третья область – область термического нагрева вследствие теплопередачи от облученной области.

© Власов В.А., Клопотов А.А., Безухов К.А., Волокитин Г.Г., Горленко Н.П., Саркисов Ю.С., Николаев Е.В., Голобоков Н.Н., 2023

*Ключевые слова:* плазма, нитрид кремния, нитрид алюминия, β-SiAlON, рентгенофазовый анализ, термогравиметрический анализ

**Финансирование:** работа выполнена в рамках государственного задания Министерства науки и высшего образования РФ FEMN-2023-0003.

Для цитирования: Власов В.А., Клопотов А.А., Безухов К.А., Волокитин Г.Г., Горленко Н.П., Саркисов Ю.С., Николаев Е.В., Голобоков Н.Н. Физико-химические и структурные исследования продукта порошковой смеси Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> и AlN плазмохимическим способом // Вестник Томского государственного архитектурно-строительного университета. 2023. Т. 25. № 1. С. 152–165. DOI: 10.31675/1607-1859-2023-25-1-152-165.

## ORIGINAL ARTICLE

# PHYSICOCHEMICAL AND STRUCTURAL INVESTIGATIONS OF Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> AND AIN POWDER MIXTURE PRODUCT USING PLASMA TREATMENT

V.A. Vlasov<sup>1</sup>, A.A. Klopotov<sup>1</sup>, K.A. Bezukhov<sup>1</sup>, G.G. Volokitin<sup>1</sup>, N.P. Gorlenko<sup>1</sup>, Yu.S. Sarkisov<sup>1</sup>, E.V. Nikolaev<sup>2</sup>, N.N., Golobokov<sup>3</sup> <sup>1</sup>Tomsk State University of Architecture and Civil Engineering, Tomsk, Russia <sup>2</sup>National Research Tomsk Polytechnic University, Tomsk, Russia <sup>3</sup>Tomsk Branch of Structural Macrokinetics Institute RAS, Tomsk, Russia

Abstract. The paper presents research results of the  $\beta$ -SiAlON production from aluminum, silicon and urea nitrides using high-enthalpy thermal plasma flow. Physicochemical properties of  $\beta$ -SiAlON are studied by using the X-ray phase analysis, scanning electron microscopy, and differential thermal analysis. It is shown that at the spicified plasma jet parameters, a thermochemical reaction occurs with the formation of  $\beta$ -SisAlON7. Three zones of the structure formation caused by the temperature gradient in the bulk material as a result of the plasma exposure, are identified and studied. The first zone is directly irradiated by the plasma. The second is the transition zone, which locates between the first and third zones. The third is the thermal heating zone provided by the heat transfer from the irradiated zone.

*Keywords:* plasma, silicon nitride, aluminum nitride, sialon, structure, X-ray phase analysis, thermogravimetric analysis

*Funding:* This work was financially supported by Grant N FEMN-2023-0003 from the Ministry of Science and Higher Education of the Russian Federation.

*For citation:* Vlasov V.A., Klopotov A.A., Bezukhov K.A., Volokitin G.G., Gorlenko N.P., Sarkisov Yu.S., Nikolaev E.V., Golobokov N.N. Physicochemical and structural investigations of  $Si_3N_4$  and AlN powder mixture product using plasma treatment. Vestnik Tomskogo gosudarstvennogo arkhitekturno-stroitel'nogo universiteta – Journal of Construction and Architecture. 2023; 25 (1): 152–165. DOI: 10.31675/1607-1859-2023-25-1-152-165.

#### Введение

SiAlON (сиалон) – класс азотосодержащей керамики, который является интенсивно используемым керамическим материалом для получения высокотемпературных изделий благодаря хорошему комплексу физико-механических свойств: высокая механическая прочность и твердость, хорошая устойчивость к тепловым ударам и высокая коррозионная стойкость [1, 2]. В зависимости от типа спекающих добавок материалы на основе SiAlON применяются в качестве высокотемпературной конструкционной керамики и коррозионно-устойчивых материалов [3], а при легировании сиалонов редкоземельными элементами – в качестве люминофоров в светодиодных источниках белого света и сцинтилляторов [4].

Известно, что SiAlON существует в четырёх различных модификациях с широкой областью гомогенности.  $\beta$ -SiAlON при общей формуле Si<sub>6-Z</sub>Al<sub>Z</sub>O<sub>Z</sub>N<sub>8-Z</sub> изоструктурен  $\beta$ -Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>. O'-SiAlON (прототип Si<sub>2</sub>N<sub>2</sub>O) с формулой Si<sub>2-Z</sub>Al<sub>z</sub>O<sub>1+Z</sub>N<sub>2-Z</sub>, где Z = 0–0,4. X-SiAlON номинален Si<sub>12</sub>Al<sub>18</sub>O<sub>39</sub>N<sub>8</sub> и изоструктурен муллиту, а также может рассматриваться как твердый раствор муллита в паре с Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>. Фаза α-SiAlON (Me<sub>Z</sub>Si<sub>12-(m+n</sub>Al<sub>m+n</sub>O<sub>n</sub>N<sub>16-n</sub>) формируется в присутствии стабилизирующих ионов металла (Mg, Y или Ca) [5, 6].

В современной литературе известно порядка десяти способов для синтеза SiAlON. Традиционными считаются способы получения SiAlON методами самораспространяющегося высокотемпературного синтеза (CBC) и искрового плазменного спекания (ИПС) [7]. Так, в работе [8] получали SiAlON, используя ферросиликоалюминий (ФСА) и маршалит.

Анализ известных в литературе работ [9–11] для получения SiAlON позволил выявить особенности синтеза при использовании разных методов (таблица). В работе [12] отмечено, что полное уплотнение материалов требует повышенных температур спекания, что создает эксплуатационные сложности. Именно по этой причине оксиды металлов и различные типы добавок применяются в качестве синтезирующих и уплотняющих добавок, которые помогают избежать длительности синтеза и сложностей при высоких температурах. Эти добавки модифицируют структуру нитрида кремния и приводят к созданию SiAlON. Установлено, что синтез SiAlON с образованием эвтектической жидкой фазы приводит к получению более плотных керамических композитов [13].

Название метода	Исходные компоненты	Температура синтеза, °С	Особенности синтеза	Источник
ИПС	Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub> , Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> , AlN	1500-1700	Распределение тепла по образцу, короткое время рабочего цикла	[9, 11]
CBC	Si, Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub> , Al, AlN, Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1200-1300	Уменьшение размера частиц	[10, 11]
Золь-гель метод	Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub> , AlN, SiO <sub>2</sub> Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (золь)	1100 1200	Снижение температу- ры и увеличение ин- тенсивности процесса	[11]

Особенности синтеза SiAlON, полученного разными методами SiAlON synthesis conditions

Известно, что плазмохимический метод, благодаря высокой температуре и электропроводности, оказывает чрезвычайно мощное энергетическое воздействие на тугоплавкие силикатсодержащие и нитридосодержащие материалы, выступая в роли универсального теплоносителя и реагента. Процесс воздействия плазмы на обрабатываемое вещество осуществляется в несколько этапов: плавление, диспергирование, испарение, а затем восстановление и синтез целевого продукта в условиях быстрого охлаждения. В результате возможно образование стабильных и метастабильных фаз с широким спектром размеров частиц, от нанометров до микрометров.

Согласно проведенному анализу литературы исследований, посвященных плазмохимическому синтезу материалов системы Si-Al-O-N, реализованному при помощи энергии плазмы в качестве высокотемпературного источника, немного [14, 15]. Плазмохимический синтез является сугубо неравновесным процессом и происходит в ионной среде, что затрудняет изучение термодинамического поведения исходного материала при высокотемпературном воздействии.

Целью настоящей работы является синтез β-SiAlON путем воздействия высокоэнтальпийным плазменным потоком на смесь нитридов кремния и алюминия.

### Материалы и методика

На рис. 1 представлена схема подготовки материала для проведения плазмохимического синтеза. В качестве исходных компонентов применялись порошки  $\beta$ -Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> (марки T по TУ 6-09-03-321–77), нитрида алюминия (марки A100), карбамид H4N<sub>2</sub>CO (ГОСТ 6691–77) и натриевое жидкое стекло (Na<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>) (ГОСТ 13078–81). Жидкое стекло (Na<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>) использовалось в качестве связующего материала для формирования образца заданных размеров. В качестве реакционной добавки был введен порошок карбамида CO(NH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>, который при высоких температурах способствует образованию газообразного азота в соответствии с реакциями:

$$CO(NH_2)_2 + H_2O \xrightarrow{400 \,^{\circ}C} 2NH_3 + CO_2;$$
  
$$2NH_3 \xleftarrow{1200 \,^{\circ}C} N_2 + 3H_2.$$

Далее все порошки механически просеивались через сито с диаметром ячейки 0,3 мм для получения мелкодисперсных по размеру частиц. После этого порошки засыпались в пресс-форму для формирования плотного брикета, которое проводили гидравлическим прессом под давлением 500 Н. В результате были получены плотные образцы с размерами 45×15×45 мм. На следующем этапе подготовленные брикеты помещали в печь и нагревали до 400 °C в течение 30 мин с последующим остыванием до комнатной температуры. В результате такой термообработки было обеспечено спекание образца и удаление влаги в брикете.

Высокоэнергетическая обработка поверхности образцов была проведена с использованием низкотемпературного плазменного генератора [16]. Согласно литературным данным, среднемассовая температура плазменной струи в области контакта с поверхностью образца достигает значений порядка 3000–5000 К для двухатомных и многоатомных газов с усредненными значениями их энтальпии ~ 2.10<sup>2</sup> ккал/моль [17]. На рис. 2 представлена схема плазмо-химического генератора с плазмотроном прямого действия типа ВПР-410 с ис-

пользованием силы тока и напряжения на источнике питания в пределах I = 220-300 A, U = 120-200 B и мощности P = 25 кВт. Диаметр плазменной струи, взаимодействующей с поверхностью образца, d = 2 мм. После плазменного воздействия образцы остывали до комнатной температуры.



*Puc. 1.* Схема методики подготовки компонентов и образца перед плазмохимическим синтезом *Fig. 1.* Flow-chart of mixture component and sample preparation before plasma treatment

Вестник ТГАСУ. 2023. Т. 25. № 1

Физико-химические и структурные исследования продукта порошковой смеси 157



- *Рис. 2.* Схематическое представление термохимического синтеза материала в плазменном реакторе [18]
- Fig. 2. Flow-chart of thermochemical synthesis in a plasma reactor [18]

Рентгенофазовое исследование проводили на дифрактометре ДРОН-3 с использованием Со<sub>Кα</sub>-излучения. Анализ и расшифровку дифрактограмм проводили при помощи программного комплекса Match Crystal Impact.

Исследование методом сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) было рассмотрено в системе с электронным и сфокусированным пучком QUANTA 200 3D производства FEI Company (США).

ИК-спектры получали с использованием спектрометра Nicolet 6700, ThermoFisher Scientific с приставкой НПВО (алмаз).

Для термодинамического анализа плазмохимического процесса получения сиалоновых фаз была использована универсальная программа TERRA, предназначенная для расчета многокомпонентных гетерогенных систем [19].

Дериватограммы получены на дилатометре с горизонтальным толкателем DIL 402. При проведении ДТА эксперимента нагрев всех образцов происходил от 45 до 1400 °C со скоростью 15 °C/мин в атмосфере азота.

## Результаты и обсуждение

На рис. 3 приведены фотографии подготовленного брикета до плазменного воздействия (рис. 3, *a*) и фрагменты образца в разных масштабах после высокотемпературного плазменного воздействия (рис. 3,  $\delta - c$ ).

При сравнении фотографий видно, что в результате воздействия на исходный образец (рис. 3, *a*) высокоэнтальпийным потоком плазмы между исходными компонентами были простимулированы химические реакции, что косвенно подтверждается изменениями геометрических размеров и форм образцов и изменением цвета материала от серого до темно-угольного (рис. 3,  $\delta - c$ ). 158



- Рис. 3. Фотографии образца перед испытаниями (а) и после испытания (б). Микрофотографии фрагмента образца в разных масштабах после воздействия высокоэнтальпийным плазменным потоком (в, г)
- *Fig. 3.* Photographs of the sample before (*a*) and after (*b*) testing. Microphotographs of the sample fragment at different scale after high enthalpy plasma treatment (*c*, *d*)

Как видно из рис. 3,  $\delta$ , в результате прямого плазменного воздействия образовалась воронка, близкая к сферической форме, диаметром  $d \sim 30$  мм и глубиной  $h \sim 8$  мм. На микрофотографии фрагмента образца, подвергнутого плазменному воздействию (рис. 3 *в*, *г*), хорошо наблюдаются области разного цвета. Эти области образовались после прямого плазменного взаимодействия с образцом и передачи тепловой энергии в результате теплообмена от области, нагретой плазменным пучком. Пунктирной линией выделена пограничная область между зонами 1 и 3 на рис. 3, *г*.

Анализ области теплового воздействия на рис. 3, c выявил формирование трех областей, или зон. Зона 1 – область, которая была полностью прогрета плазменным потоком. Зона 2 – пограничная область между зонами, подвергшаяся прямому плазменному воздействию и непосредственно участвующая при теплообмене. Зона 3 – область, которая не подвергалась прямому плазменному воздействию, но непосредственно участвовала при тепловом нагреве.

На рис. 4 приведена дифрактограмма материала, полученного в результате воздействия высокоэнтальпийной плазмой.

Анализ дифрактограммы позволил установить, что материал является многофазным: содержит кристаллические фазы  $\beta$ -Si<sub>5</sub>AlON<sub>7</sub> с гексагональной сингонией (символ Пирсона *hP*14, пространственная группа *P*6<sub>3</sub>/*m*);  $\beta$ -Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> с тригональной сингонией (символ Пирсона *hP*28, пространственная группа *P*31*c*); AlN (символ Пирсона *hP*4, пространственная группа *P*6<sub>3</sub>/*mc*). Наличие

фаз  $\beta$ -Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> и AlN от исходных компонентов указывает на неполное протекание термохимической реакции между исходными компонентами в соответствии с уравнением

 $AIN + Si_3N_4 + (NH_2)_2 + 2Na_2SiO_3 \rightarrow Si_5AION_7 + 4NaOH + CO_2.$ (1)



Рис. 4. Экспериментальная дифрактограмма материала, полученного в результате воздействия высокоэнтальпийной плазмой (а). Штрих-диаграммы соединений из базы данных Match Crystal Impact:

 $\delta - AlN$ ;  $\epsilon - \beta$ -Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>;  $\epsilon - \beta$ -Si<sub>5</sub>AlON<sub>7</sub>

*Fig. 4.* XRD patterns of material after high enthalpy plasma treatment (*a*). Line diagram of powder pattern from the Match Crystal Impact database: b - AlN;  $c - \beta - Si_3N_4$ ;  $d - \beta - Si_5AlON_7$ 

На рис. 5 приведены результаты микроструктурных исследований материала, полученные методом сканирующей электронной микроскопии.

На основе анализа данных, полученных методом сканирующей электронной микроскопии, можно сделать вывод, что в зоне прямого контакта поверхности образца с плазменным потоком происходит образование частиц с блочной структурой (рис. 5, *a*). В пограничной (промежуточной) зоне (см. рис. 3, *c*) наблюдается волокнистая структура, состоящая из нитевидных кристаллов (рис. 5,  $\delta$ ). В материале из области, нагретой в результате передачи тепловой энергии от области, нагретой плазменным пучком, наблюдаются разные по морфологии и размерам сферические частицы (рис. 5, *в*).

Также было проведено исследование химического состава методом энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии в пограничной области (рис. 5,  $\delta$ ). На рис. 6 представлены результаты количественного анализа содержания элементов в этой области (рис. 5,  $\delta$ ).



*Рис. 5.* Микрофотографии с разных зон материала после воздействия плазменным потоком (см. рис. 3):

a – участок образца, облученный плазменным потоком (зона 1);  $\delta$  – переходная область (зона 2); s – участок образца, нагретого в результате передачи тепловой энергии от области, нагретой плазменным пучком (зона 3)

*Fig. 5.* SEM images of different sample fragments after plasma treatment (see Fig. 3): a – directly irradiated by the plasma; b – transition zone 2; c – thermal heating zone

provided by the heat transfer from the irradiated zone



*Рис. 6.* Результат энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии *Fig. 6.* EDX patterns

Согласно результатам энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии, основными элементами являются Al – 63,5 вес. %, Si –10,66 вес. %, O – 2,55 %, N – 22,44 вес. %. При этом наличие кислорода обусловлено процессами окисления исходных компонентов в результате предварительной подготовки образцов перед плазмохимическим синтезом. Обнаруженные следы углерода являются результатом термического разложения мочевины.

Был также исследован материал из первой зоны при помощи ИК-спектроскопии. На основе анализа ИК-спектров было установлено, что волновые числа основных пиков соответствуют значениям 1422,8 и 871,9 см<sup>-1</sup>. Анализ ИК-спектров свидетельствует о присутствии в образцах преимущественно нитридов, оксидов кремния, алюминия и их мотивов. Согласно результатам термогравиметрического исследования исходного образца до плазменного воздействия, на дериватограмме проявляется эндотермический пик в широком температурном интервале с минимумом при температуре 405,8 °C. Появление этого пика коррелирует с интенсивной потерей массы на кривой ТГ (рис. 7, *a*). Появление этого пика на кривой ДСК обусловлено разложением мочевины. Это находит подтверждение нашим данным по термодинамическому расчету, выполненному при помощи программы TERRA.



- Рис. 7. Дериватограммы образцов до плазменного воздействия (*a*) и после плазменного воздействия (*б*) при скорости нагрева 15 °С/мин
- Fig. 7. DSC/DTG curves of samples before (a) and after (b) plasma treatment at 15 °C/min velocity

Также было проведено термогравиметрическое исследование образца после плазменного воздействия (рис. 7,  $\delta$ ). На дериватограмме хорошо проявляется узкий эндотермический пик при температуре 582 °C, обусловленный полиморфным превращением оксида кремния. Известно, что при температуре около 573 °C и нормальном давлении наблюдается переход тригонального  $\alpha$ -кварца в гексагональный  $\beta$ -кварц [20].

Важно отметить, что с температуры 900 °С на кривой ТГ начинает происходить увеличение массы образца. Этот процесс, возможно, связан с реакциями взаимодействия, в том числе непрореагировавших компонентов материала с газообразным азотом, в среде которого проводились термогравиметрические исследования. Наличие непрореагировавших частиц подтверждается результатами рентгенофазового анализа (см. рис. 4).

Таким образом, на основе проведенных экспериментальных исследований установлено, что при взаимодействии высокоэнтальпийного потока термической плазмы с порошками нитридов кремния и алюминия происходит образование многофазного материала, основным компонентом которого является β-SiAlON состава Si<sub>5</sub>AlON<sub>7</sub>.

### Список источников

- 1. Ekström T., Nygren M. SiAlON ceramics // J. Am. Ceram.Soc. 1992. V. 75. P. 259–276.
- Genova L.A., IzhevskiyV.A., BressianiJ.C., AldingerF. Progess in SiAION Ceramics // Journal of the European Ceramic Society. 2000. V. 20. P. 2275–2295.
- 3. *Ganesh I.* Development of β-SiAlON based ceramics for radome applications // Processing and Application of Ceramics. 2011. V. 5. № 3. P. 113–138.
- Krevel J.W.H., Rutten J.W.T., Mandal H. et al. Luminescence Properties of Terbium, Cerium, or Europium-Doped α-Sialon Materials // Journal of Solid State Chemistry. 2002. V. 165. P. 19–24.
- 5. Sheppard C.M., MacKenzie K.J. D., Barris G.C. et.al. A new silicothermal route to the formation of X-phase sialon: the reaction sequence in the presence and absence of Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> // Journal of the European Ceramic Society. 1997. № 17. P. 667–673.
- Pettersson P., Shen Z., Johnsson M., Nygren M. // Journal of the European Ceramic Society. 2001. V. 21. P. 999–1005.
- Falak M.Z., Ahmed B.A., Saeed H.A., But, S.U., Hakeem A.S., Akbar U.A. Spark Plasma Sintering of SiAlON Ceramics Synthesized via Various Cations Charge Stabilizers and Their Effect on Thermal and Mechanical Characteristics // Crystals. 2021. V. 11. P. 1378–1393.
- Болгару К.А., Верещагин В.И., Регер А.А. Синтез композиционных материалов на основе сиалона методом СВС из смеси ферросиликоалюминия с маршалитом // Инновационные силикатные и тугоплавкие неметаллические материалы и изделия: свойства, строение, способы получения : сб. трудов Международной научно-технической конференции. Минск : БГТУ, 2020. С. 66–68.
- Hirosaki N., Kocer C., Ogata S., Tatsumi K. Ab initio characterization of the mechanical and electronic properties of β-Si<sub>5</sub>AlON<sub>7</sub> (Si<sub>6-z</sub>Al<sub>z</sub>O<sub>z</sub>M<sub>8-z</sub>, z = 0–5) // Physical Review. 2005. V. 71. P. 104–105.
- 10. Smirnov K.L., Grigoryev E.G. The regularity study of spark plasma sintering of β-sialon ceramics // Russian Internet Journal of Industrial Engineering. 2019. V. 7. № 3. P. 36–39.
- 11. Валяева М.Е., Кондратьева Л.А. Обзор методов получения сиалона // Современные материалы. Техника и технологии. 2021. № 4 (37). С. 10–16.
- Ahmed B.A., Laoui T., Hakeem A.S. Development of calcium stabilized nitrogen rich α-sialon ceramics along the Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>:1/2Ca<sub>3</sub>N<sub>2</sub>:3AlN line using spark plasma sintering // Journal of Advanced Ceramics. 2020. V. 9. P. 606–616.
- Nguyen T.P., Kakroudi M.G., Asl M.S., Ahmadi Z., Namini A.S., Delbari S.A., et.al. Influence of SiAION addition on the microstructure development of hot-pressed ZrB<sub>2</sub>–SiC composites // Ceramics International. 2020. V. 46. P. 19209–19216.
- Bezukhov K., Vlasov V., Klopotov A., Vereshchagin V., Golobokov N., et al. Features of obtaining SiAlON by the plasma-chemical method // AIP Conference Proceedings. 2022. V. 2509. P. 020–022.
- Власов В.А., Клопотов А.А., Безухов К.А., Голобоков Н.Н., Волокитин Г.Г., Шеховцов В.В., Власов Ю.А. Применение энергии низкотемпературной плазмы для синтеза керамического материала на основе SiAlON // Современные проблемы машиностроения: сб. трудов XIV Международной научно-технической конференции. Томск: ТПУ, 2021. С. 131–132.

#### Физико-химические и структурные исследования продукта порошковой смеси 163

- 16. Власов В.А., Волокитин Г.Г., Скрипникова Н.К., Волокитин О.Г. Плазменные технологии создания и обработки строительных материалов. Томск : НТЛ, 2018. 512 с.
- 17. Тихомиров И.А., Власов В.А., Луценко Ю.Ю. Физика и электрофизика высокочастотного факельного разряда и плазмотроны на его основе. Москва : Энергоатомиздат, 2002. 196 с.
- Шеховцов В.В., Скрипникова Н.К., Улмасов А.Б. Синтез алюмомагнезиальной керамики MgAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub> в среде термической плазмы // Вестник Томского государственного архитектурно-строительного университета. 2022. Т. 24. № 3. С. 138–146.
- Белов Г.В., Трусов Б.Г. Термодинамическое моделирование химически реагирующих систем. Москва : МГТУ имени Н.Э. Баумана, 2013. 96 с.
- Макаров В.Н. Описание структурных превращений в оксидах железа и алюмосиликатах, составляющих природные глинистые минералы, на основе энергетического подхода : диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук. Оренбург, 2021. 134 с.

#### REFERENCES

- 1. *Ekström T., Nygren M.* SiAlON ceramics. Journal of the American Ceramic Society. 1992; 25: 259–276.
- 2. Genova L.A., Izhevskiy V.A., Bressiani J.C., Aldinger F. Progess in SiAlON Ceramics. Journal of the European Ceramic Society. 2000; 20: 2275–2295.
- 3. *Ganesh I*. Development of β-SiAlON based ceramics for random applications. *Processing and Application of Ceramics*. 2011; 5 (3): 113.
- Krevel J.W.H., Rutten J.W.T., Mandal H. et al. Luminescence Properties of Terbium, Cerium, or Europium-Doped α-Sialon Materials. Journal of Solid State Chemistry. 2002; 165 (1): 19.
- Sheppard C.M., MacKenzie K.J.D., Barris G.C. et.al. A new silicothermal route to the formation of X-phase sialon: the reaction sequence in the presence and absence of Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Journal of the European Ceramic Society. 1997; 17 (1): 667–673.
- 6. Pettersson P., Shen Z., Johnsson M., Nygren M. Journal of the European Ceramic Society. 2001; 21: 999–1005.
- Falak M.Z., Ahmed B.A., Saeed H.A., Butt S.U., Hakeem A.S., Akbar U.A. Spark plasma sintering of SiAION ceramics synthesized via various cations charge stabilizers and their effect on thermal and mechanical characteristics. Crystals. 2021; 11: 1378–1393.
- 8. Bolgaru K.A., Vereshchagin V.I., Reger A.A. Synthesis of sialon-based composite materials using SHS from a mixture of aluminum ferrosilicon with marshallit. In: Proc. Int. Sci. Conf. 'Innovative Silicate and Refractory Nonmetallic Materials and Products: Properties, Structure, Methods of Production'. Minsk, 2020. Pp. 66–68. (In Russian)
- Hirosaki N., Kocer C., Ogata S., Tatsumi K. Ab initio characterization of the mechanical and electronic properties of β-Si<sub>5</sub>AlON<sub>7</sub> (Si<sub>6-z</sub> Al<sub>z</sub>O<sub>z</sub>M<sub>8-z</sub>, z = 0–5). Physical Review. 2005; 71: 104105.
- Smirnov K.L., Grigoryev E.G. The regularity study of spark plasma sintering of β-sialon ceramics. Russian Internet Journal of Industrial Engineering. 2019; 7 (3): 36–39.
- 11. Valyayeva M.E., Kondratyeva L.A. Sialon production methods. Sovremennyye materialy. *Tekhnika i tekhnologii*. 2021; 37 (4): 10–16. (In Russian).
- Ahmed B.A., Laoui T., Hakeem A.S. Development of calcium stabilized nitrogen rich α-sialon ceramics along the Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>:1/2Ca<sub>3</sub>N<sub>2</sub>:3AlN line using spark plasma sintering. Journal of Advanced Ceramics. 2020; 9: 606–616.
- 13. Nguyen T.P., Kakroudi M.G., Asl M.S., Ahmadi Z., Namini A.S., Delbari S.A., et al. Influence of SiAION addition on the microstructure development of hot-pressed ZrB<sub>2</sub>–SiC composites. *Ceramics International*. 2020; 46: 19209–19216.
- 14. Bezukhov K., Vlasov V., Klopotov A., Vereshchagin V., Golobokov N., et al. Features of obtaining SiAlON by the plasma-chemical method. *AIP Conference Proceedings*. 2022; 2509: 020022.
- Vlasov V.A., Klopotov A.A., Bezukhov K.A., Golobokov N.N., Volokitin G.G., Shekhovtsov V.V., Vlasov Yu.A. Low-Temperature plasma energy for synthesis of SiAlON-based ceramic materials. In: Proc. 24th Int. Sci. Conf. 'Modern Problems of Engineering', Tomsk: TPU, 2021. Pp. 131–132. (In Russian).

- Vlasov V.A., Volokitin G.G., Skripnikova N.K., Volokitin O.G. Plasma technologies of building materials. Tomsk: NTL, 2018. 512 p. (In Russian).
- 17. *Tkhomirov I.A., Vlasov V.A., Lutsenko Yu.Yu.* Physics and electrophysics of high-frequency plasma torch discharge. Moscow: Energoatomizdat, 2002. 196 p. (In Russian).
- Shekhovtsov V.V., Skripnikova N.K., Ulmasov A.B. Synthesis of aluminum-magnesian ceramics MgAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub> in thermal plasma environment. Vestnik Tomskogo gosudarstvennogo arkhitekturno-stroitel'nogo universiteta Journal of Construction and Architecture. 2022; 24 (3): 138–146. (In Russian).
- 19. *Belov G.V., Trusov B.G.* Thermodynamic modeling of chemically reacting systems. Moscow, 2013. 96 p. (In Russian).
- 20. *Makarov V.N.* Energy approach to structural transformations in iron oxides and aluminosilicates composing natural clay minerals. PhD Thesis. Orenburg, 2021. 134 p. (In Russian).

#### Сведения об авторах

Власов Виктор Алексеевич, докт. физ.-мат. наук, профессор, Томский государственный архитектурно-строительный университет, 634003, г. Томск, пл. Соляная, 2, rector@tsuab.ru

Клопотов Анатолий Анатольевич, докт. физ.-мат. наук, профессор, Томский государственный архитектурно-строительный университет, 634003, г. Томск, пл. Соляная, 2, klopotovaa@tsuab.ru

Безухов Константин Александрович, аспирант, Томский государственный архитектурно-строительный университет, 634003, г. Томск, пл. Соляная, 2, bezuhov\_k@mail.ru

Волокитин Геннадий Георгиевич, докт. техн. наук, профессор, Томский государственный архитектурно-строительный университет, 634003, г. Томск, пл. Соляная, 2, vgg-tomsk@mail.ru

Саркисов Юрий Сергеевич, докт. техн. наук, профессор, Томский государственный архитектурно-строительный университет, 634003, г. Томск, пл. Соляная, 2, sarkisov@tsuab.ru

Горленко Николай Петрович, докт. техн. наук, профессор, Томский государственный архитектурно-строительный университет, 634003, г. Томск, пл. Соляная, 2, gorlen52@mail.ru

Николаев Евгений Владимирович, канд. техн. наук, научный сотрудник, Национальный исследовательский Томский политехнический университет, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30, nikolaev0712@tpu.ru

Голобоков Николай Николаевич, ведущий электроник лаборатории гетерогенных металлических систем, Томский филиал Института структурной макрокинетики СО РАН, 630050, г. Томск, пл. Ленина, 8, nngolobokov@mail.ru

#### **Authors Details**

*Viktor A. Vlasov*, DSc, Professor, Tomsk State University of Architecture and Building, 2, Solyanaya Sq., 634003, Tomsk, Russia, rector@tsuab.ru

Anatoly A. Klopotov, DSc, Professor, Tomsk State University of Architecture and Building, 2, Solyanaya Sq., 634003, Tomsk, Russia, klopotovaa@tsuab.ru

Konstantin A. Bezukhov, Research Assistant, Tomsk State University of Architecture and Building, 2, Solyanaya Sq., 634003, Tomsk, Russia, bezuhov\_k@mail.ru

Gennady G. Volokitin, DSc, Professor, Tomsk State University of Architecture and Building, 2, Solyanaya Sq., 634003, Tomsk, Russia, vgg-tomsk@mail.ru

*Yury S. Sarkisov*, DSc, Professor, Tomsk State University of Architecture and Building, 2, Solyanaya Sq., 634003, Tomsk, Russia, sarkisov@tsuab.ru

### Физико-химические и структурные исследования продукта порошковой смеси 165

*Nikolai P. Gorlenko*, DSc, Professor, Tomsk State University of Architecture and Building, 2, Solyanaya Sq., 634003, Tomsk, Russia, gorlen52@mail.ru

Evgeny V. Nikolaev, PhD, Research Engineer, National Research Tomsk Polytechnic University, 30, Lenin Ave., nikolaev0712@tpu.ru

*Nikolai N. Golobokov*, Leading Electronic Engineer, Tomsk Branch of Structural Macrokinetics Institute RAS, Lenin Sq., 630050, Tomsk, Russia, nngolobokov@mail.ru

Статья поступила в редакцию 27.12.2022 Одобрена после рецензирования 13.01.2023 Принята к публикации 23.01.2023 Submitted for publication 27.12.2022 Approved after review 13.01.2023 Accepted for publication 23.01.2023