

· 论 著 ·

基体烧结温度对氧化铝-氧化锆纳米复合渗透陶瓷力学性能的影响

张晓南¹, 辜向东^{1△}, 吴 恙¹, 鲜苏琴², 何 陨¹

(1. 重庆医科大学附属口腔医院修复科 400015; 2. 四川大学华西口腔医学院, 成都 610041)

摘要:目的 研究不同基体烧结温度对氧化铝-氧化锆纳米复合渗透陶瓷力学性能的影响。方法 采用不同的基体烧结温度制备氧化铝-氧化锆纳米复合渗透陶瓷, 测试其抗弯强度和断裂韧性; 扫描电镜观察其显微结构。结果 基体烧结温度采用 1 250、1 300、1 350 °C 所得复合渗透陶瓷的 3 点弯曲强度和断裂韧性测试结果差异无统计学意义。结论 在不同基体烧结温度下, 氧化铝-氧化锆纳米复合渗透陶瓷都表现出良好的力学性能。

关键词: 纳米复合陶瓷; 烧结温度; 氧化锆相变增韧

中图分类号: R783.3

文献标识码: A

文章编号: 1671-8348(2010)10-1212-02

Effect of different matrix sintering temperature on mechanical properties of alumina-zirconia nano-composite infiltrated ceramic

ZHANG Xiao-nan¹, GU Xiang-dong^{1△}, WU Yang¹, et al.

(1. Department of Prosthodontics, Affiliated Hospital of Stomatology, Chongqing Medical University, Chongqing 400015, China; 2. Huaxi Stomatologic Hospital, Sichuan University, Chengdu, Sichuan 610041, China)

Abstract: Objective To give a basic understanding of the influence of different matrix sintering temperature to the mechanical properties of alumina-zirconia nano-composite infiltrated ceramic. **Methods** To process the alumina-zirconia nano-composite infiltrated ceramic by 1 250, 1 300 and 1 350 matrix sintering temperature. The consequent data were analyzed with one way ANOVA. **Results** The mechanics test results of the composite infiltrated ceramic sintered by 1 250, 1 300 and 1 350 matrix sintering temperature had no statistical differences. **Conclusion** The test result shows this kind of material has good mechanical property.

Key words: nano-composite infiltrated ceramic; sintering temperature; zirconia transformation

陶瓷材料是最自然逼真的牙体组织人工替代材料^[1], 但是陶瓷所固有的脆性限制其应用范围及使用可靠性^[2]。氧化铝-氧化锆纳米复合渗透陶瓷是利用的氧化锆的相变增韧机制和纳米级颗粒的增强增韧机制, 依照渗透陶瓷技术研制的一种新型高强度全瓷材料, 其 3 点弯曲强度测试的平均值高达 (610.85 ± 37.07) MPa, 显示了良好的机械性能^[3]。氧化铝-氧化锆纳米复合渗透陶瓷是一种具有良好适合性的全瓷修复体系^[4]。陶瓷烧结温度是决定陶瓷强度的重要因素, 寻找合适的烧结温度是陶瓷制作技术中关键之一。本研究旨在比较不同基体烧结温度对氧化铝-氧化锆纳米复合渗透陶瓷机械性能的影响程度。

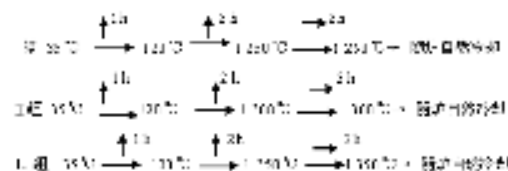
1 材料与方 法

1.1 材料 Al₂O₃, 纳米 ZrO₂ 超细粉体, 渗透用镧-硅-硼系玻璃粉(口腔疾病研究国家重点实验室研制); ZrOCl₂ · 8H₂O(广东宁田实业有限公司出品); Y₂O₃(沈阳陶瓷厂出品); CeO₂(北京化学冶金研究所研制)。

1.2 方 法

1.2.1 氧化铝-氧化锆纳米复合渗透陶瓷的制备 采用 Y₂O₃ (3 mol%) 和 CeO₂ (5 mol%) 对纳米氧化锆进行稳定化处理, 再用注浆成型法将制得的粉浆立即浇注入内腔尺寸为 25 mm × 7 mm × 4 mm 的模具中, 静置过夜, 待生坯充分干燥后脱模。生坯脱模 24 h 后, 各材料样本随机分为 I、II、III 3 组, 每组 10 个样本。置于高温电炉中, 分别采用 1 250、1 300、1 350 °C 的基体烧结温度进行预烧处理。3 组样本的烧结程序分

别为:



将以上制备的 I、II、III 3 组共 30 个基体样本, 用镧-硅-硼系玻璃粉进行高温渗透, 1 200 °C 保温 4 h, 使熔融的玻璃充分渗透入基体, 随炉冷却制得氧化铝-氧化锆纳米复合渗透陶瓷。

1.2.2 氧化铝-氧化锆纳米复合渗透陶瓷的力学性能测试

1.2.2.1 抗弯强度测定 分别采用 1 250、1 300、1 350 °C 进行预烧处理后渗透所得并加工为标准试件的氧化铝-氧化锆纳米复合渗透陶瓷试件各 5 件, 在岛津 AG-10TA 型电子万能力学试验机上采用 3 点弯曲法测定渗透陶瓷试件的 3 点弯曲强度 σ_{3p} , 试件测试跨距为 20 mm, 压头直径为 4 mm, 压力传感器的量程为 400 N, 加载速度为 0.5 mm/min, 测试环境温度为 23 °C, 相对湿度为 47%。

1.2.2.2 断裂韧性测定 分别采用 1 250、1 300 °C 及 1 350 °C 进行预烧处理后渗透所得并加工为标准试件的氧化铝-氧化锆纳米复合渗透陶瓷试件各 4 件, 在岛津 AG-10TA 型电子万能力学试验机上借助 3 点弯曲法测定渗透陶瓷试件的断裂韧性 KIC, 支点间距为 16 mm, 压头直径为 4 mm, 压力传感器的量程为 100~1 000 kg, 加载速度为 0.5 mm/min, 测试环境温

△ 通讯作者, 电话: (023)89035721; E-mail: gxd8003_cn@163.com。

度为 23 ℃,相对湿度为 47%。

1.2.3 扫描电镜观察 样本的横断面进行表面喷金,采用中科院科仪公司 KyKy-2800 电子扫描显微镜观察其显微结构。

1.3 统计学方法 采用 SPSS10.0 统计软件对测试结果进行单因素方差分析和 *q* 检验。

2 结 果

2.1 3 点弯曲强度 采用 SPSS10.0 软件包对以上 3 组试件的抗弯强度测试结果进行单因素方差分析(ANOVA),比较 3 个均数;进行 *q* 检验对 3 个均数分别作两两比较。I、II、III 组的抗弯强度测试结果比较差异无统计学意义($P>0.05$),各组两两间抗弯强度测定结果比较差异也无统计学意义($P>0.05$),见表 1。

表 1 3 点弯曲强度测定值

组别	温度(℃)	$\bar{x} \pm s$ (MPa)
I	1 250	585.50 ± 32.38
II	1 300	590.43 ± 30.83
III	1 350	603.28 ± 22.08

2.2 断裂韧性 采用 SPSS10.0 软件包对以上 3 组试件的断裂韧性测试结果进行单因素方差分析(ANOVA),比较 3 个均数;进行 *q* 检验对 3 个均数分别作两两比较。基体烧成温度分别为 1 250、1 300、1 350 ℃的复合渗透陶瓷断裂韧性测试结果比较差异无统计学意义($P>0.05$),各组两两间断裂韧性测定结果差异也无统计学意义($P>0.05$),见表 2。

表 2 断裂韧性测定值(MPa · m^{0.5})

温度(℃)	$\bar{x} \pm s$
1 250	6.370 ± 0.931
1 300	6.482 ± 0.993
1 350	7.354 ± 1.200

2.3 扫描电镜观察 可见氧化铝-氧化锆纳米复合渗透陶瓷与氧化铝玻璃渗透陶瓷相似,氧化铝颗粒相互熔接作为骨架,颗粒之间的孔隙被渗透玻璃充盈和占据,二者相互锁结形成典型的连续相互渗透复合结构,其内可见到多数较深的晶粒拔出陷窝。

3 讨 论

本课题的研究对象是氧化铝-氧化锆纳米复合渗透陶瓷,它是依据现代复相陶瓷的设计思想,从组分和结构上协同设计的一种具有多种增强、增韧机制的多元复合全瓷材料体系。这种陶瓷属于玻璃渗透陶瓷体系,其不同于一般的渗透陶瓷之处在于它的粉体中引入了纳米级氧化锆颗粒,产生了新的增强、增韧途径,获得了超强、超韧的优良性能。

烧结温度与升温速度、保温时间及冷却制度同样都是陶瓷烧成制度的重要环节。在烧结过程中陶瓷粉末颗粒相互靠近桥接,能够形成具有一定强度的多孔烧结体。在此基础上进行玻璃渗透,得到复合渗透陶瓷。本研究有针对性地选择了烧结体性能影响最大的烧结温度作为考察因素,确定 1 250、1 300、1 350 ℃这 3 个温度点为实验温度。

基体烧结温度采用 1 250、1 300、1 350 ℃所得复合渗透陶瓷的 3 点弯曲强度测定平均值分别达到了(585.50 ± 32.38)

MPa、(590.43 ± 30.83)MPa 和(603.28 ± 22.08)MPa,而其断裂韧性测定的平均值也分别达到了(6.370 ± 0.931)、(6.482 ± 0.993)、(7.354 ± 1.200)MPa · m^{0.5}。根据 John Mclean 的观点,为了满足制备全瓷冠/桥的要求,陶瓷材料必须达到 300 MPa 以上的挠曲强度^[5]。本实验的性能测试结果表明该材料具有十分良好的力学性能。

从统计学角度来看,以上力学测试结果差异并无统计学意义,但从其具体数值来看,随着基体烧结温度的升高,该材料力学性能有提高的趋势。结合本研究的力学性能测试结果和显微结构观察结果对该材料增强、增韧机制进行以下探讨:(1)相互渗透复合结构的作用。氧化铝-氧化锆纳米复合渗透陶瓷是采用渗透陶瓷技术制备的陶瓷材料,它具有相互渗透复合结构,故也体现了渗透陶瓷技术的增强、增韧机制^[6]。(2)氧化锆的作用。ZrO₂ 共有 3 种晶型,即单斜相、四方相和立方相。它的 3 种晶型之间有如下转化关系,即单斜相 ZrO₂ 四方相 ZrO₂ 立方相 ZrO₂。加热时,单斜相转变为四方相,体积收缩;冷却时,四方相转变为单斜相,体积膨胀。四方相和单斜相之间的晶型转变伴随的体积变化为 7%~9%。氧化锆增韧就是通过四方相转变成单斜相伴随着的体积膨胀来实现的^[7]。(3)纳米级颗粒的作用。颗粒弥散增强、增韧机制是陶瓷材料增强、增韧的一条重要途径^[8]。

总之,在本试验的基体烧结温度下,氧化铝-氧化锆纳米复合渗透陶瓷表现出良好的力学性能。因力学测试结果差异无统计学意义,故要确定最适合的基体烧结温度,还需进行有关该材料的收缩率、堆积密度、X 射线衍射分析等实验研究。

参考文献:

[1] Griggs JA. Recent advances in materials for all-ceramic restorations[J]. Dent Clin North Am,2007,51(3):713.
 [2] 王焕英,王燕,张萍,等. 纳米医用生物陶瓷的制备研究进展[J]. 硅酸盐通报,2008,27(6):1190.
 [3] 陈永平,岑远坤,廖运茂. 氧化铝-氧化锆纳米渗透陶瓷力学性能与微观结构的研究[J]. 华西口腔医学杂志,2003,21(3):238.
 [4] 辜向东,张晓南,鲜苏琴,等. 氧化铝-氧化锆纳米复合渗透陶瓷低温补偿代型材料适合性研究[J]. 重庆医学,2009,38(23):2948.
 [5] Conrad HJ,Seong WJ,Pesun IJ. Current ceramic materials and systems with clinical recommendations;a systematic review[J]. J Prosthet Dent,2007,98:389.
 [6] Tian JM,Zhang YL,Zhang SX, et al. Mechanical properties and microstructure of alumina-glass composites[J]. J Am Ceram Soc,1999,82(6):1592.
 [7] Gonzaga CC, Yoshimura HN,Cesar PF, et al. Subcritical crack growth in porcelains,glass-ceramics,and glass-infiltrated alumina composite for dental restorations[J]. J Mat Sci,2009,20(5):1017.
 [8] Richard HJH. Transformation toughening in Zirconia-containing ceramics[J]. J Am Ceram Soc,2000,83(3):461.

(收稿日期:2009-12-25)