

## Самораспространяющийся высокотемпературный синтез композиции $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiC}$ с использованием азида натрия

Ю.В. Титова\*, Г.С. Белова, А.Ф. Якубова

Самарский государственный технический университет, Самара, Россия

\*titova600@mail.ru

**Аннотация.** Приведены основные свойства композиции  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiC}$ , которые показывают важность применения нитридно-карбидных композиционных материалов в различных отраслях промышленности. Применен in-situ процесс получения композиционной керамики путем проведения химического синтеза нитридных и карбидных наночастиц в объеме композита, так как известно, что полученные заранее очень мелкие частицы различных фаз не могут быть равномерно распределены в объеме композита путем механического смешивания порошков (ex-situ процесс). Представлены собственные результаты исследования возможности получения композиции  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiC}$  методом азидного СВС при сжигании смесей порошков Ti, C, азид натрия  $\text{NaN}_3$  и галоидной соли  $(\text{NH}_4)_2\text{SiF}_6$  с использованием термодинамического расчета и экспериментального исследования температур и состава продуктов горения. Результаты термодинамических расчетов этих реакций показали, что адиабатические температуры достаточно высоки для реализации самоподдерживающегося режима горения. При экспериментальном исследовании определялись температуры и скорости горения, структура и фазовый состав продуктов горения. Таким образом, рассмотренное применение метода азидного СВС позволило получить высокодисперсные композиции керамических порошков  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiC}$  и  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiN-TiC}$  с размером частиц от 100 до 500 нм. Исходя из результатов термодинамических расчетов и рентгенофазового анализа промежуточных и конечных продуктов горения, с учетом рассмотрения изобарно-изотермических потенциалов возможных химических реакций, составлена химическая стадийность образования исследуемых керамических композиций в процессе горения и остывания продуктов горения, объясняющая различие результатов термодинамических расчетов и экспериментального исследования.

**Ключевые слова:** горение, синтез, азид натрия, гексафторсиликат аммония, нитрид кремния, карбид титана, порошковая композиция.

### 1. Введение

Нитрид кремния является современным керамическим материалом с превосходными механическими свойствами как при комнатной, так и при повышенных температурах и волокнистой микроструктурой, который перспективен для использования в качестве упрочняющей фазы [1]. Достаточная вязкость разрушения, высокая твердость и хорошая износостойкость являются важными характеристиками современной керамики, которая находит применение в режущих инструментах и автомобильных компонентах, таких как кулачковые ролики и шарикоподшипники дизельных двигателей [2].

Было предпринято много усилий для улучшения механических свойств  $\text{Si}_3\text{N}_4$  путем управления микроструктурой или создания различных типов композитов. Когда в процессе уплотнения образуются крупные волокна  $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$  вязкость разрушения значительно увеличивается, поскольку трещина взаимодействует с этими волокнами, при этом прочность имеет тенденцию к снижению за счет образования микротрещин вокруг крупных зерен [3]. Подобные улучшения наблюдаются и при добавлении вторичной фазы к матрице  $\text{Si}_3\text{N}_4$ . Частицы TiC в матрице  $\text{Si}_3\text{N}_4$  используются для повышения вязкости разрушения композиционных материалов. Эффект изменения траектории трещины усиливался при одновременном присутствии частиц TiC и волокон  $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ . Кроме того, спекание под давлением позволяет уменьшить размер зерна. В работе [4] показано, что добавление проводящих соединений, таких как (TiN, TiC,  $\text{TiB}_2$ ) в матрицу  $\text{Si}_3\text{N}_4$ , увеличивает проводимость материала и улучшает его обрабатываемость.

Добавление частиц карбида титана к нитриду кремния способствует повышению твердости и вязкости разрушения (твердость композитов  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-5\%TiC}$  составляет 17 Гпа, вязкость разрушения  $6.5 \text{ Мпа}\cdot\text{м}^{1/2}$ ), благодаря более высокой твердости TiC по сравнению с  $\text{Si}_3\text{N}_4$  и напряжениям, возникающим вследствие различия коэффициентов термического расширения, приводящим к искривлению трещин, создаваемому внутренними напряжениями [5]. Такие композиты используются для производства режущих инструментов и износостойких деталей, а также керамики с улучшенными теплопроводностью и электропроводностью [6].

Для композиционного материала ( $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-20\%TiC}_{0.5}\text{N}_{0.5}$ ) полученного методом горячего прессования, прочность на изгиб, вязкость разрушения и твердость по Виккерсу составляют 838 Мпа,  $8.5 \text{ Мпа}\cdot\text{м}^{1/2}$  и 15.6 Гпа, соответственно. На поверхностях трещин композита наблюдается смесь межкристаллитного и трансзеренного разрушения [5]. Вязкость разрушения композита  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-15\%TiC-1\%графен}$ , полученного горячим прессованием со спеканием, составляет  $9.69 \text{ Мпа}\cdot\text{м}^{1/2}$  [7].

В работе [8] исследовано влияние микрочастиц TiC (0–5 масс.%) на механические свойства матричных  $\text{Si}_3\text{N}_4$  композитов, полученных методом порошковой металлургии и спеканием под давлением. Результаты показали, что самая высокая относительная плотность (98.0%) и вязкость разрушения ( $K_{IC} = 8.4 \text{ Мпа}\cdot\text{м}^{1/2}$ ) наблюдаются у композита, содержащего 5 мас.% TiC. С увеличением содержания TiC, добавленного к матрице  $\text{Si}_3\text{N}_4$ , волокна нитрида кремния росли медленно, а размеры композитов уменьшались.

Нанокompозит  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiC}$ , состоящий из сферических частиц размером менее 100 нм, был получен методом горячего спекания [9]. Исследование усталостного разрушения при тепловом ударе и деформации показало, что теплостойкость и остаточная прочность композита выше, чем у нитридокремниевой керамики. Оптимальное содержание TiC составляет 10 масс. %. Характер разрушения композита изменяется от межзеренного к трансзеренному с увеличением содержания TiC.

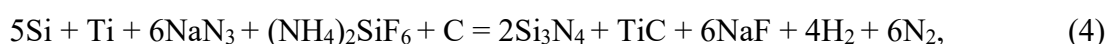
Керамические нанокompозиты вызывают растущий интерес, благодаря новым технологиям обработки, позволяющим переводить эти материалы от лабораторной работы к производственному уровню. Знание того, как наноразмерная структура влияет на объемные свойства, позволяет создавать все более сложные композиционные материалы.

Известные подходы к изготовлению композитов  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiC}$  имеют некоторые недостатки, такие как сложность, высокая стоимость и низкая производительность, что затрудняет организацию крупномасштабного производства.

На основании вышеизложенного, целью настоящей работы было проведение исследования, с применением количественного рентгенофазового анализа, эффективности использования активирующей добавки галоидной соли  $(\text{NH}_4)_2\text{SiF}_6$  для получения методом азидного СВС высокодисперсной композиции порошков  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiC}$  с различным соотношением этих фаз.

## 2. Материалы и методы исследования

Для синтеза композиции  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiC}$  с мольным соотношением целевых фаз от 1:4 до 4:1 использовались уравнения:





Для экспериментального исследования в качестве исходного сырья использовались: порошок кремния марки Кр0 (содержание основного вещества  $\geq 98.8$  масс.%, средний размер частиц 5 мкм), порошок гексафторсиликата аммония классификация «Ч» ( $\geq 99.1\%$ , 30 мкм), порошок азиды натрия классификации «Ч» ( $\geq 98.71$  масс.%, 100 мкм), сажа марки П701 ( $\geq 88.0$  масс.%, 70 нм в агломератах 1 мкм), порошок титана марки ПТОМ-1 (98.0 мас.%, 30 мкм). Смесь просушенных исходных порошков, взятых в заданном соотношении, готовили вручную в фарфоровой ступке в течение 5–10 минут до равномерного распределения компонентов. Подготовленную смесь порошков (шихту) засыпали в кальковый стаканчик диаметром 30 мм и высотой 45 мм, помещали в фильтрующую сборку из углеткани и вставляли две вольфрам-рениевые термопары. Относительная плотность порошковой смеси составляла 0.4. Собранную конструкцию устанавливали на предметную полочку лабораторного реактора СВС-Аз постоянного давления с рабочим объемом 4.5 литра [10]. В реакторе создавалось давление газообразного азота 4 МПа и электрической вольфрамовой спиралью накаливания инициировалось горение. С помощью термопар (термопарная проволока типа ВР5-20) измерялись температуры горения и рассчитывалась скорость горения. С помощью манометра (МП4-У, 1.5 кгс/см<sup>2</sup>) определялось изменение давления в реакторе в ходе процесса горения.

После синтеза образец извлекался из реактора и разрушался вручную до сыпучего порошкообразного состояния в фарфоровой ступке. Затем проводилась операция промывки порошкообразного продукта горения от остатка побочного продукта – фторида натрия. Промывка заключалась в разбавлении порошка дистиллированной водой в соотношении 1:10, взмучивании полученной суспензии и последующей фильтрации на вакуум-воронке. Промывка контролировалась замером кислотности-щелочности промывочной воды (рН).

Исследовались элементный и фазовый составы, морфология и размер частиц продуктов горения. Фазовый состав синтезированных продуктов определялся на порошковом рентгеновском дифрактометре ARL E'tra-138 (Thermo Fisher Scientific, Швейцария). Съемка рентгеновских спектров проводилась с помощью Си-излучения. Количественный фазовый анализ производился методом полнопрофильного анализа (метод Ритвельда) при помощи программы PDXL 1.8.1.0 с использованием открытой кристаллографической базы данных (COD). Исследование топографии поверхности и морфологии частиц синтезированных композиций, а также энергодисперсионный анализ элементного состава проводились на растровом электронном микроскопе JSM-6390A (Jeol, Япония) с приставкой Jeol JED-2200.

### 3. Результаты и обсуждение

Представлены результаты исследования зависимости параметров горения системы  $y\text{Si} + x\text{Ti} + 6\text{NaN}_3 + (\text{NH}_4)_2\text{SiF}_6 + x\text{C}$  от соотношения исходных компонентов.

Результаты термодинамических расчетов реакций (1)–(5) по программе THERMO представлены в Таблице 1.

Из представленных данных видно, что все реакции обладают высокими адиабатическими температурами, достаточными для реализации процесса СВС в режиме горения. С увеличением содержания титана и углерода в исходной смеси адиабатическая температура изменяется незначительно. Продукты реакций содержат целевые фазы нитрида кремния  $\text{Si}_3\text{N}_4$  и карбида титана  $\text{TiC}$ . Количество нитрида кремния и карбида титана, соответствует полному превращению реагентов согласно стехиометрическим уравнениям (1)–(5) с мольным соотношением фаз от 1:4 до 4:1.

Таблица 1. Результаты термодинамического анализа реакций (1)–(5).

Состав исходной смеси порошков в реакциях (1)–(5)	Энтальпия реакции, кДж	Адиабатическая температура, °С	Количество, моль					
			Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub> ТВ	TiC ТВ	NaF ж	NaF г	H <sub>2</sub> г	N <sub>2</sub> г
2Si+ Ti+6NaN <sub>3</sub> +(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> SiF <sub>6</sub> +C	-1854	1705	1.00	1.00	5.85	0.15	3.99	8.00
2Si+ 2Ti+6NaN <sub>3</sub> +(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> SiF <sub>6</sub> +2C	-2063	1776	1.00	2.00	5.76	0.24	3.99	8.00
2Si+ 4Ti+6NaN <sub>3</sub> +(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> SiF <sub>6</sub> +4C	-2481	1890	1.00	4.00	5.55	0.45	3.99	8.00
5Si+ Ti+6NaN <sub>3</sub> +(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> SiF <sub>6</sub> +C	-2604	2090	2.00	1.00	4.99	1.01	3.99	6.00
11Si+ Ti+6NaN <sub>3</sub> +(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> SiF <sub>6</sub> +C	-4104	2484	3.94	1.00	2.49	3.51	3.97	2.12

При экспериментальном исследовании определялись температуры и скорости горения, структура и фазовый состав продуктов горения.

Результаты исследования процесса горения в системе  $y\text{Si} + x\text{Ti} + 6\text{NaN}_3 + (\text{NH}_4)_2\text{SiF}_6 + x\text{C}$  показывают, что с увеличением содержания углерода и титана параметры горения уравнений (1)–(5) увеличиваются, что согласуется с результатами термодинамических расчетов. При  $x = 1$  моль температура горения составляет 1855 °С, скорость горения – 0.64 см/с. При увеличении содержания Ti в два раза по сравнению с исходной смесью (1),  $x = 2$  моль температура горения повышается незначительно и составляет 1870 °С, скорость горения – 0.68 см/с. При дальнейшем увеличении содержания Ti в четыре раза по сравнению с исходной смесью,  $x = 4$  моль температура горения составляет 1925 °С, скорость горения – 0.78 см/с. Максимальная температура достигается при увеличении содержания кремния, где  $y = 11$  моль и составляет 1987 °С, при этом скорость горения составляет 0.83 см/с.

Далее представлены результаты исследования микроструктуры продуктов горения системы  $y\text{Si} + x\text{Ti} + 6\text{NaN}_3 + (\text{NH}_4)_2\text{SiF}_6 + x\text{C}$ .

Результаты исследования морфологии и размера частиц порошка синтезированного продукта представлены на Рис. 1.

Установлено, что продукты горения шихты  $2\text{Si} + \text{Ti} + 6\text{NaN}_3 + (\text{NH}_4)_2\text{SiF}_6 + \text{C}$  состоят из высокодисперсных частиц равноосной формы, представляющих собой смесь наноразмерных (менее 100 нм) и субмикронных (от 100 до 500 нм) частиц карбида и нитрида титана и волокон нитрида кремния диаметром от 70–200 нм и длиной до 3 мкм. Согласно результатам РФА образуется преимущественно нитрид кремния  $\alpha$ -модификации, а также нитрид и карбид титана и свободный кремний:  $\alpha$ -Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> – 65.5 %,  $\beta$ -Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> – 25.0 %, TiC – 2.7 %, TiN – 5.0 %, Si – 1.8 %.

При увеличении содержания титана и углерода до 2 молей – шихта  $2\text{Si} + 2\text{Ti} + 6\text{NaN}_3 + (\text{NH}_4)_2\text{SiF}_6 + 2\text{C}$ , продукты аналогичны продуктам горения смеси  $2\text{Si} + \text{Ti} + 6\text{NaN}_3 + (\text{NH}_4)_2\text{SiF}_6 + \text{C}$  и представляют собой высокодисперсные частицы равноосной формы, карбида и нитрида титана до 500 нм и волокна нитрида кремния диаметром от 50–200 нм и длиной до 3 мкм. Состоят из пяти фаз: нитрида титана (TiN), карбида титана (TiC), нитрида кремния двух модификаций ( $\alpha$ -Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> и  $\beta$ -Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>): TiN – 9.3 %, TiC – 5.1 %,  $\alpha$ -Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> – 60.8 %,  $\beta$ -Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> – 24.0 % и 0.7 % свободного кремния.

При увеличении содержания углерода и титана в четыре раза шихта  $2\text{Si} + 4\text{Ti} + 6\text{NaN}_3 + (\text{NH}_4)_2\text{SiF}_6 + 4\text{C}$ , продукты отличаются от продуктов горения смеси  $2\text{Si} + \text{Ti} + 6\text{NaN}_3 + (\text{NH}_4)_2\text{SiF}_6 + \text{C}$ , они представляют собой частицы равноосной формы, но

более крупного размера до 500 нм и волокна диаметром от 80–200 нм, длиной до 3 мкм. Результаты РФА показывают образование тех же фаз, но с увеличением содержания карбида и нитрида титана: TiN – 16.1%, TiC – 8.9%,  $\alpha$ -Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> – 53.2%,  $\beta$ -Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> – 21.1%.

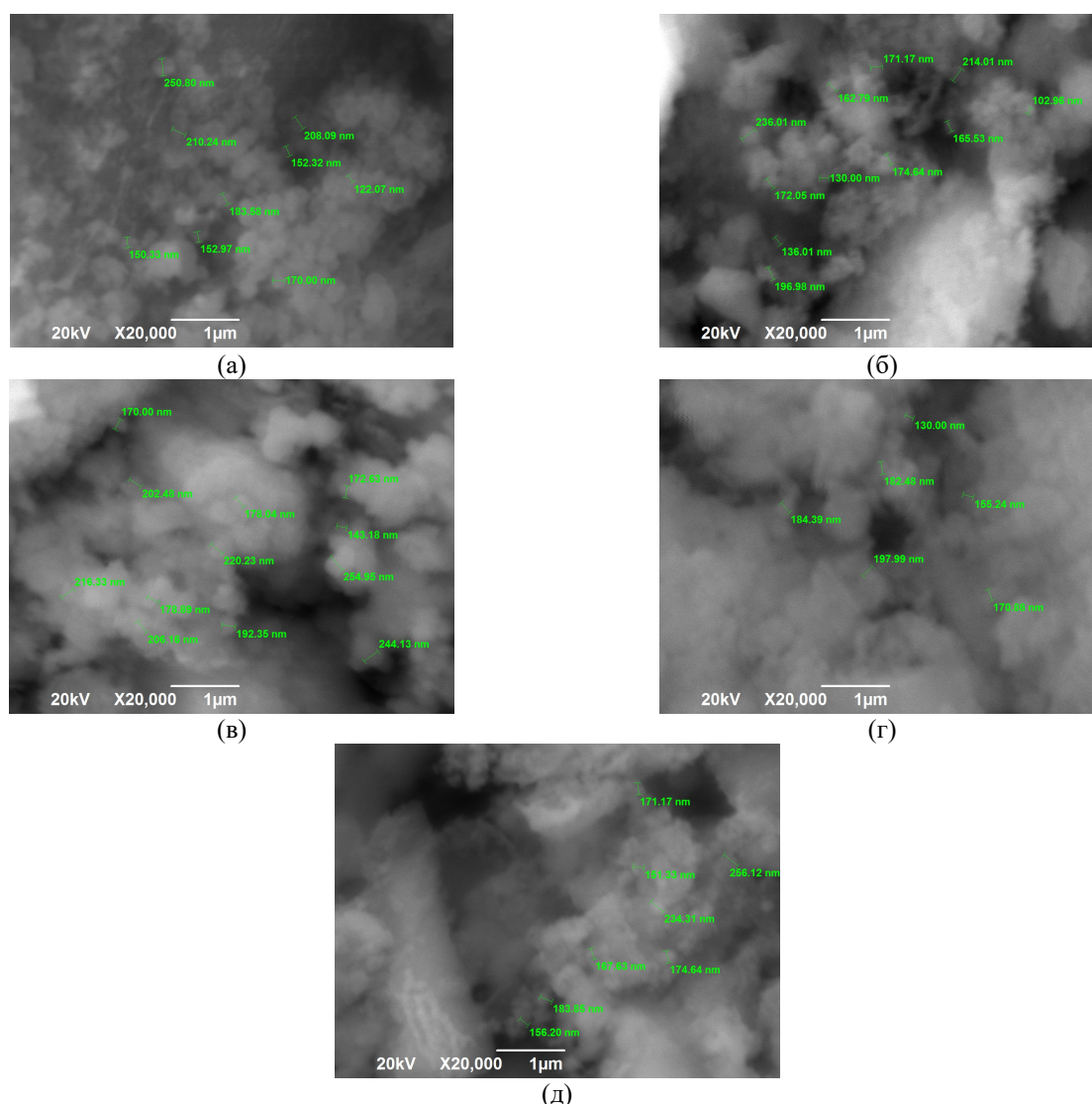


Рис. 1. Морфология частиц продуктов горения шихт уравнений (1)–(5):  
 а)  $2\text{Si} + \text{Ti} + 6\text{NaN}_3 + (\text{NH}_4)_2\text{SiF}_6 + \text{C}$ ; б)  $2\text{Si} + 2\text{Ti} + 6\text{NaN}_3 + (\text{NH}_4)_2\text{SiF}_6 + 2\text{C}$ ;  
 в)  $2\text{Si} + 4\text{Ti} + 6\text{NaN}_3 + (\text{NH}_4)_2\text{SiF}_6 + 4\text{C}$ ; г)  $5\text{Si} + \text{Ti} + 6\text{NaN}_3 + (\text{NH}_4)_2\text{SiF}_6 + \text{C}$ ;  
 д)  $11\text{Si} + \text{Ti} + 6\text{NaN}_3 + (\text{NH}_4)_2\text{SiF}_6 + \text{C}$ .

При увеличении содержания кремния до 11 молей шихта  $11\text{Si} + \text{Ti} + 6\text{NaN}_3 + (\text{NH}_4)_2\text{SiF}_6 + \text{C}$ , продукты отличаются от продуктов горения смеси  $2\text{Si} + \text{Ti} + 6\text{NaN}_3 + (\text{NH}_4)_2\text{SiF}_6 + \text{C}$ , они представляют собой частицы равноосной формы, но более крупного размера до 600 нм и волокна диаметром от 80–200 нм, длиной до 3 мкм. Результаты РФА показывают образование тех же фаз, но с увеличением содержания карбида и нитрида титана: TiN – 26.1%, TiC – 14.1%,  $\alpha$ -Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> – 43.0%,  $\beta$ -Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> – 16.8%.

Результаты экспериментального исследования показывают состав охлажденных продуктов реакций СВС-Аз и поэтому значительно отличаются от результатов термодинамического расчета (Таблица 1) состава продуктов при максимально возможной

адиабатической температуре реакций СВС-Аз. Из-за высоких температур горения ( $> 2200\text{ }^\circ\text{C}$ ), продукт реакции СВС представляет собой не только порошковую композицию из двух фаз:  $\text{Si}_3\text{N}_4$  и  $\text{TiC}$ , но и фазы  $\text{TiN}$  и  $\text{SiC}$ .

На Рис. 2 представлены результаты рентгенофазового анализа продуктов горения смеси  $2\text{Si} + \text{Ti} + 6\text{NaN}_3 + (\text{NH}_4)_2\text{SiF}_6 + \text{C}$ .

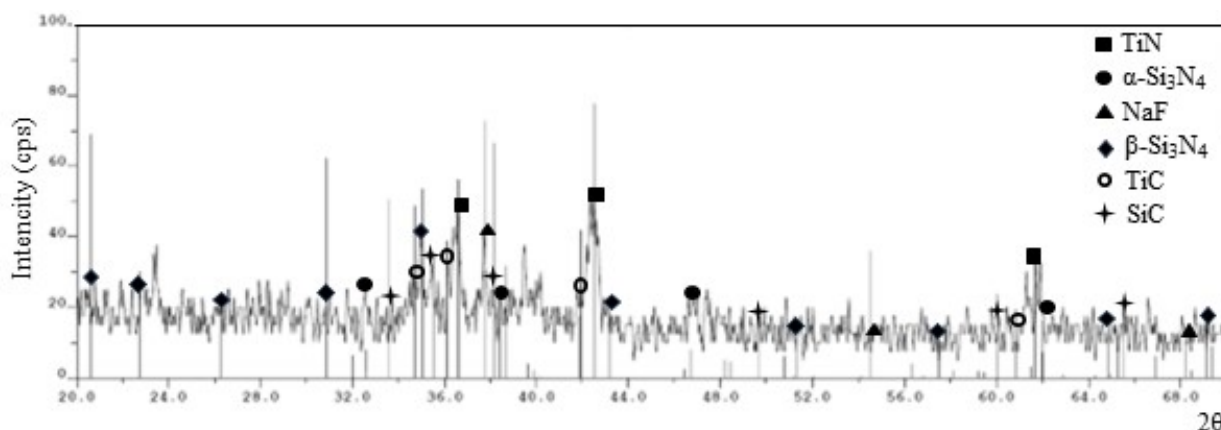


Рис. 2. Рентгенограмма промытых продуктов горения смеси  $2\text{Si} + \text{Ti} + 6\text{NaN}_3 + (\text{NH}_4)_2\text{SiF}_6 + \text{C}$ .

В результате исследований удалось получить высокодисперсные композиции керамических порошков  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiC}$  и  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiN-TiC}$  с размером частиц от 100 до 600 нм.

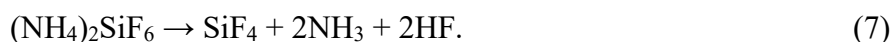
Для исследования химической стадийности образования композиции  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiC}$  проводились эксперименты по закалке продуктов реакций первого фронта путем резкого сброса давления из реактора, после чего продукты горения подвергались рентгенофазовому анализу.

Результаты рентгенофазового анализа подтвердили наличие галогенидов натрия и отсутствие нитридов и карбидов. Исходя из этих результатов, а также результатов исследования химической стадийности образования нитрида кремния и карбида титана в соответствующих процессах азидного СВС, используя известные результаты по химии образования соединений  $\text{Si}_3\text{N}_4$  и  $\text{TiC}$  и их химическим свойствам, можно сформулировать следующий механизм образования целевой композиции  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiC}$  в изучаемом процессе горения на примере системы  $y\text{Si} + x\text{Ti} + 6\text{NaN}_3 + (\text{NH}_4)_2\text{SiF}_6 + x\text{C}$ .

Сначала при температуре  $250\text{--}300\text{ }^\circ\text{C}$  происходит разложение азиды натрия:



Далее при температуре  $300\text{ }^\circ\text{C}$  происходит разложение гексафторсиликата аммония:



При нагревании ( $\sim 500\text{ }^\circ\text{C}$ ) активный натрий вытесняет кремний:



Очень бурно протекает реакция металлического натрия с фтороводородом в результате которой образуется фторид натрия:



Кремний и титан вступают в реакцию с аммиаком, образуя нитриды кремния и титана:



Взаимодействие кремния с аммиаком в зависимости от чистоты и дисперсности порошка начинается при 600–800 °С.



Вслед за реакциями (6), (7) протекает взаимодействие кремния и титана с азотом:



Кремний взаимодействует с углеродом с образованием карбида кремния:



Нитрид кремния, образовавшийся по реакциям (11), (13) взаимодействует с углеродом с образованием карбида кремния (> 1900 °С):



Титан взаимодействует с углеродом с образованием карбида титана:



О реализации различных реакций при синтезе композиции  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiC}$  в режиме горения можно также судить по результатам расчета изобарно-изотермического потенциала (энергии Гиббса) этих реакций.

На Рис. 3 приведены рассчитанные температурные зависимости изменения изобарно-изотермического потенциала ( $\Delta G^0$ ) возможных наиболее значимых реакций взаимодействия в системе исходных реагентов и промежуточных продуктов.

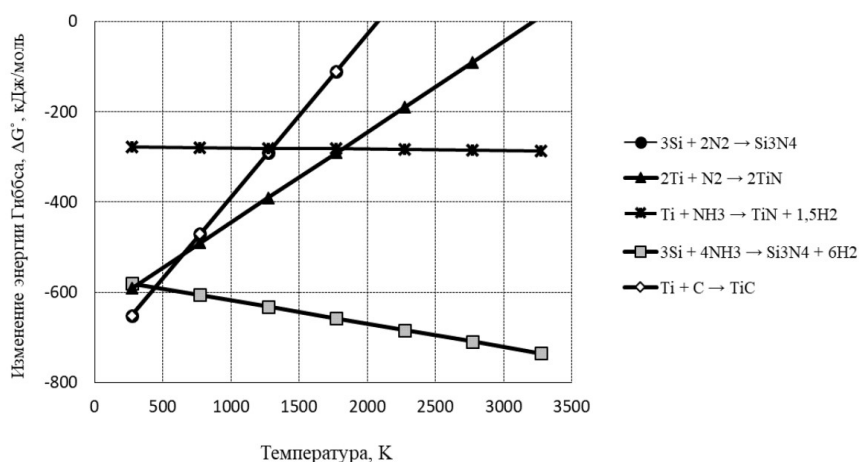


Рис. 3. Температурные зависимости изменения изобарно-изотермического потенциала ( $\Delta G^0$ ).

Установлено, что образование карбида кремния по реакции (14) маловероятно во всем диапазоне температур. Образование нитрида кремния по реакции (11) сопровождается наибольшим уменьшением изобарно-изотермического потенциала и выделением значительного количества теплоты, что увеличивает температуру системы и инициирует реакции образования нитридов титана и кремния (12) и (13), а также карбида титана по реакции (15).

Исходя из результатов термодинамических расчетов и с учетом рассмотрения изобарно-изотермических потенциалов возможных химических реакций, составлена химическая стадийность образования целевой керамической композиции  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiC}$  в процессе горения,

дано объяснение появлению нитрида кремния и свободного углерода в конечном составе синтезируемой порошковой композиции.

#### 4. Заключение

Таким образом, экспериментально определены зависимости скорости и температуры горения, степени превращения исходных веществ в целевую композицию  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiC}$  от соотношения исходных компонентов в смеси. Рассмотренное применение метода азидного СВС позволило получить высокодисперсные композиции керамических порошков  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiC}$  и  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiN-TiC}$  с размером частиц от 100 до 600 нм. Планируется дальнейшее проведение исследований в этом направлении с целью получения нанопорошковой композиции  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiC}$ .

#### Благодарность

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда в рамках проекта № 23-29-00680.

#### 5. Список литературы

- [1] S. Kim, B.G. Park, Tuning tunnel barrier in  $\text{Si}_3\text{N}_4$ -based resistive memory embedding  $\text{SiO}_2$ , for low-power and high-density cross-point array applications, *J. Alloys Compd.*, vol. **663**, 256, 2016; doi: 10.1016/j.jallcom.2015.12.107
- [2] P. Palmero, Structural ceramic nanocomposites: a review of properties and powders' synthesis methods, *Nanomaterials*, vol. **5**, 656, 2015; doi: 10.3390/nano5020656
- [3] Ch. Shen, Zh. Chen, Q. Li, H. Chen, G. Xiao, M. Yi, J. Zhang, T. Zhou, and Ch. Xu, Theoretical analysis of  $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{TiC}$  interfacial properties and material preparation, *Materials Today Communications*, vol. **35**, 105755, 2023; doi: 10.1016/j.mtcomm.2023.105755
- [4] V.-H. Nguyen, S.A. Delbari, M.Sh. Asl, Q.V. Le, M. Shokouhimehr, M. Mohammadi, and A.S. Namini, Synergistic effects of  $\text{Si}_3\text{N}_4$  and CNT on densification and properties of TiC ceramics, *Ceramics International*, vol. **47**, 12941, 2021; doi: 10.1016/j.ceramint.2021.01.157b
- [5] J. Zhang, J. Zhang, G. Xiao, Zh. Chen, M. Yi, Yu. Zhang, and Ch. Xu, Orientational effect of graphene on the friction and wear behavior of  $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{TiC}$  based composite ceramic tool materials, *Ceramics International*, vol. **46**, 3550, 2020; doi: 10.1016/j.ceramint.2019.10.072
- [6] E.I. Patsera, Yu.S. Pogochev, T.G. Akopdzhanyan, and E.A. Levashov, Combustion synthesis and consolidation of  $\text{Ti(C,N)-Si}_3\text{N}_4\text{-SiC}$  heterophase ceramic with YAG sintering additives, *Ceramics International*, vol. **50**, 4513, 2024; doi: 10.1016/j.ceramint.2023.11.185
- [7] Y. Zhang, G. Xiao, C. Xu, M. Yi, and X. Meng, Anisotropic Fracture Toughness and Microstructure of Graphene-Reinforced  $\text{TiC/Si}_3\text{N}_4$  Composite, *Journal of Ceramic Science and Technology*, vol. **7**, no. 04, 323, 2016; doi: 10.4416/JCST2016-00032
- [8] Ch. Ye, X. Yue, H. Ru, H. Long, and X. Gong, Effect of addition of micron-sized TiC particles on mechanical properties of  $\text{Si}_3\text{N}_4$  matrix composites, *Journal of Alloys and Compounds*, vol. **709**, 165, 2017; doi: 10.1016/j.jallcom.2017.03.124
- [9] Zh. M, H. Cheng, J. Fan, Zh. Wang, and Zh. Liu, Effect of Mo and TiC addition on the microstructure and mechanical properties of spark plasma sintered  $\text{Si}_3\text{N}_4$  composites, *Ceramics International*, vol. **48**, 22362, 2022; doi: 10.1016/j.ceramint.2022.04.242
- [10] A.S. Rogachev, A.S. Mukasyan, Combustion for material synthesis, *New York: CRC Press*, 422, 2014; doi: 10.1201/b17842