

## تاثیر افزودنی نانو اکسید منیزیم بر خواص مکانیکی نانو کامپوزیت آلومینا و کاربیدسیلیکون فرآوری شده با روش آلیاژسازی مکانیکی

محمد رضا واعظی<sup>\*</sup>، نازیلا اشرفی<sup>۱</sup>، علی نعمتی<sup>۲</sup>، سعید باغشاهی<sup>۱</sup>، امیر حسنجانانی روشن<sup>۱</sup>

<sup>۱</sup> پژوهشگاه مواد انرژی، پژوهشکده فناوری نانو و مواد پیشرفته، کرج، ایران.  
<sup>۲</sup> دانشگاه آزاد اسلامی واحد علوم تحقیقات، تهران، ایران.

تاریخ ثبت اولیه: ۱۳۹۲/۱۱/۷، تاریخ دریافت نسخه اصلاح شده: ۱۳۹۴/۱۲/۹، تاریخ پذیرش قطعی: ۱۳۹۵/۲/۲۶

**چکیده** هدف از انجام این پژوهش، فرآوری نانو کامپوزیتی بر پایه آلومینا و کاربید سیلیکون است که به دلیل خواص ویژه و کاربردهای گسترده این نوع از نانو کامپوزیت‌ها در صنایع مختلف توجه زیادی را به خود جلب کرده‌اند. در این مقاله، رفتار مکانیکی نانو کامپوزیت  $\text{Al}_2\text{O}_3/4.1\% \text{wt SiC}$  با روش سینتر بدون اعمال فشار با افزودن یک درصد وزنی نانو  $\text{MgO}$  مورد مطالعه قرار گرفته است. از نانو پودرهای  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  و  $\beta\text{-SiC}$  و  $\text{MgO}$  به عنوان مواد اولیه در این تحقیق استفاده گردید. در ابتدا مقدار مشخصی از نانو پودرهای  $\text{SiC-Al}_2\text{O}_3$  برای نمونه اول و  $\text{MgO-SiC-Al}_2\text{O}_3$  برای نمونه دوم با نسبت گلوله به پودر ۲۰ به ۱ توسط آسیاب گلوله‌ای سیاره‌ای با سرعت ۲۵۰۰ rpm به مدت ۴ ساعت مخلوط کرده و پودر حاصل در دمای  $600^\circ\text{C}$  به مدت ۲ ساعت کلسینه گردید. برای بررسی ساختاری نانو کامپوزیت‌های حاصل از آنالیز طیف‌سنجی اشعه ایکس (XRD) و برای بررسی مورفولوژی و اندازه ذرات این نانو کامپوزیت از میکروسکوپ الکترونی عبوری (TEM) استفاده شد که نتایج نشان داد نانو کامپوزیت حاصل دارای اندازه ذرات کمتر از ۱۰۰ نانومتر و مطابق با ساختار نانو پودرهای اولیه بود. از مخلوط پودرهای حاصل، قرص‌های خام اولیه با روش پرس تک محوره در فشار ۱۰۰ Mpa و سپس پرس ایزواستاتیک سرد در فشار ۱۵۰ Mpa آماده شد و سپس قرص‌ها در بوته گرافیتی جاسازی و در دمای  $1600^\circ\text{C}$  و  $1630^\circ\text{C}$  به مدت ۲ ساعت در کوره سینتر گردید. قرص‌های به دست آمده جهت بررسی تاثیر نانو پودر  $\text{MgO}$  بر خواص مکانیکی نانو کامپوزیت  $\text{SiC-Al}_2\text{O}_3$  مورد آزمایش چگالی سنجی و سختی سنجی قرار گرفت. چگالی به دست آمده از نمونه اول و دوم در دمای  $1600^\circ\text{C}$  به ترتیب ۹۳/۷ و ۹۵/۱ گرم بر سانتی‌متر مکعب و در دمای  $1650^\circ\text{C}$  به ترتیب ۹۴/۲ و ۹۶ گرم بر سانتی‌متر مکعب می‌باشد. با انجام آزمایش سختی ویکرز بر روی نمونه‌های اول و دوم در دمای  $1600^\circ\text{C}$  به ترتیب ۱۷/۸۷ و ۲۰/۰۷ گیگا پاسگال و در دمای  $1650^\circ\text{C}$  به ترتیب ۱۵/۴۴ و ۱۹/۷۹ گیگا پاسگال به دست آمد.

کلمات کلیدی: نانو کامپوزیت، خواص مکانیکی، سختی سنجی، سینتر.

## Effect of addition of nano Magnesium oxide on the mechanical properties of Alumina/ Silicon Carbides nano composites synthesized by mechanical alloying

Mohammad Reza Vaezi<sup>\*</sup>, Nazila Ashrafi<sup>2</sup>, Ali Nemati<sup>2</sup>, Said Baghshahi<sup>2</sup>, Amir Hassanjani Roshan<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Materials and Energy Research Center, Division Of Advance Materials and Nanotechnology, Karaj, Iran.

<sup>2</sup>Islamic Azad University, Science and Research Branch, Tehran, Iran.

**Abstract** The purpose of this study, Alumina and Silicon carbide-based nano-composite processing is due to the special properties and wide applications of these nano-composites have attracted much attention in various industries. In this paper, the mechanical properties of  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -4.1% wt SiC nanocomposites sintered without pressure by adding a weight percent of nano-MgO has been studied. Nano powders of  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ ,  $\beta\text{-SiC}$  and MgO were used as starting materials in this study. At First, a certain amount of nano-powders  $\text{Al}_2\text{O}_3$  - SiC for the first sample and  $\text{Al}_2\text{O}_3$  - SiC-MgO for a second sample to powder ratio of 20 to 1 by a planetary ball mill for 4 h speed 250 RPM mixture and the resulting powder Mesh 150 Mu passes and was calcined at  $600^\circ\text{C}$ . The effect of MgO nano powder obtained samples for mechanical properties of nano-composites,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  - SiC were tested for hardness.

**Keywords:** nano composite, mechanical properties, hardness, sintering.

## ۱- مقدمه

سیلیکون کارباید کاهش می‌یابد [۸ و ۹]. در پژوهش اخیر فرآیند ساخت نانوکامپوزیت  $\text{SiC}$  ۴/۱wt%  $\text{Al}_2\text{O}_3$  به روش زیترینگ بدون اعمال فشار گزارش شده و سختی نمونه‌های حاصل از ساخت با افزودن ۱wt%  $\text{MgO}$  در دو دمای ۱۶۰۰ و ۱۶۵۰ درجه سانتی‌گراد مورد بررسی قرار گرفته است.

جدول ۱. مشخصات نمونه a, b

نمونه	A	b
مقدار $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ برحسب درصد وزنی	۹۵/۹	۹۴/۹
مقدار $\beta\text{-SiC}$ برحسب درصد وزنی	۱/۴	۴/۱
مقدار $\text{MgO}$ برحسب درصد وزنی	-	۱

## ۲- روش تحقیق:

## ۲-۱- مواد اولیه:

در این پژوهش نانوپودرهای  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ - $\beta\text{-SiC}$  و  $\text{MgO}$  به عنوان مواد اولیه انتخاب گردید. در ابتدا مقدار مشخصی از نانو پودر  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  به همراه ۴/۱wt%  $\text{SiC}$  برای نمونه اول ( $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiC}$ ) و مقداری از نانو پودر  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  به همراه

۴/۱wt%  $\text{SiC}$  با افزودن ۱wt%  $\text{MgO}$  برای نمونه دوم ( $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiC}/\text{MgO}$ ) انتخاب شدند. در جدول (۱) مشخصات نمونه‌ها ارائه شده است.

## ۲-۲- آماده سازی و اختلاط پودرها:

به منظور انجام عملیات از محفظه فولادی مقاوم به سایش و گلوله‌های آلومینایی استفاده شد. در تمام طول آزمایش اتمسفر هوا، سرعت چرخشی ۲۵۰ rpm و نسبت گلوله به پودر (BPR) ۲۰ به ۱ اعمال گردید.

مدت زمان لازم جهت آسیاب ۴ ساعت در نظر گرفته شد و به منظور جلوگیری از بالا رفتن درجه حرارت در فرآیند آسیاب کاری پس از هر ۲ ساعت دستگاه به مدت ۳۰ دقیقه متوقف شد. سپس در مرحله بعدی پودرهای حاصل در دمای  $600^\circ\text{C}$  کلسینه شدند.

## ۲-۳- پرس کردن و آماده سازی نمونه‌ها:

کامپوزیت‌های سرامیکی نماینده آخرین یافته‌ها در حوزه سرامیک‌ها، همچنین نماینده مجموعه‌ای از مشکلات پیچیده و کاربردهای بسیار هستند. تلاش‌هایی که در زمینه کامپوزیت‌ها انجام گرفته ثابت کرده است که ترکیب منحصر به فردی از خواص مکانیکی، شیمیایی و الکترونیکی در آنها وجود دارد و می‌توانند در قالب‌ها و ابزارها، ایمپلنت‌های پزشکی، موتورهای حمل و نقل، نازل موشک‌ها و مبدل‌های حرارتی به کار گرفته شوند [۱].

در حال حاضر کاربردهای متنوعی برای نانوکامپوزیت‌های آلومینا و کاربید سیلیکون وجود دارد این کاربردها به دلیل خواص مکانیکی این نانوکامپوزیت‌ها در مقایسه با سرامیک‌های یکپارچه است [۲].

پژوهشگران و محققان کشف کرده‌اند ذرات فاز ثانویه از جمله مواد  $\text{SiC}$ ،  $\text{MgO}$ ،  $\text{ZrO}_2$ ،  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  نقش موثری در تقویت کامپوزیت‌های زمینه آلومینایی دارد.  $\text{SiC}$  به دلیل مدول الاستیک بالا، مقاومت به اکسیداسیون، مقاومت به خوردگی، تحمل دمای بالا در میان تقویت کننده‌های مختلف یکی از مهمترین آنها برای کامپوزیت‌های زمینه آلومینایی می‌باشد [۳ و ۴]. افزودن حجم کوچکی (۵-۱۰٪ حجمی) از تقویت کننده‌های با اندازه نانومتری  $\text{SiC}$  موجب افزایش قابل ملاحظه‌ای در خواص مکانیکی این نانو کامپوزیت‌ها می‌شود [۵ و ۶].

از سوی دیگر سرامیک‌های کامپوزیتی در مقایسه با سرامیک‌های یکپارچه به دمای سینترینگ بالاتری نیاز دارند. علاوه بر این به اعمال یک فشار خارجی جهت تراکم شدن و رسیدن به دانسیته بالاتر نیاز دارند. در بسیاری مقالات جهت تولید نانوکامپوزیت آلومینا و کاربید سیلیکون با استفاده از روش پرس گرم گزارش شده است، اما این روش به دلیل گرانی و محدودیت در شکل تولید محصول نامناسب است [۷]. سینتر بدون اعمال فشار روش جایگزینی مناسب جهت تولید این نانوکامپوزیت‌ها است اما به دلیل فقدان فشار در این روش جهت رسیدن به خواص مکانیکی مناسب دمای سینتر بالایی مورد نیاز است که با افزودن مقدار اندک از اکسیدهای فلزی دمای سینتر جهت ساخت نانوکامپوزیت آلومینا و

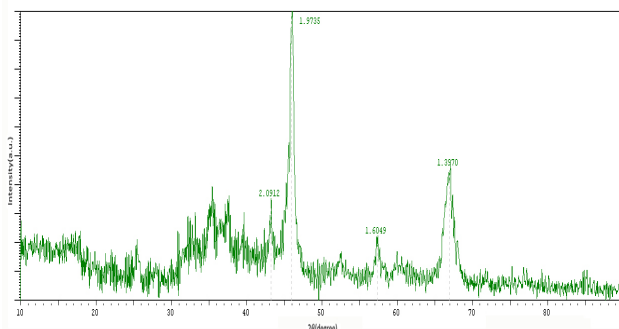
سختی نمونه‌ها توسط دستگاه میکروسختی سنجی ویکرز پژوهشگاه مواد انرژی کرج با مدل MVK-H21 اندازه‌گیری شد. قبل از سختی‌سنجی در ابتدا نمونه مانت، پولیش و کاملاً صیقلی گردید سپس بار  $F=100\text{gf}$  و به مدت زمان  $t=15\text{s}$  روی سطح پولیش شده اعمال و سختی براساس (رابطه ۱) محاسبه شد.

$$HV = \frac{1.854P}{d^2} \quad (\text{معادله ۱})$$

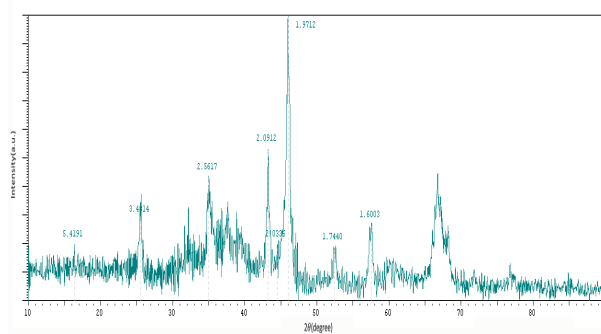
در این رابطه  $P$  نیروی اعمالی بر حسب نیوتن  $d$ ، میانگین دو قطر اثر بر حسب میلی‌متر،  $HV$  سختی بر حسب گیگا پاسکال است.

### ۳- نتایج و بحث:

۳-۱- بررسی فازهای کریستالی با استفاده از طیف سنجی پراش اشعه ایکس XRD:  
الگوی پراش اشعه ایکس نمونه‌های  $a$  و  $b$  در شکل‌های (۱) و (۲) نشان داده شده است.



شکل ۱. الگوی پراش پرتو اشعه ایکس از نمونه a



شکل ۲. الگوی پراش پرتو اشعه ایکس از نمونه b

در جداول (۲) و (۳) مقایسه نتایج از الگوهای تفرق برای نمونه‌ها به همراه پیک‌های مربوطه مشاهده می‌شود.

در ابتدا قبل از پرس به پودرهای حاصل از آماده سازی PVA ۲٪ افزوده و با تمام ذرات آغشته گردید. در این مرحله پودرهای مورد نظر در قالب به وسیله دستگاه پرس تک محوره تحت اعمال فشار  $250-50\text{MPa}$  قرار گرفته سپس نمونه‌ها توسط دستگاه ایزواستاتیک سرد در فشار  $150\text{MPa}$  مجدداً پرس شدند.

### ۲-۴- عملیات سینتر:

نمونه‌های پرس شده در کوره مورد نظر در دو دمای  $1600^\circ\text{C}$  و  $1650^\circ\text{C}$  با سرعت حرارت دهی  $10^\circ\text{C}/\text{min}$  و ۲ ساعت ماندگاری تحت عملیات حرارتی و سینتر قرار گرفتند.

### ۲-۵- بررسی ریزساختار و خواص مکانیکی:

بررسی تغییرات ساختاری و مطالعه فازها از طریق روش تفرق سنجی اشعه ایکس (XRD) انجام گردید. برای آنالیز از دستگاه XRD ساخت UNISANTIS و مدل XDM300 با پرتو  $\text{CuK}\alpha$  ( $\lambda=1/54056\text{A}$ ) استفاده شد.

نرخ معادل ۱ درجه بر دقیقه، ولتاژ اعمالی برابر ۴۵ کیلووات و جریان معادل ۱ میلی‌آمپر بود و زاویه پراش ( $2\theta$ ) از ۱۰ تا ۹۰ درجه انتخاب گردید.

پس از حصول الگوی پراش پرتوی ایکس، فازها و اجزای سازنده ماده حاصل از آسیاب کاری با استفاده از نرم افزار

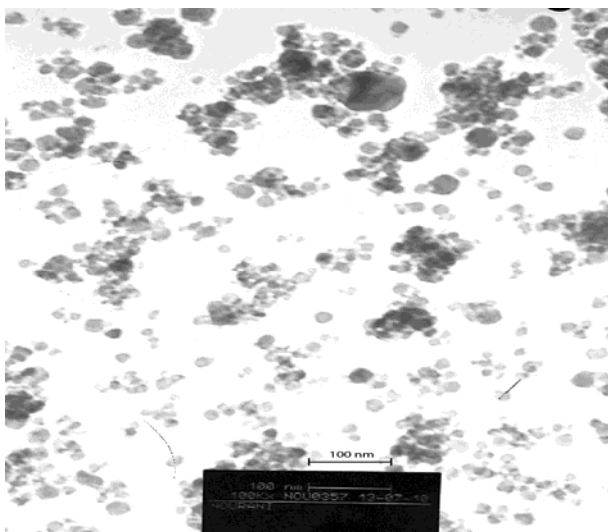
X Pert High Score و از طریق مقایسه پیک‌های پراش با اطلاعات موجود در استاندارد و سایر منابع مشخص و تعیین گردید.

همچنین از میکروسکوپ الکترونی عبوری (TEM) - (فیلیس - ۲۰۸ EM) به منظور مطالعه و بررسی مورفولوژی و اندازه ذرات محصول استفاده شد و جهت بررسی مشخصات ابعادی و ظاهری نمونه‌ها از فرآیند شکستن ذرات آگلومره شده توسط دستگاه التراسونیک بهره‌برداری گردید. به همین منظور در این پژوهش در مرحله آماده سازی نمونه‌های TEM در دستگاه از Sonicator استفاده شد.

افراطی دانه‌ها کنترل می‌کند [۱۰]. به طور کلی در شکل (۴) میکروساختار بهتر از نظر توزیع اندازه دانه و متوسط اندازه دانه‌ها مشاهده شده است.



شکل ۳. تصویر TEM از نمونه a.



شکل ۴. تصویر TEM از نمونه b.

### ۳-۳- سختی سنجی

افزودن مقدار اندکی MgO در دماهای  $1600^{\circ}\text{C}$  و  $1650^{\circ}\text{C}$  در افزایش سختی نقش قابل توجهی دارد [۱۰] در جدول (۴)، مشخصات نمونه‌ها، سختی و دمای سیتترینگ مشاهده می‌شود.

افزودن ۱%wt MgO در دو دمای  $1600^{\circ}\text{C}$  و  $1650^{\circ}\text{C}$  سبب کاهش دمای سیتتر می‌شود و سختی نمونه b در دو دما به صورت قابل توجهی افزایش یافته است. نمونه a و b در

آنچه مشخص شده در هیچ پیک ناخالصی وجود ندارد و پیک‌های تفرق از پودرهای سنتز شده (نمونه a و b) در این پژوهش مطابقت با مدل تفرق استاندارد دارد. به طور کلی هرچه پهنای پیک بیشتر باشد، بدان معنا می‌باشد که متوسط اندازه ذرات کمتری حاصل شده است.

جدول ۲. نتایج الگوی XRD به دست آمده از نمونه a.

ردیف	زاویه ( $2\theta$ ) درجه	پیک	شماره صفحه
۱	۲۶	$\text{Al}_2\text{O}_3$	(۰ ۱ ۲)
۲	۳۵	SiC	(۱ ۱ ۱)
۳	۴۳	SiC	(۲ ۰ ۰)
۴		$\text{Al}_2\text{O}_3$	(۱ ۱ ۳)
۵	۴۶	$\text{Al}_2\text{O}_3$	(۱ ۱ ۳)
۶	۵۲/۵	$\text{Al}_2\text{O}_3$	(۰ ۲ ۴)
۷	۵۷/۵	$\text{Al}_2\text{O}_3$	(۱ ۱ ۶)
۸	۶۷	$\text{Al}_2\text{O}_3$	(۲ ۱ ۴)

جدول ۳. نتایج الگوی XRD به دست آمده از نمونه b.

ردیف	زاویه ( $2\theta$ ) درجه	پیک	شماره صفحه
۱	۲۶	$\text{Al}_2\text{O}_3$	(۰ ۱ ۲)
۲	۳۵	SiC	(۱ ۱ ۱)
۳	۴۳	SiC	(۲ ۰ ۰)
۴		$\text{Al}_2\text{O}_3$	(۱ ۱ ۳)
۵	۴۴/۵	MgO	(۲ ۰ ۰)
۶	۴۶	$\text{Al}_2\text{O}_3$	(۱ ۱ ۳)
۷	۵۲/۵	$\text{Al}_2\text{O}_3$	(۰ ۲ ۴)
۸	۵۷/۵	$\text{Al}_2\text{O}_3$	(۱ ۱ ۶)
۹	۶۷	$\text{Al}_2\text{O}_3$	(۲ ۱ ۴)

### ۳-۲- بررسی ریزساختار با استفاده از میکروسکوپ الکترونی عبوری

شماتیکی از فرایند ارزیابی مشخصات ظاهری محصول و مشاهدات میکروسکوپی در شکل‌های (۳) و (۴) ارائه شده است. بر طبق مشاهدات میکروسکوپ الکترونی عبوری ملاحظه می‌شود که اندازه ذرات تولید شده در محدوده ( $<100\text{nm}$ ) بوده و همچنین مورفولوژی ذرات به صورت کروی و شبه کروی می‌باشد. در نمونه b حضور مقدار اندکی افزودنی MgO اندازه دانه‌های  $\text{Al}_2\text{O}_3$  را با ممانعت از رشد

- residual stresses in zirconia-alumina composites, J. Eur. Ceram. Soc. 25 (15) (2005) 3383-3392.
- S. Taktak, M.S. Baspinar, Wear and friction behavior of alumina/mullite composite by sol-gel infiltration technique, Mater. Des. 26 (5) (2005) 459-464.
  - K. Niihara, New design concept of structural ceramics-ceramic nanocomposites, J. Ceram. Soc. Jpn. 99 (10) (1991) 974-982.
  - M. Sternitzke, Review: structural ceramic nanocomposites, J. Eur. Ceram. Soc. 17 (1997) 1061-1082.
  - J. Perez-Rigueiro, J.Y. Pastor, J. Llorca, M. Elices, P. Miranzo, J.S. Moya, Revisiting the mechanical behavior of alumina/silicon carbide nanocomposites, Acta Mater. 46 (15) (1998) 5399-5411.
  - R.L. Coble, Sintering crystalline solids. II. Experimental test of diffusion models in powder compacts, J. Appl. Phys. 32 (5) (1961) 793-799.
  - S.O. Bae, S. Baik, Critical concentration of MgO for the prevention of abnormal grain growth in alumina, J. Am. Ceram. Soc. 77 (10) (1994) 2499-2504
  - Takigawa, Y., Ikuhara, Y., Sakuma, T., 1999, "Grain Boundary Bonding State and Fracture Energy in Small Amount of Oxide-Doped Fine-Grained Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>", Journal of Material Science, 34, pp. 1991-1997.

دمای ۱۶۰۰°C سختی بیشتری از خود نشان داد و بیشترین سختی مربوط به نمونه b در دمای ۱۶۰۰°C بود.

جدول ۴. سختی و دانسیته نمونه‌های نانو کامپوزیتی ستر شده.

شماره نمونه	نمونه	MgO (درصد وزن)	دمای سیتزنگ (°C)	دانسیته نسبی (g/cm <sup>3</sup> )	سختی (VH)
۱	a (Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /SiC)	---	۱۶۰۰	۹۳/۷	۱۷/۸۷
	a (Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /SiC)	---	۱۶۵۰	۹۴/۲	۱۵/۴۴
۲	b (Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /SiC/MgO)	۱	۱۶۰۰	۹۵/۱	۲۰/۰۷
	b (Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /SiC/MgO)	۱	۱۶۵۰	۹۶	۱۹/۷

#### ۴- نتیجه گیری

نانوکامپوزیت‌های ۴/۱ wt% SiC - Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> با استفاده از نانوپودرهای حاصل از آسیاب کاری مکانیکی به روش سیتز بدون اعمال فشار و با استفاده از افزودنی MgO در دو دمای ۱۶۰۰°C و ۱۶۵۰°C تهیه شدند.

بررسی مشخصات مورفولوژیک پودرهای کامپوزیتی حاصل با استفاده از مشاهدات میکروسکوپی نشان می‌دهد که مورفولوژی ذرات به صورت کروی و شبه کروی و اندازه ذرات در محدوده کوچکتر از ۱۰۰ نانومتر بوده و یک مخلوط یکنواخت از مواد اولیه شکل گرفته است.

حضور مقدار اندک افزودنی MgO تاثیر بهتری روی میکروساختار از نظر توزیع اندازه دانه و متوسط اندازه دانه داشته است. این پودرها می‌توانند به عنوان پودر آغاز کننده برای ساخت بالک به کار روند.

MgO سبب بهبود سختی در نمونه‌ها شد. بیشترین سختی در نمونه‌ای مشاهده گردید که دارای ۱wt%MgO می‌باشد و در دمای ۱۶۰۰°C سیتز شده است.

#### مراجع

- Rahaman, M.N, 2004 "Ceramic Processing and Sintering", Marcel Dekke Institute, Second Edition, New York, USA, pp.209-324.
- Y.J. Lin, C.P. Tsang, The effect of starting precursors on the carbothermal synthesis of SiC powders, Ceram. Int. 29 (2003) 69-75.
- G. Magnani, A. Brillante, Effect of the composition and sintering process on mechanical properties and