



## Fabrication and Characterization of Alumina-Based Composites via Self-Combustion Synthesis in the Al-ZrO<sub>2</sub> (ZrSiO<sub>4</sub>)-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (TiO<sub>2</sub>)-C System

Samaneh Shamahmodi<sup>1</sup>, Mahdi Kalantar<sup>2,\*</sup>, Masoud Moshreffar<sup>3</sup>

<sup>1</sup> MSc Student, Department of Materials and Metallurgical Engineering, Faculty of Mining and Metallurgical Engineering, Yazd University, Yazd, Iran.

<sup>2</sup> Professor, Department of Materials and Metallurgical Engineering, Faculty of Mining and Metallurgical Engineering, Yazd University, Yazd, Iran.

<sup>3</sup> Assistant Professor, Department of Materials and Metallurgical Engineering, Faculty of Mining and Metallurgical Engineering, Yazd University, Yazd, Iran.

\*Corresponding Author's Email: [mkalantar@yazd.ac.ir](mailto:mkalantar@yazd.ac.ir) (Mahdi Kalantar)

### Paper History:

Received: 2025-12-03

Revised: 2026-02-26

Accepted: 2026-06-19

### Keywords:

Aluminothermic Reaction, Synthesis, Microstructure, Phase Composition, Mechanical Properties, Thermal Analysis

**Abstract** In this study, the fabrication of alumina-based composites (in situ) in the Al-ZrO<sub>2</sub>(ZrSiO<sub>4</sub>)-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(TiO<sub>2</sub>)-C system was carried out by the self-combustion synthesis method. According to the results, different compounds of zirconium aluminide, diboride, and disilicide, boron, zirconium and silicon carbide, and aluminum titanate were formed in the alumina matrix, depending on the type of system. For samples sintered by spark plasma sintering in the Al-ZrSiO<sub>4</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-C system, which exhibited the highest relative density (92%) and a more homogeneous microstructure than the other systems, the highest mechanical properties (Vickers hardness of 1159, flexural strength of 271.5 MPa, and fracture toughness of 8.76 MPa·m<sup>1/2</sup>) were obtained.



<https://doi.org/10.30501/jamt.2026.555433.1343>

URL: [https://www.jamt.ir/article\\_246013.html](https://www.jamt.ir/article_246013.html)

## 1. INTRODUCTION

Alumina has many applications in various industries due to its properties such as high refractoriness, strength, wear resistance, and chemical neutrality. However, its use has been limited by its poor fracture toughness and thermal shock resistance. Among the reinforcing phases for alumina that are formed by in situ aluminothermic reactions (self-combustion synthesis) (Levashov et al., 2017; Pacheco, 2007; Rao & Biswas, 2015), zirconium diboride (Mishra et al., 2007), zirconium carbide, boron carbide (B4C and BC), titanium diboride (Tapsuan & Niyomwas, 2012), titanium carbide (Li et al., 2012), zirconium aluminides, the zinc metallic phase (Maleki et al., 2018), the iron metallic phase and titanium carbide simultaneously (Kholghy et al., 2010), titanium diboride and titanium carbide simultaneously (Vallauri et al., 2008), iron and chromium aluminides (Aghili et al., 2014), niobium boride (Yeh & Li, 2009), etc., can be mentioned. The use of the aluminothermic self-combustion synthesis (SHS) method simultaneously with carbothermic reduction offers benefits such as energy savings and the use of less expensive raw materials (Al + B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> + C + ZrO<sub>2</sub> + ZrSiO<sub>4</sub>). On the other hand, reinforcing agents (zirconium boride and carbide, boron carbide, and different types of intermetallic compounds) can be formed in situ in the composite (alumina) matrix. In this way, the composite is more economical to manufacture and, due to the in situ formation of the matrix and reinforcement, good homogeneity and bonding are established between

them. Today, various alumina matrix composites in different aluminothermic systems have been produced by the self-combustion synthesis method for applications such as cutting tools. Usually, composite samples synthesized by the combustion synthesis method are porous and require a supplementary sintering step. For example, for Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-TiAl composites synthesized by the SHS method in the Al-TiO<sub>2</sub> system, a supplementary hot-pressing step was performed (Shen et al., 2011), which resulted in a significant increase in fracture toughness and strength. Similarly, such a process was performed for the Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Ti<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub> composite in the Al-TiO<sub>2</sub>-Si-C system, in which a multilayer structure appeared in the Ti<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub> grains (Yeh et al., 2009).

The main objective of this research is to investigate the possibility of manufacturing alumina matrix composites with zirconium-based reinforcements (ZrO<sub>2</sub>, ZrB<sub>2</sub>, Al<sub>3</sub>Zr, and ZrC) and other compounds such as B<sub>4</sub>C by in situ self-combustion synthesis in different aluminothermic systems using the spark plasma sintering technique. This is the first time that the spark plasma sintering method has been used for the combustion synthesis process in the studied aluminothermic systems (Al-ZrO<sub>2</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-C, Al-ZrSiO<sub>4</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-C, and Al-ZrO<sub>2</sub>-TiO<sub>2</sub>-C). In this study, the dependence of the physical (density and porosity) and mechanical properties (flexural strength, hardness, and toughness) of composite samples on the microstructure and type of raw material system has been analyzed. In

Please cite this article as: Shamahmodi, S., Kalantar, M., & Moshreffar, M. (2026) Fabrication and Characterization of Alumina-Based Composites via Self-Combustion Synthesis in the Al-ZrO<sub>2</sub> (ZrSiO<sub>4</sub>)-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (TiO<sub>2</sub>)-C System. *Journal of Advanced Materials and Technologies*, Vol. 15, No. 1, 38-54. [in Persian]. <https://doi.org/10.30501/jamt.2026.555433.1343>



this research, the mixture of raw materials in a stoichiometric ratio, according to the reaction considered for each system, was subjected to combustion synthesis and sintering heat treatment (simultaneously) using the spark plasma sintering technique after homogenization. In the next step, the microstructure, phase composition, and physical and mechanical properties of the manufactured composite samples were investigated. In addition, to determine the appropriate temperature for the spark plasma sintering process, thermal analysis was performed on the homogenized mixture of raw materials for each system.

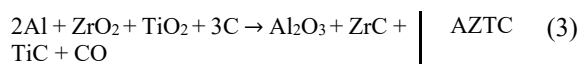
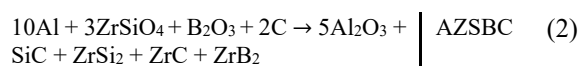
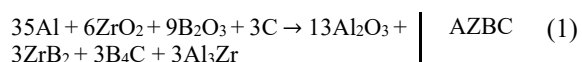
## 2. MATERIALS AND METHODS

### 2.1. Starting materials

In this study, aluminum (Al), boron oxide ( $B_2O_3$ ), activated carbon (C), zirconia ( $ZrO_2$ ), zircon ( $ZrSiO_4$ ), and titanium oxide ( $TiO_2$ ) powders from Merck, Germany, with a purity of 99.99%, were used as raw materials.

### 2.2. Synthesis and process of making samples

The raw material mixtures, based on the stoichiometric compositions according to Reactions (1) to (3), were mixed and homogenized using a planetary ball mill at a rotational speed of 750 rpm and a weight ratio of zirconia balls to powder of 5:1 for 6 h.



The in situ spark plasma sintering (SPS) process was used to fabricate the composite samples. For this purpose, homogenized powder mixtures of raw materials were passed through a 500-mesh (25  $\mu m$ ) sieve and then placed into a graphite mold with a diameter of 30 mm. A temperature of 1200  $^{\circ}C$ , a mechanical pressure of 45 MPa, and a pulsed direct electric current were applied throughout the process (Amirimoghaddam & Kalantar, 2024; Hoseinpour & Kalantar, 2024). Finally, samples with an average diameter of 30 mm and a thickness of 3 mm were obtained.

### 2.2. Characterization

In order to select the appropriate temperature for the in situ spark plasma sintering process, differential thermal analysis (TGA-DTA) was performed on homogenized powder mixtures in the three systems under the following conditions: a maximum temperature of 1400 $^{\circ}C$ , an argon atmosphere, and a heating rate of 10 $^{\circ}C/min$ . To investigate the phase composition and microstructure of the composite samples, X-ray diffraction, field-emission scanning electron microscopy, and energy-dispersive X-ray spectroscopy (EDS) were used, respectively. The bulk density of the samples was measured using the Archimedes method, and the relative density and porosity of the composite samples were calculated based on their theoretical density. A three-point bending test in accordance with ASTM C1161-02 was used to measure the fracture load,

and the flexural strength of the composite samples was calculated using Equation (4).

$$\sigma = 1/5 \frac{PD}{BW^2} \quad (4)$$

P: fracture force; D: support distance, which is equal to 15 mm; and B and W: the width (4 mm) and thickness (3mm) of the samples, respectively. To determine the fracture toughness, samples containing pre-cracks were loaded in a three-point bending machine, and the fracture toughness was calculated using Equation (5).

$$K_{IC} = \sigma_f \sqrt{\pi a} Y_1 \quad (5)$$

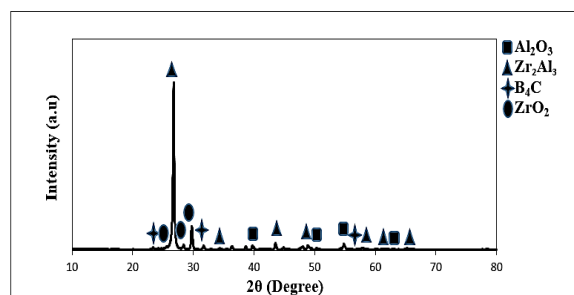
where  $K_{IC}$  is the fracture toughness,  $a$  is the length of the crack created in the sample (pre-crack),  $\sigma_f$  is the fracture strength of the sample, and  $Y_1$  is the dimensionless stress intensity factor, which is calculated using Equation (6).

$$Y_1 = (-1.297 + 9.516 \left(\frac{S}{D}\right)) - (0.47 + 16.457 \left(\frac{S}{D}\right)) \beta + (1.071 + 34.401 \left(\frac{S}{D}\right)) \beta^2 \quad (6)$$

In this equation,  $S$  is the distance between the support points (m),  $D$  is the width of the sample,  $\beta$  is the ratio of the crack length to half the thickness of the sample, and  $R$  is the width of the sample (Kuruppu et al., 2014). The hardness of the composite samples was determined using a Vickers hardness tester in accordance with ASTM E384 (applied load of 20 N for 10 s) (Hosseini and Abdolalizadeh, 2017).

## 3. RESULTS AND DISCUSSION

The results of XRD phase analysis for the AZBC system (Figure 1) indicate the predominant formation of zirconium aluminide; in other words, in the presence of aluminum, the tendency for the formation of zirconium aluminide is greater than that for zirconium boride. The results of XRD phase analysis for the AZSBC sample after SPS (Figure 2) indicate the formation of  $ZrB_2$ ,  $ZrC$ ,  $ZrSi_2$ ,  $SiC$ , and  $Al_2O_3$  phases. Compared to the previous sample, it can be said that, by replacing zirconia with zirconium silicate, the aluminothermic and carbothermic reduction reactions proceed toward the formation of a more diverse range of reinforcing phases, which may be attributed to the higher reactivity of  $ZrSiO_4$  compared to  $ZrO_2$ .



**Figure 1.** Phase analysis of the AZBC sample, sintered at 1200 $^{\circ}C$  with a heating rate of 150 $^{\circ}C/min$  and an applied pressure of 45 MPa in the spark plasma sintering process.



## ACKNOWLEDGMENT

The authors would like to thank the Faculty of Mining and Metallurgy, Yazd University for providing their laboratory and workshops.

## REFERENCES

- Aghili, S., Enayati, M., & Karimzadeh, F. (2014). Synthesis of (Fe, Cr)<sub>3</sub>Al–Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanocomposite through mechanochemical combustion reaction induced by ball milling of Cr, Al and Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> powders. *Advanced Powder Technology*, 25(1), 408–414. <https://doi.org/https://doi.org/10.1080/09506608.2016.1243291>
- Amirimoghaddam, A., & Kalantar, M. (2025). Fabrication and Characterization of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-WxSiy-WwBz Composite Prepared by Spark Plasma Sintering Method in Al-Si-WO<sub>3</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> System. *Journal of Materials Engineering and Performance*, 1–10. <https://doi.org/10.1007/s11665-024-10349-1>
- Hoseinpour, M., & Kalantar, M. (2024). Fabrication and characterization of alumina-based composites by in-situ combustion synthesis in Al-FeTiO<sub>3</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-C alumino-thermic system. *Journal of the Australian Ceramic Society*, 60(4), 1249–1264. <https://doi.org/10.1007/s41779-024-01036-4>
- Hosaini A.K., abodalalzadeh, K. (1396). Representing an empirical relationship for estimating the Mode I fracture toughness of rock obtained from testing on SCB specimens using tensile strength, *J. of Eng. Geo.*, 11(2), 174-175. (In Persian)
- Kholghy, M., Kharatyan, S., & Edris, H. (2010). SHS/PHIP of ceramic composites using ilmenite concentrate. *Journal of alloys and compounds*, 502(2), 491–494. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2010.04.204>
- Kuruppu M. D., Obara Y., Ayatollahi M. R., Chong K. P., Funatsu T. (2014). ISRM-Suggested Method for Determining the Mode I Static Fracture Toughness Using Semi-Circular Bend Specimen, *Rock Mechanics and Rock Engineering*, 47, 267–274. <https://doi.org/10.1007/s00603-013-0422-7>
- Levashov, E., Mukasyan, A., Rogachev, A., & Shtansky, D. (2017). Self-propagating high-temperature synthesis of advanced materials and coatings. *International materials reviews*, 62(4), 203–239. <https://doi.org/10.1080/09506608.2016.1243291>
- Li, Y., Bai, P., Liu, B., & Wang, J. (2012). Effect of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> content on the synthesized products by the laser ignited self-propagating high-temperature synthesis reaction of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>–Ti–C system. *International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*, 34, 53–56. <https://doi.org/10.1016/j.ijrmhm.2012.04.006>
- Maleki, A., Hosseini, N., & Niroumand, B. (2018). A review on aluminothermic reaction of Al/ZnO system. *Ceramics International*, 44(1), 10–23. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2017.09.168>
- Mishra, S. K., Das, S. K., & Sherbacov, V. (2007). Fabrication of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>–ZrB<sub>2</sub> in situ composite by SHS dynamic compaction: a novel approach. *Composites Science and Technology*, 67(11-12), 2447–2453. <https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2006.12.017>
- Shen, Y., Zou, Z., Xiao, Z., Liu, K., Long, F., & Wu, Y. (2011). Properties and electronic structures of titanium aluminides–alumina composites from in-situ SHS process. *Materials Science and Engineering: A*, 528(4-5), 2100–2105. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2010.11.039>
- Tapsuan, K., & Niyomwas, S. (2012). Effect of preform conditions on synthesis of Fe<sub>3</sub>Al–TiB<sub>2</sub>–Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> composite by self-propagating high-temperature synthesis. *Procedia Engineering*, 32, 635–641. <https://doi.org/10.1016/j.proeng.2012.01.1320>
- Vallauri, D., Shcherbakov, V., Khitev, A., & Deorsola, F. A. (2008). Study of structure formation in TiC–TiB<sub>2</sub>–MexOy ceramics fabricated by SHS and densification. *Acta Materialia*, 56(6), 1380–1389. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2007.11.022>
- Yeh, C., & Li, R. (2009). Formation of TiB<sub>2</sub>–Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and NbB<sub>2</sub>–Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> composites by combustion synthesis involving thermite reactions. *Chemical Engineering Journal*, 147(2-3), 405–411. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2009.01.007>
- Yeh, C., Li, R., & Shen, Y. (2009). Formation of Ti<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub>–Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> in situ composites by SHS involving thermite reactions. *Journal of alloys and compounds*, 478(1-2), 699–704. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2008.11.131>



مقاله کامل پژوهشی

## بررسی ساخت و خواص کامپوزیت‌های بر پایه آلومینا به روش سنتز خوداحتراقی در سیستم Al-ZrO<sub>2</sub> (ZrSiO<sub>4</sub>)- B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (TiO<sub>2</sub>)- C

سمانه شاه محمودی<sup>۱</sup>، مهدی کلاتر<sup>۲\*</sup>، مسعود مشرفی‌فر<sup>۳</sup><sup>۱</sup> دانشجوی کارشناسی ارشد، گروه مهندسی مواد و متالورژی، دانشکده مهندسی معدن و متالورژی، دانشگاه یزد، یزد، ایران<sup>۲</sup> استاد، گروه مهندسی مواد و متالورژی، دانشکده مهندسی معدن و متالورژی، دانشگاه یزد، یزد، ایران<sup>۳</sup> استادیار، گروه مهندسی مواد و متالورژی، دانشکده مهندسی معدن و متالورژی، دانشگاه یزد، یزد، ایران

**چکیده** حضور زیرکونیا در کامپوزیت‌های پایه آلومینا باعث افزایش چقرمگی می‌شود؛ درحالی‌که استحکام و سختی آن‌ها حفظ می‌گردد. در این مطالعه، تأثیر ترکیب مواد اولیه بر خواص مکانیکی نمونه‌های مختلف کامپوزیت پایه آلومینا-زیرکونیا، سنتز شده به روش سنتز خوداحتراقی، برای سه سیستم واکنش آلومینوترمیک Al-ZrO<sub>2</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-C، Al-ZrSiO<sub>4</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-C و Al-ZrO<sub>2</sub>-TiO<sub>2</sub>-C بررسی شد. در این تحقیق، ابتدا مخلوط‌های گوناگون مواد اولیه براساس سیستم‌های یادشده، همگن‌سازی شدند و مطالعات اولیه آنالیز حرارتی افتراقی بر روی آنها انجام شد. سپس، براساس نتایج حاصل، فرایند زیتترینگ پلاسمای جرقه‌ای (SPS) بر روی نمونه‌ها انجام شد. این فرایند با اعمال فشار ۴۵ مگاپاسکال، نرخ گرمایش ۱۵۰ درجه سلسیوس بر دقیقه و نگهداری در دمای ۱۴۰۰ درجه سلسیوس به مدت ۵ دقیقه انجام شد. در ادامه، مشاهدات ریزساختاری، تعیین ترکیب فازی و اندازه‌گیری خواص فیزیکی (چگالی، تخلخل) و مکانیکی (سختی، استحکام و چقرمگی) برای نمونه‌های زیتتر شده انجام شد. نتایج آنالیز حرارتی نشان داد که در تمامی سیستم‌های مورد بررسی، واکنش‌های خوداحتراقی پس از ذوب آلومینیوم تشدید شده و پیک‌های متناظر با این واکنش‌ها در منحنی‌های حرارتی ظاهر می‌شوند؛ به طوری‌که بیشترین شدت احتراق در سیستم Al-ZrO<sub>2</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-C در دمای ۷۰۰ درجه سلسیوس و در سیستم Al-ZrSiO<sub>4</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-C در دمای حدود ۱۰۰۰ درجه سلسیوس مشاهده می‌شود. نتایج آنالیز فازی حاکی از تشکیل فازهای مختلف آلومیناید زیرکونیم، دی‌سیلیسید و دی‌بورید زیرکونیم، انواع کاربیدهای بور، زیرکونیم و سیلیسیم و تیتانات آلومینیم بسته به نوع سیستم در زمینه آلومینا است. براساس نتایج آنالیز حرارتی، دمای ۱۲۰۰ درجه سلسیوس به عنوان دمای مناسب برای فرایند زیتتر قوس پلاسمای انتخاب شد. نتایج حاصل از نمونه‌های زیتتر شده نشان داد که سیستم Al-ZrSiO<sub>4</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-C با دستیابی به بیشترین چگالی نسبی (۹۲ درصد) و برخورداری از ریزساختاری همگن‌تر نسبت به دو سیستم دیگر، بالاترین خواص مکانیکی (سختی ۱۱۵۹ و یکرز، استحکام خمشی ۲۷۱/۵ مگاپاسکال و چقرمگی ۸/۷۶ MPa.m<sup>1/2</sup>) را ارائه می‌دهد.

**تاریخچه مقاله:**

ثبت اولیه: ۱۴۰۴/۰۹/۱۲

بازنگری: ۱۴۰۴/۱۲/۰۷

پذیرش قطعی: ۱۴۰۵/۰۳/۲۹

کلیدواژه‌ها:

واکنش آلومینوترمیک،

سنتز احتراقی،

ریزساختار،

ترکیب فازی،

خواص مکانیکی

<https://doi.org/10.30501/jamt.2026.555433.1343>URL: [https://www.jamt.ir/article\\_246013.html](https://www.jamt.ir/article_246013.html)

## ۱- مقدمه

آلومینا که از طریق واکنش‌های آلومینوترمیک (سنتز خوداحتراقی) به شکل درجا (Levashov et al., 2017; Pacheco, 2007; Rao & Biswas, 2015) شکل می‌گیرند، می‌توان به دی‌بورید زیرکونیم (Mishra et al., 2007)، کاربید زیرکونیم (ZrC)، کاربید بور (B<sub>4</sub>C و BC)، دی‌بورید تیتانیوم (Tapsuan &

آلومینا به دلیل ویژگی‌هایی مانند دیرگدازی، استحکام مطلوب، مقاومت به سایش بالا و خنثی بودن از نظر شیمیایی، کاربردهای زیادی در صنایع مختلف دارد؛ با وجود این، چقرمگی شکست و مقاومت در برابر شوک حرارتی ضعیفی دارد که استفاده از آن را محدود می‌کند. از میان فازهای تقویت‌کننده برای

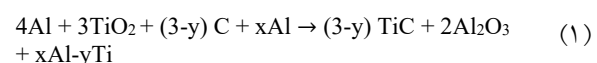
\*عده‌دار مکاتبات: مهدی کلاتر

نشانی: ایران، یزد، دانشگاه یزد، دانشکده معدن و متالورژی، گروه مهندسی مواد و متالورژی

پیام‌نگار: [mkalantar@yazd.ac.ir](mailto:mkalantar@yazd.ac.ir)

آلومینای خالص (به ترتیب ۱۵MPa و  $2/2 \text{MPa.m}^{1/2}$ ) بهبود قابل توجهی داشته است. همچنین از روش سنتز احتراقی در سیستم‌های مختلف مواد اولیه برای ساخت کامپوزیت‌های دمابالا مانند  $\text{TiB}_2/\text{مولایت}$ ،  $\text{NbB}_2/\text{مولایت}$  (Yeh & Li, 2009)،  $\text{TaB}/\text{TaB}_2/\text{مولایت}$  و  $\text{TaB}_2/\text{مولایت}$  (Yeh & Chou, 2015)؛ (Yeh & Kao, 2014) استفاده شده است. معمولاً کامپوزیت‌های حاصل از فرایند سنتز احتراقی، متخلخلند و لازم است یک مرحله زینتر تکمیلی را دنبال کنند. در همین راستا، برای کامپوزیت‌های  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-TiAl}$  سنتز شده به روش SHS در سیستم  $\text{Al-TiO}_2$ ، از فرایند تکمیلی پرس گرم استفاده شده است (Shen et al., 2011) که چقرمگی شکست و استحکام مکانیکی محصول نهایی، افزایش قابل توجهی داشته است. به طور مشابه، از این فرایند برای تولید کامپوزیت  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Ti}_3\text{SiC}_2$  در سیستم  $\text{Al-TiO}_2\text{-Si-C}$  استفاده شده است که در آن ساختار چندلایه‌ای برای دانه‌های  $\text{Ti}_3\text{SiC}_2$  قابل مشاهده است (Yeh et al., 2009). نتایج مطالعات انجام شده بر روی کامپوزیت  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-WC}$  در سیستم مخلوط مواد اولیه  $\text{WO}_3\text{-Al-C}$ ، نشان می‌دهد که در فرایند ترکیبی احیاء کربوترمیک و سنتز خوداحتراقی به همراه مرحله تکمیلی زینتر مایکروویو، کاربرد تنگستن تشکیل می‌شود که از رشد دانه‌های زمینه جلوگیری می‌کند؛ در نتیجه، زمینه نسبتاً ریزی از دانه‌های آلومینا شکل می‌گیرد که منجر به بهبود استحکام مکانیکی و چقرمگی می‌شود (Sakaki et al., 2014). نانوکامپوزیت  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-TiC-10\%wt ZrO}_2$  ساخته شده به روش سنتز احتراقی در سیستم  $\text{Al-TiO}_2\text{-C-ZrO}_2$  (Dong et al., 2008) و به دنبال آن پرس گرم، افزایش خواص مکانیکی ۲۰ درصد بالاتر از  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-TiC}$  را از خود نشان می‌دهد (استحکام خمشی  $706 \text{MPa}$  و چقرمگی شکست  $6/3 \text{MPa.m}^{1/2}$ ). در یک مطالعه دیگر (Kumar et al., 2017)، به منظور افزایش سختی و بهبود خواص مکانیکی کامپوزیت زمینه سرامیکی  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-ZrB}_2$ ، ذرات  $\text{SiC}$  با مقادیر (۰، ۵ و ۱۰ درصد) به سیستم  $\text{Al-ZrO}_2\text{-B}_2\text{O}_3$  در فرایند سنتز خوداحتراقی اضافه شده‌اند. نتایج، نشان‌دهنده توزیع و پراکندگی یکنواخت کاربید سیلیسیم در

(Niyomwas, 2012)، کاربرد تیتانیوم (Li et al., 2012)، آلومینایدهای زیرکونیوم، فاز فلزی روی (Maleki et al., 2018)، فاز فلزی آهن و کاربرد تیتانیوم به طور هم‌زمان (Kholghy et al., 2010)، دی‌بورید تیتانیوم و کاربرد تیتانیوم به طور هم‌زمان (Vallauri et al., 2008)، آلومیناید آهن و کروم (Aghili et al., 2014)، بورید نیوبیم (Yeh & Li, 2009) و غیره اشاره کرد. استفاده از فرایند سنتز خوداحتراقی (SHS) مبتنی بر واکنش‌های آلومینوترمیک همراه با احیاء کربوترمیک، این امکان را فراهم می‌کند که علاوه بر کاهش مصرف انرژی و بهره‌گیری از مواد اولیه ارزان‌تر ( $\text{ZrO}_2$ ، C،  $\text{B}_2\text{O}_3$ )، فازهای تقویت‌کننده دی‌بورید زیرکونیوم و کاربرد زیرکونیوم نیز به صورت درجا در زمینه کامپوزیت آلومینایی تشکیل شوند؛ بدین ترتیب ساخت کامپوزیت، مقرون به صرفه‌تر بوده و از طرفی، به دلیل شکل‌گیری در جای زمینه و تقویت‌کننده، یک همگنی و اتصال خوبی بین آنها برقرار می‌شود. امروزه انواع مختلفی از کامپوزیت‌های پایه آلومینا از طریق سیستم‌های گوناگون آلومینوترمیک<sup>۱</sup> و به روش سنتز خوداحتراقی برای کاربردهایی نظیر ابزارهای برشی تولید می‌شوند. به عنوان نمونه، از سیستم  $\text{Al-TiO}_2\text{-C}$  برای تولید کامپوزیت پایه آلومینایی، تقویت شده با کاربرد تیتانیوم و فاز فلزی آلومینیم-تیتانیوم، استفاده شده است. نتایج، نشان‌دهنده افزایش چقرمگی شکست کامپوزیت تا  $45 \text{MPa.m}^{1/2}$  به واسطه حضور فاز فلزی است (واکنش ۱).



همچنین می‌توان با بهره‌گیری از آلیاژسازی مکانیکی پیش از فرایند SHS، نانوکامپوزیت‌های  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-ZrB}_2$  با سختی و چقرمگی شکست بالا ( $19/5 \text{GPa}$  و  $4/1 \text{MPa.m}^{1/2}$ ) تولید کرد. در یک مطالعه دیگر، از فرایند سنتز خوداحتراقی و مرحله تکمیلی پرس ایزواستاتیک گرم در سیستم  $\text{Al-B}_2\text{O}_3\text{-TiO}_2\text{-C}$  (Kholghy et al., 2010)، برای تولید کامپوزیت فشرده سرامیکی  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-TiB}_2\text{-TiC-Fe}$  استفاده شده است. نتایج نشان می‌دهد که خواص مکانیکی این کامپوزیت (استحکام کششی و چقرمگی شکست به ترتیب  $3 \text{MPa}$  و  $20/5 \text{MPa.m}^{1/2}$ ) در مقایسه با

تفجوشی پلاسمای جرقه‌ای قرار گرفت. در مرحله بعد، ریزساختار، ترکیب فازی، خواص فیزیکی و مکانیکی نمونه‌های کامپوزیتی ساخته‌شده، بررسی شد. در ضمن برای تعیین دمای مناسب جهت فرایند قوس پلاسمای، آنالیز حرارتی بر روی مخلوط مواد اولیه همگن‌سازی‌شده برای هر سیستم انجام شد.

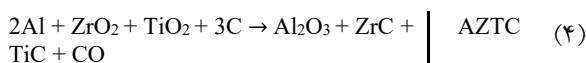
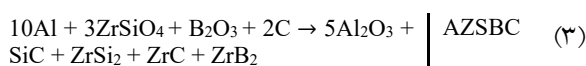
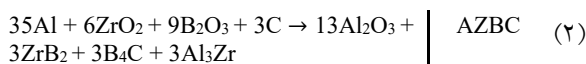
## ۲- مواد و روش تحقیق

### ۲-۱- مواد اولیه

در این مطالعه از پودرهای آلومینیم (Al)، اکسید بور ( $B_2O_3$ )، کربن فعال (C)، پودر زیرکونیا ( $ZrO_2$ )، پودر زیرکون ( $ZrSiO_4$ ) و پودر اکسید تیتانیوم ( $TiO_2$ ) محصول شرکت مرک آلمان با خلوص ۹۹/۹۹ درصد به‌عنوان مواد اولیه استفاده شد.

### ۲-۲- آماده‌سازی مواد اولیه

مخلوط مواد اولیه براساس ترکیب استوکیومتری مطابق واکنش‌های ۲ تا ۴ (جدول ۱)، توسط آسیاب گلوله‌ای سیاره‌ای (NanoSAT, PBM-210) با سرعت چرخش ۷۵۰ دور بر دقیقه و با نسبت وزنی گلوله زیرکونیا به پودر، ۵ به ۱، به مدت ۶ ساعت مخلوط و همگن شدند.



جدول ۱. ترکیب درصد وزنی نمونه‌های مورد استفاده در این مطالعه

شناسه نمونه	Al	ZrO <sub>2</sub>	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	C	ZrSiO <sub>4</sub>	TiO <sub>2</sub>
AZBC	۴۰/۲۵	۳۱/۵۱	۲۶/۷۱	۱/۵۳	-	-
AZSBC	۲۹/۹۳	-	۷/۷۲	۱/۳۳	۶۱/۰۱	-
AZTC	۱۲/۲۶	۵۵/۹۷	-	۱۳/۶۳	-	۱۸/۱۴

### ۲-۳- فرایند سنتز خوداحتراقی با مشعل

نمونه‌های مخلوط پودری همگن‌شده در سه سیستم، بعد از فشرده‌سازی با پرس سرد (قرص‌هایی با قطر ۴۰ و ارتفاع ۲

زمینه کامپوزیت  $Al_2O_3-ZrB_2$  و افزایش مقاومت به سایش است. نتایج بررسی سینتیک اکسیداسیون کامپوزیت  $M/ZrB_2/ZrO_2$  ( $M=Al, Mg$ ) ساخته‌شده به‌روش سنتز خوداحتراقی (Jalaly et al., 2013) در سیستم آلومینیم-اکسید بور-اکسید زیرکونیم و مرحله تکمیلی پرس گرم نشان می‌دهد که با افزایش زمان آسیاکاری و فعال‌سازی مکانیکی بیشتر، زمان انجام واکنش‌های احتراقی آلومینوترمیک یا منیزوترمیک کاهش می‌یابد. در شرایط مشابه، با به‌کارگیری منیزیم به جای آلومینیم، زمان انجام کامل واکنش از ۱۳ به ۶ دقیقه رسیده است و احتمال تجزیه زیرکونیا و به‌دنبال آن تشکیل  $ZrB_2$  بیشتر شده است. نتایج مطالعه در سیستم  $Al-ZrO_2-B_2O_3$  (Xiao et al., 2015) نشان می‌دهد که بعد از ذوب آلومینیم، واکنش سنتز احتراقی<sup>۱</sup> (CS) آغاز می‌شود و به‌دنبال آن Zr و  $Al_2O_3$  تشکیل می‌شوند. در مرحله بعدی، دانه‌های  $ZrB_2$  توسط واکنش مستقیم بین B و Zr ایجاد می‌شوند. آنها نشان داده‌اند که بهترین نسبت مولی ترکیبی برای تشکیل فازهای  $ZrB_2$  و  $Al_2O_3$  از مخلوط اولیه  $ZrO_2$ ،  $B_2O_3$  و Al به ترتیب ۳/۵، ۳ و ۱۱ است که خیلی نزدیک به نسبت استوکیومتری مربوط به واکنش بین آنها است.

هدف اصلی این تحقیق، بررسی امکان ساخت کامپوزیت پایه آلومینا با تقویت‌کننده‌هایی بر پایه زیرکونیم ( $ZrB_2$ ،  $ZrO_2$ )،  $ZrC$ ،  $Al_3Zr$ ) و دیگر ترکیبات مانند  $B_4C$ ، به روش سنتز خوداحتراقی درجا در سیستم‌های مختلف آلومینوترمیک و با بهره‌گیری از فرایند زینتر قوس پلاسماست. این برای نخستین بار است که از روش زینتر قوس پلاسمای برای فرایند سنتز احتراقی در سیستم‌های آلومینوترمیک مورد مطالعه ( $Al-ZrO_2$ - $B_2O_3$ -C،  $B_2O_3$ -C،  $Al-ZrSiO_4$ - $B_2O_3$ -C و  $Al-ZrO_2$ - $TiO_2$ -C)، استفاده می‌شود. در این تحقیق وابستگی خواص فیزیکی (چگالی و تخلخل) و مکانیکی (استحکام خمشی، سختی و چقرمگی) نمونه‌های کامپوزیتی به ریزساختار و نوع سیستم از مواد اولیه، مورد تجزیه و تحلیل قرار گرفت. در این پژوهش، مخلوط مواد اولیه به نسبت استوکیومتری مطابق واکنش در نظر گرفته‌شده برای هر سیستم، بعد از همگن‌سازی، مورد عملیات حرارتی سنتز احتراقی و زینتر (به‌طور هم‌زمان) با استفاده از فن

سازی شد؛ به گونه‌ای که از ترکیب قالب جلوگیری شده و نمونه‌های کامپوزیتی با چگالی قابل قبول به دست آید.

#### ۲-۶- مشخصه‌یابی

با هدف بررسی ترکیب فازی نمونه‌ها در مراحل مختلف، از آزمون پراش اشعه ایکس<sup>۴</sup> (XRD) (Panalytical, X'pertPro) استفاده شد. از پرتو تک‌فام مس با طول‌موج ۱/۵۴ آنگستروم، ولتاژ شتاب‌دهنده ۴۰kV و شدت جریان ۳۰mA استفاده شد. همچنین زمان شمارش ۰/۵ ثانیه، مقدار هر گام ۰/۰۲ درجه و منطقه بررسی بین ۱۰ تا ۸۰ درجه انتخاب شد. با هدف بررسی ریزساختار نمونه‌های کامپوزیتی، ابتدا سطح نمونه‌های برش‌خورده، به منظور حذف تغییر شکل ناشی از عملیات برش، با استفاده از کاغذهای سنباده با درجه زبری‌های مختلف (۲۰۰ تا ۱۵۰۰) آماده‌سازی شدند. سپس، عملیات پولیش کاری نمونه‌ها انجام شد. در انتها، نمونه‌ها جهت ایجاد یک زمینه قابل‌رؤیت از ریزساختار، با محلول اچ رقیق یک درصد حجمی فلئوئوریک‌اسید، حکاکی شدند. مشاهدات ریزساختاری نمونه‌های کامپوزیتی توسط دستگاه<sup>۵</sup> FESEM (VEGA, TESCAN, Czech Republic) انجام شد. پیش از آن، سطح نمونه‌ها با روکشی از طلا پوشش داده شد. برای تجزیه و تحلیل آنالیز عنصری بر روی ریزساختار، از طیف‌سنجی پراکندگی انرژی پرتو ایکس<sup>۶</sup> (EDS) استفاده شد. برای اندازه‌گیری چگالی ظاهری نمونه‌ها از روش ارشمیدس استفاده شد و با توجه به چگالی تئوری نمونه‌ها، چگالی نسبی و تخلخل نمونه‌های کامپوزیت محاسبه شد.

از دستگاه آزمون خمش<sup>۳</sup> نقطه‌ای (Houns field Universal, H25KS English) برای اندازه‌گیری استحکام خمشی نمونه‌های کامپوزیتی صیقل داده‌شده استفاده شد. این اندازه‌گیری مطابق با استاندارد (C1161-02) بر روی نمونه‌های استاندارد مکعب‌مستطیل با ابعاد ۳×۴×۲۲ mm<sup>۳</sup> و با سرعت بارگذاری ۰/۵ میلی‌متر بر دقیقه انجام شد. در هر لحظه مقدار نیرو برحسب کرنش ثبت شد تا در بیشینه نیروی اعمالی،

میلی‌متر)، تحت فرایند سنتز احتراقی به کمک مشعل قرار گرفتند. در این راستا فعال‌سازی حرارتی با شعله اکسی‌اسیتیلن انجام شد.

#### ۲-۴- آنالیز حرارتی

به منظور انتخاب دمای مناسب برای عملیات حرارتی زینتر پلاسما، انجام آزمون حرارتی افتراقی (DTA<sup>۱</sup>-TGA<sup>۱</sup>) پیش از فرایند، ضروری است (NETZSCH, STA 409). این آزمون در دمای ۱۴۰۰ سلسیوس، جو آرگون و نرخ گرمایش ۱۰ درجه سلسیوس بر دقیقه بر روی مخلوط‌های پودری همگن‌شده در سه سیستم، انجام شد.

#### ۲-۵- زینتر قوس پلاسما

فرایند زینتر قوس پلاسما<sup>۳</sup> به شکل درجا با استفاده از فن SPS (S.B.A, SPS12-80) انجام شد. برای این منظور، مخلوط‌های پودری همگن‌شده از مواد اولیه، پس از عبور از الک با مش ۵۰۰ (اندازه ذرات حدود ۲۵ میکرون)، درون قالب گرافیتی با قطر ۳۰mm ریخته شدند. برای پیشگیری از تماس مستقیم پودر با قالب و سنبه‌ها، پیرامون قالب و همچنین دو طرف بالا و پایین نمونه پودری با فویل گرافیتی به ضخامت ۱ میلی‌متر پوشانده شد. در ادامه، دمای ۱۲۰۰ درجه سلسیوس، فشار مکانیکی ۴۵MPa و جریان الکتریکی مستقیم پالسی، در تمام مدت فرایند اعمال شد. تغییرات دما به وسیله ترموکوپل که در غلافی از جنس کوارتز قرار گرفته بود، اندازه‌گیری شد. در نهایت، نمونه‌هایی با قطر و ضخامت متوسط به ترتیب ۳۰ و ۳ میلی‌متر به دست آمد. لازم به ذکر است که تاکنون کار مشابهی برای سیستم‌های مورد انجام در این تحقیق به روش قوس پلاسما انجام نشده است و تعیین پارامترهای دستگاه، براساس تجربیات قبلی مؤلف در سایر سیستم‌های آلومینوترمیک صورت گرفته است (Amirimoghaddam & Kalantar, 2025; Hoseinpour & Kalantar, 2024). در فرایند زینتر قوس پلاسما، پارامترهای سرعت حرارت‌دهی، میزان فشار پرس اعمالی و فشار گاز خنثی (آرگون) به صورت آزمون و خطا بررسی و بهینه

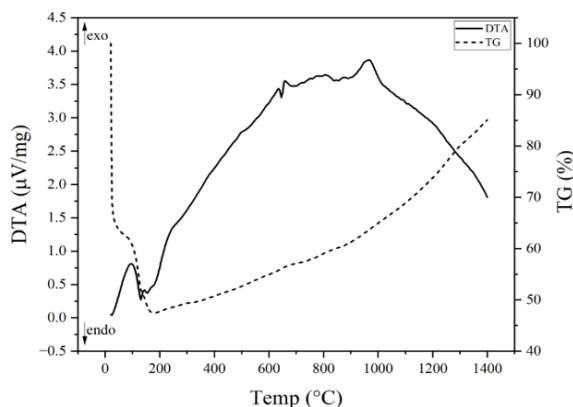
5. Field Emission Scanning Electron Microscopy  
6. Energy Dispersive Spectroscopy

1. Thermal Gravity Analysis  
2. Differential Thermal Analysis  
3. Spark plasma Sintering  
4. X-ray Diffraction

گیرد. به‌همین دلیل در این مطالعه، علاوه بر اکسید بور، از کربن نیز استفاده شده است.

### ۳-۱- نتایج آنالیز حرارتی

مطابق شکل ۱، که نتایج آنالیز حرارتی نمونه AZBC (سیستم  $Al-ZrO_2-B_2O_3-C$ ) را نشان می‌دهد، یک پیک گرمازا در دمای ۹۵ درجه سلسیوس مشاهده می‌شود که مربوط به سوختن مواد آلی است. همچنین یک پیک گرماگیر در دمای ۱۳۰ درجه سلسیوس ظاهر شده است که ناشی از خروج رطوبت نمونه است (Jalaly et al., 2013). در بازه دمایی ۱۳۶ تا ۶۴۷ درجه سلسیوس، یک شیب مثبت در منحنی DTA مشاهده می‌شود که می‌تواند مربوط به انجام تدریجی واکنش آلومینوترمیک باشد (واکنش ۲). پیک گرماگیر در دمای ۶۴۷ درجه سلسیوس، مربوط به ذوب آلومینیوم است. بعد از تشکیل مذاب آلومینیم، به دلیل فعال شدن آن، واکنش آلومینوترمیک شدت می‌یابد؛ به طوری که گرمایی در حدود ۱۰۰۰ درجه سلسیوس به بیشینه خود می‌رسد که این پدیده، بیانگر تکمیل واکنش آلومینوترمیک (واکنش ۲) به صورت خوداحتراقی است. همچنین حضور کربن به عنوان احیاکننده، زمینه‌ساز تجزیه زیرکونیا شده و بدین ترتیب در همین محدوده دمایی است که آلومیناید زیرکونیم ( $Al_3Zr$ ) و کاربید بور تشکیل می‌شوند (با توجه به نتایج تفرق اشعه ایکس در شکل ۲)؛ باین حال، بورید زیرکونیم مشاهده نمی‌شود که به دلیل شرایط ترمودینامیکی و سینتیکی سخت‌تر برای تشکیل آن است (Mishra et al., 2007).



شکل ۱. آنالیز حرارتی DTA-TG برای سیستم AZBC تحت جو گاز آرگون با نرخ گرمایشی ۱۰ درجه بر دقیقه بعد از آسیابکاری

شکست نمونه رخ دهد. در نهایت، مقدار استحکام خمشی نمونه‌ها طبق معادله (۵)، برحسب مگاپاسکال محاسبه شد.

$$\sigma = 1/5 \frac{PD}{BW^2} \quad (5)$$

P نیروی شکست، D فاصله تکیه‌گاهی که برابر ۱۵ میلی‌متر است، B پهنا یا قطر نمونه و W ضخامت نمونه است. برای تعیین چقرمگی شکست، نمونه‌های دارای پیش‌ترک در دستگاه خمشی سه‌نقطه‌ای تحت بارگذاری قرار گرفتند و با استفاده از رابطه (۶) چقرمگی شکست محاسبه شد.

$$K_{IC} = \sigma_f \sqrt{\pi a} Y_I \quad (6)$$

که در این رابطه،  $K_{IC}$  چقرمگی شکست، a طول شکاف ایجادشده در نمونه (پیش‌ترک)،  $\sigma_f$  استحکام شکست نمونه و  $Y_I$  ضریب شدت تنش بی‌بعد است که وابسته به  $a/R$  بوده و با استفاده از رابطه زیر محاسبه می‌شود.

$$Y_I = (-1/297 + 9/516 (\frac{S}{D})) - (0/47 + 16/457 (\frac{S}{D}))\beta + (1/071 + 34/401 (\frac{S}{D}))\beta^2 \quad (7)$$

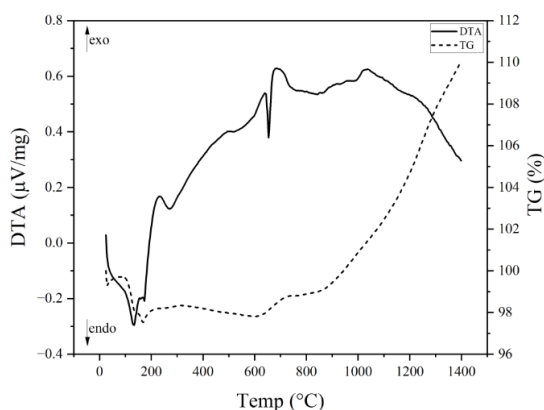
که در این رابطه S فاصله بین نقاط تکیه‌گاهی (m)، D قطر نمونه،  $\beta$  نسبت طول شکاف به شعاع نمونه و R شعاع نمونه است (Kuruppu et al., 2014). اندازه‌گیری سختی نمونه‌های کامپوزیتی با استفاده از دستگاه سختی‌سنجی ویکرز مدل Instron Wolpert و فرورونده الماسی با هندسه هرمی مربع‌القاعده و مطابق با استاندارد ASTM-E-384 انجام شد (حسینی و عبدالعلی‌زاده، ۱۳۹۶). در این آزمون، بار اعمالی ۲۰ نیوتن به مدت ۱۰ ثانیه بر نمونه‌ها اعمال شد و میانگین سه اندازه‌گیری به‌عنوان مقدار سختی، در نظر گرفته شد.

### ۳- نتایج و بحث

با توجه به آنچه در بخش مقدمه بیان شد، می‌توان نتیجه گرفت که در کامپوزیت پایه زیرکونیا در سیستم  $Al/B_2O_3/ZrO_2$ ، قابلیت احیای اکسید بور توسط آلومینیم بالا است و فرایند، از نوع خوداحتراقی است. همچنین به دلیل دمای بالای تولیدشده در این واکنش، شرایط لازم برای احیای آلومینوترمیک زیرکونیا نیز فراهم می‌شود (Xiao et al., 2015)؛ به عبارتی، بخش قابل توجهی از گرمای تولیدشده در اثر احیای اکسید بور توسط آلومینیم، می‌تواند برای احیاء  $ZrO_2$  در حضور کربن مورد استفاده قرار

Amirimoghaddam & Kalantar, 2025; Hoseinpour &

(Kalantar, 2024

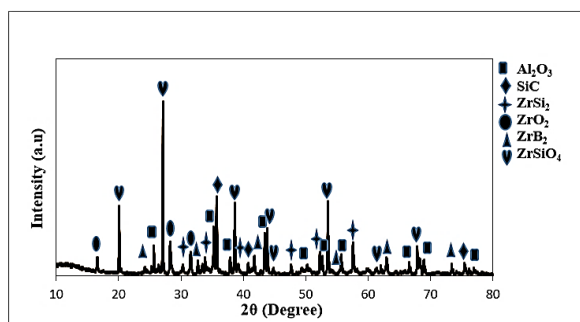


شکل ۳. آنالیز حرارتی DTA-TG برای سیستم AZSBC تحت جو

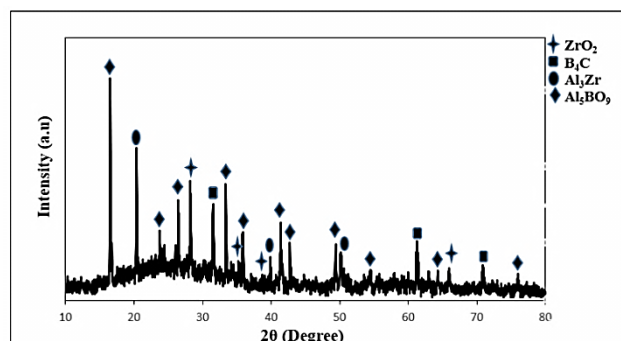
گاز آرگون با نرخ گرمایشی ده درجه بر دقیقه بعد از آسیابکاری

پیک اصلی مربوط به واکنش آلومینوترمیک در بازه دمایی ۲۰۰ تا ۱۱۰۰ درجه سلسیوس مشاهده می‌شود که براساس نتایج پراش اشعه ایکس این نمونه (شکل ۴)، فازهای دی‌سیلیسید زیرکونیم ( $ZrSi_2$ )، دی‌بورید زیرکونیم ( $ZrB_2$ )،  $ZrO_2$ ،  $SiC$  و  $Al_2O_3$  تشکیل شده‌اند. برای شناسایی این فازها از کارت‌های استاندارد ( $Al_2O_3$ : (01-071-1124)،  $SiC$ : (01-075-0254)،  $ZrB_2$ : (00-006-0566)،  $ZrSi_2$ : (00-006-0566)،  $ZrO_2$ : (01-083-0944)،  $ZrSiO_4$ : (96-900-0686) و 034-0423) استفاده شده است.

می‌توان گفت که در ابتدا، واکنش آلومینوترمیک بین آلومینیم و اکسید بور رخ می‌دهد و در نتیجه آن، شدت احتراق در دمای حدود ۷۰۰ درجه سلسیوس به بیشینه خود می‌رسد؛ به طوری که بخشی از زیرکون به زیرکونیا و سیلیس تجزیه می‌شود و به دنبال آن، سیلیس حاصل، توسط کربن احیا شده و منجر به تشکیل کاربید سیلیسیم می‌شود (از ۱۱۰۰ درجه سلسیوس به بالا). منفی



شکل ۴. آنالیز XRD برای نمونه AZSBC بعد از آنالیز حرارتی



شکل ۲. آنالیز XRD برای نمونه AZBC بعد از آنالیز حرارتی

شکل ۲ نتایج آزمون پراش پرتو ایکس (XRD) نمونه AZBC (سیستم  $Al-ZrO_2-B_2O_3-C$ ) را بعد از آنالیز حرارتی نشان می‌دهد. برای شناسایی فازهای موجود از کارت‌های استاندارد ( $ZrO_2$ : (01-086-1449)،  $B_4C$ : (00-001-1163)،  $Al_3Zr$ : (00-048-1385) و  $Al_5BO_9$ : (01-080-2300) استفاده شد. نتایج نشان داد که فازهای تشکیل شده در پودر کامپوزیتی شامل  $ZrO_2$ ،  $Al_3Zr$ ،  $B_4C$  و  $Al_5BO_9$  هستند. حضور این فازها، تفسیر ارائه شده برای منحنی آنالیز حرارتی را تأیید می‌کند. حضور فاز  $ZrO_2$  باقی‌مانده، حاکی از عدم تکمیل واکنش آلومینوترمیک است که به دلیل پایداری بالای زیرکونیا است (Jalaly et al., 2013). وجود پیک اصلی  $Al_5BO_9$  در ترکیب فازی بیانگر واکنش بین  $Al_2O_3$  تشکیل شده طی واکنش آلومینوترمیک با اکسید بور اضافی است. لازم به ذکر است که فقط مقدار کمی از بور در تشکیل کاربید بور مصرف شده است. در سیستم  $Al_2O_3 - B_2O_3$  ترکیب‌های مختلفی نظیر  $Al_5BO_9$ ،  $Al_{18}B_2O_{15}$  و  $Al_4B_2O_9$  وجود دارند که بورات آلومینیم ( $Al_5BO_9$ )، دسته خاصی از مواد با ساختاری از نوع مولایت (به طور خاص به نام بورومولایت) است که نقطه ذوب آن ۱۹۵۰ درجه سلسیوس است و به دلیل چگالی کم، استحکام مکانیکی بالا و ضریب انبساط حرارتی کم، اهمیت قابل توجهی در صنعت سرامیک دارد (Sen et al., 2022).

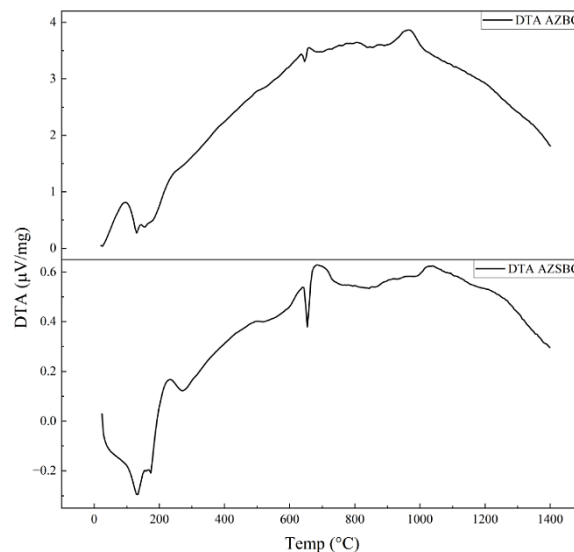
شکل ۳ نتایج آنالیز حرارتی برای نمونه AZSBC (سیستم  $Al-ZrSiO_4-B_2O_3-C$ ) را نشان می‌دهد. برای این سیستم یک پیک گرماگیر در ۲۶۹ درجه سلسیوس وجود دارد که مربوط به تجزیه  $B(OH)_3$  به  $B_2O_3$  است. در واقع، مقدار کمی از  $B_2O_3$  در فرایند آسیابکاری در اثر جذب رطوبت به  $B(OH)_3$  تبدیل می‌شود

احتراق زودتر به اوج می‌رسد (۷۰۰ برای زیرکون در برابر ۱۰۰۰ درجه سلسیوس برای زیرکونیا). چنانچه فن ساخت و شرایط حرارتی به‌گونه‌ای تنظیم شود که بتوان دما را با سرعت بالا افزایش داد تا حداقل دمای لازم برای خوداحتراقی شدن واکنش آلومینوترمیک فراهم شود (واکنش ۳)، زیرکون تجزیه شده و فازهای تقویت‌کننده متعددی مانند سیلیسید زیرکونیم، کاربید زیرکونیم، کاربید سیلیسیم و بورید زیرکونیم تشکیل می‌شوند. به‌همین دلیل، در این مطالعه از روش زیترو قوس پلازما به‌صورت درجا استفاده شد که نتایج آن شامل حذف کامل زیرکون و تشکیل قابل‌توجه فازهای تقویت‌کننده، به‌ویژه کاربید و بورید زیرکونیم، در کنار اکسید آلومینیم در سیستم آلومینوترمیک حاوی زیرکون (واکنش ۳) است. دلیل عدم تجزیه زیرکون و ضعیف بودن پیک‌های مربوط به ترکیبات تقویت‌کننده در شرایط آنالیز حرارتی (شکل ۴)، این است که شرایط خوداحتراقی بودن فراهم نمی‌شود.

### ۲-۳- نتایج مربوط به فرایند سنتز احتراقی

برای بررسی اینکه واکنش‌های آلومینوترمیک در سیستم‌های مورد مطالعه به‌صورت خوداحتراقی یا احتراقی انجام می‌شوند، هر یک از مخلوط‌های مواد اولیه تحت آزمون تعیین دمای اشتعال با استفاده از مشعل قرار گرفتند. نتایج این آزمون، نشان داد که واکنش‌ها در هر سه سیستم به صورت احتراقی رخ می‌دهند و در هیچ یک از شرایط آزمایش، صرف‌نظر از شدت شعله یا فاصله نازل از سطح نمونه، حالت خوداحتراقی برقرار نشد؛ به‌عبارت‌دیگر، برای ادامه احتراق و پیشروی جبهه احتراق لازم بود مشعل تا پایان فرایند، روشن باقی بماند. دلیل اصلی آن، به پایداری نسبی زیرکونیا باز می‌گردد؛ به‌طوری‌که زیرکونیا به‌عنوان رقیق‌کننده مخلوط ترمیت عمل کرده و به‌طور قابل‌توجهی از شدت احتراق می‌کاهد. در نتیجه، آلومینیم نمی‌تواند به‌راحتی اکسیژن زیرکونیا را دریافت کند و گرمای آزادشده واکنش نیز در حدی نیست که دمای احتراق را به حداقل دمای لازم برای خوداحتراقی، طبق استانداردهای گزارش شده (بالتر از ۱۸۰۰ کلوین)، برساند (Pacheco, 2007). لازم به ذکر است که فاصله بین منحنی‌های اکسیداسیون زیرکونیم و آلومینیم در دیاگرام الینگهام، اندک است. در این پژوهش، بالاترین دمای احتراق اندازه‌گیری شده ۱۷۲۰ درجه سلسیوس بود. براین‌اساس،

بودن شیب منحنی DTA پس از دمای ۱۱۰۰ درجه سلسیوس (شکل ۳) نشان‌دهنده گرماگیر بودن واکنش‌های تجزیه زیرکون و احیاء سیلیس است. همچنین وجود پیک اصلی مربوط به  $ZrSiO_4$ ، بیانگر باقی‌ماندن مقدار قابل‌توجهی از زیرکون و عدم تکمیل واکنش آلومینوترمیک است که این پدیده می‌تواند ناشی از پایداری ترمودینامیکی زیرکون باشد. چنانچه شرایط فرایند SPS به‌نحوی بهینه‌سازی شود که فازهای  $SiC$  و  $ZrSi_2$  به میزان بیشتری تشکیل شوند، انتظار می‌رود این امر، تأثیر بیشتری بر بهبود خواص کامپوزیت خواهد داشت. در نهایت، نتایج منحنی‌های آنالیز حرارتی نشان می‌دهد که در دماهای بالاتر از ۱۱۰۰ درجه سلسیوس تحول خاصی رخ نمی‌دهد؛ بدین ترتیب در این پژوهش، دمای ۱۲۰۰ درجه سلسیوس به‌عنوان دمای زیترو در فرایند قوس پلازما در نظر گرفته شد. با مقایسه نتایج آنالیز حرارتی نمونه حاوی زیرکون (AZSBC) با نمونه حاوی زیرکونیا (AZBC) (شکل ۵)، می‌توان مشاهده کرد که با جایگزینی زیرکون به جای زیرکونیا، شیب منحنی در ناحیه صعود، مثبت‌تر و تندتر می‌شود که این موضوع، بیانگر احتراق نسبتاً شدیدتر واکنش آلومینوترمیک ۳ در مقایسه با واکنش ۲ است و می‌تواند ناشی از پایداری بیشتر زیرکونیا نسبت به زیرکون باشد. علاوه‌براین، با مقایسه بیشینه‌ها مشاهده می‌شود که شدت پیک مربوط به نمونه حاوی زیرکون بالاتر از نمونه حاوی زیرکونیا است (بالتر از ۰/۶ میکروولت بر میلی‌گرم). همچنین براساس منحنی DTA، در نمونه حاوی زیرکون، شدت



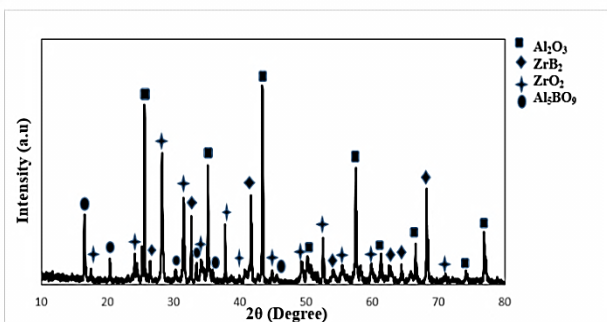
شکل ۵. حالت مقایسه‌ای از شکل‌های ۱ و ۳

فرایند با تدابیر خاص و تنظیم دقیق عوامل کنترل‌کننده مرتبط با این روش، انجام شود.

### ۳-۳- نتایج مربوط به فرایند زینتر قوس پلاسما

#### ۳-۳-۱- ترکیب فازی

نتایج حاصل از آنالیز فازی XRD برای سیستم AZBC (شکل ۷)، نشان‌دهنده تشکیل فاز غالب آلومیناید زیرکونیم است؛ به عبارت دیگر، با حضور آلومینیم تمایل برای تشکیل آلومیناید زیرکونیم بیشتر از بورید زیرکونیم است. لازم به ذکر است در شناسایی فازها از کارت‌های استاندارد  $Al_2O_3$ : (96-034-0423)،  $Zr_2Al_3$ : (00-016-0075)،  $ZrO_2$ : (96-900-5834) استفاده شد. نتایج حاصل از آنالیز فازی XRD برای نمونه AZSBC پس از فرایند SPS (شکل ۸)، نشان‌دهنده تشکیل فازهای  $ZrSi_2$ ،  $ZrC$ ،  $ZrB_2$  و  $Al_2O_3$  است. در شناسایی این فازها از کارت‌های استاندارد  $ZrB_2$ : (00-034-0423)،  $ZrC$ : (96-900-8778)،  $ZrSi_2$ : (00-006-0566) و  $SiC$ : (01-073-1664) استفاده شد. در مقایسه با نمونه قبلی می‌توان گفت که با جایگزینی سیلیکات زیرکونیم به جای زیرکونیا، واکنش‌های آلومینوترمیک و احیای کربوترمیک با تنوع بیشتری در جهت تشکیل فازهای تقویت‌کننده پیش می‌روند. این موضوع می‌تواند ناشی از واکنش‌پذیری بیشتر  $ZrSiO_4$  نسبت به  $ZrO_2$  باشد. با استخراج داده‌ها از منابع معتبر (صدرنژاد، ۱۳۷۸)، مقادیر آنتالپی و آنتروپی استاندارد برای واکنش‌های ۲ تا ۴ محاسبه شد و سپس تغییرات انرژی آزاد استاندارد واکنش‌ها مطابق رابطه ۸ به دست آمد.



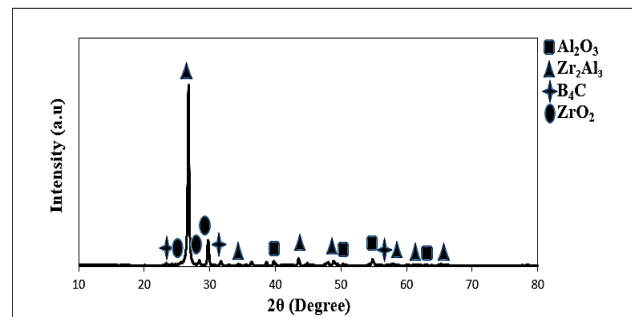
شکل ۶. آنالیز XRD برای نمونه AZBC بعد از فرایند سنتز احتراقی با

شعله اکسی‌اسیتیلن

تصمیم گرفته شد برای تولید پودر کامپوزیتی از فرایند درجا به روش زینتر قوس پلاسما استفاده شود تا بتواند شرایط خوداحتراقی را ایجاد کند.

شکل ۶، نتایج آنالیز XRD برای نمونه AZBC (سیستم  $Al-ZrO_2-B_2O_3-C$ ) را بعد از فرایند سنتز احتراقی با مشعل، نشان می‌دهد. برای شناسایی پیک‌های پراش، از کارت‌های استاندارد  $ZrB_2$ : (00-034-0423)،  $Al_2O_3$ : (96-230-0376) و  $ZrO_2$ : (96-900-7486) استفاده شد. فازهای تشکیل‌شده در پودر کامپوزیتی شامل  $ZrB_2$ ،  $Al_2O_3$  و  $ZrO_2$  هستند که نتایج با تحلیل‌های ارائه‌شده از منحنی آنالیز حرارتی همخوانی دارد. وجود فاز  $ZrO_2$  باقی‌مانده، حاکی از عدم تکمیل واکنش آلومینوترمیک است که به سبب پایداری بالای زیرکونیا است. فاز اصلی، یک کمپلکس از  $Al_2O_3$  و  $B_2O_3$  به شکل  $Al_5BO_9$  است که بیانگر واکنش  $Al_2O_3$  با بور و یا با اکسید بور باقی‌مانده است.

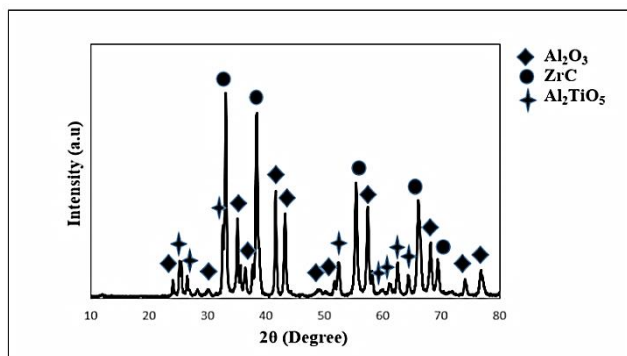
با توجه به این که نتایج فرایند سنتز احتراقی با مشعل، رضایت‌بخش نبود و فازهای موردنظر مانند آلومیناید، دی‌بورید و کاربید زیرکونیم تشکیل نشد، تصمیم بر آن شد که تولید قطعات کامپوزیتی به صورت درجا و یک‌مرحله‌ای (تشکیل هم‌زمان فازهای زمینه و تقویت‌کننده) از طریق فرایند زینتر قوس پلاسما انجام شود؛ با این حال، تجربیات پیشین نشان می‌دهد که انجام فرایندهای درجا به روش زینتر قوس پلاسما در اغلب سیستم‌های آلومینوترمیک می‌تواند باعث مشکلاتی از جمله شکست قالب شود (حسین‌زاده، ۱۳۹۸). بنابراین لازم است این



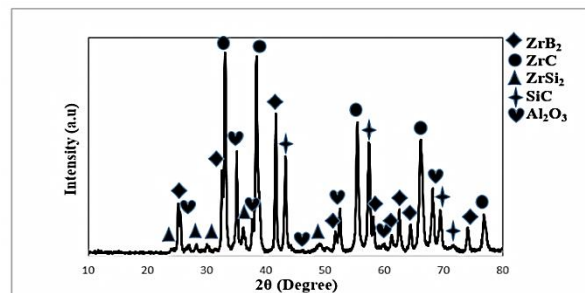
شکل ۷. آنالیز فازی نمونه AZBC زینترشده در دمای ۱۲۰۰ درجه

سلسیوس با نرخ حرارت دهی ۱۵۰ درجه سلسیوس بر دقیقه و فشار اعمالی ۴۵ مگاپاسکال در فرایند قوس پلاسما

مطابق نتایج آنالیز پراش پرتو ایکس (شکل ۹)، در نمونه AZTC (سیستم Al-ZrO<sub>2</sub>-TiO<sub>2</sub>-C) پس از فرایند زینتر قوس پلاسما، فازهای Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>، ZrC و Al<sub>2</sub>TiO<sub>5</sub> تشکیل شده‌اند. عدم مشاهده فازهای بین‌فلزی حاوی زیرکونیم و تیتانیوم، همراه با تشکیل کاربید زیرکونیم و حضور پیک‌های شاخص و با شدت بالای این فاز در طیف اشعه ایکس، نشان از احیای مؤثرتر زیرکونیا در سیستم AZTC است. در واقع، با جایگزینی اکسید تیتانیوم به جای اکسید بور در این سیستم، واکنش آلومینوترمیک با شدت بالاتری نسبت به سیستم AZBC انجام می‌شود و دمای احتراق بالاتری ایجاد می‌شود که این شرایط، زمینه را برای احیاء زیرکونیا و تشکیل کاربید تیتانیوم فراهم می‌کند. این پدیده به منفی‌تر بودن تغییرات انرژی آزاد واکنش ۴ نسبت به واکنش ۱ (روابط ۹ و ۱۱) و همچنین بالاتر بودن منحنی اکسیداسیون تیتانیوم نسبت به بور در دیاگرام الینگهام نسبت داده می‌شود. همچنین در این سیستم مشابه سیستم‌های قبلی، کمپلکسی از اکسید آلومینیم و تیتانیوم تشکیل می‌شود (تیتانات آلومینیم). برای شناسایی فازها از کارت‌های استاندارد (ZrC:(00- Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:(96-900-9672) و Al<sub>2</sub>TiO<sub>5</sub>:(01-070-1434) و 019-1487) استفاده شده است.



شکل ۹. آنالیز فازی نمونه AZTC زینتر شده در دمای ۱۲۰۰ درجه سلسیوس با نرخ حرارت دهی ۱۵۰ درجه سلسیوس بر دقیقه و فشار اعمالی ۴۵ مگاپاسکال در فرایند قوس پلاسما



شکل ۸. آنالیز فازی نمونه AZSBC زینتر شده در دمای ۱۲۰۰ درجه سلسیوس با نرخ حرارت دهی ۱۵۰ درجه سلسیوس بر دقیقه و فشار اعمالی ۴۵ مگاپاسکال در فرایند قوس پلاسما

$$\Delta G^{\circ}_{298} = \Delta H^{\circ}_{298} - \Delta S^{\circ}_{298} \quad (۸)$$

که نتایج آن برای واکنش‌های فوق به ترتیب در روابط ۹ تا ۱۱ آمده است.

$$\Delta G^{\circ}_T = (-5427138) + T \times (542.39) \text{ J} \quad \text{AZBC} \quad (۹)$$

$$\Delta G^{\circ}_T = (-1752135) + T \times (255.72) \text{ J} \quad \text{AZSBC} \quad (۱۰)$$

$$\Delta G^{\circ}_T = (-703750) - T \times (547.98) \text{ J} \quad \text{AZTC} \quad (۱۱)$$

مطابق نتایج ترمودینامیکی به دست آمده، برای سیستم AZSBC، تغییرات انرژی آزاد واکنش در محدوده دمایی فرایند SPS و حتی در دماهای بالاتر، منفی است؛ در حالی که در سیستم‌های AZTC و AZBC چنین نیست؛ به طوری که در سیستم AZBC، حداکثر دمایی که در آن تغییرات انرژی آزاد منفی است، ۷۲۷ درجه سلسیوس و در سیستم AZTC این دما، ۱۰۲۷ درجه سلسیوس است. به این ترتیب، نتایج فوق تأییدکننده نتایج آنالیز حرارتی افتراقی و تفرق اشعه ایکس در سیستم AZSBC است که در آن ترکیبات بین‌فلزی با تنوع بیشتر و با شدت پیک‌های بالاتر حاصل شده است. لازم به ذکر است که در سیستم AZSBC، دی‌سیلیسید زیرکونیم تشکیل شد که مشابه دی‌بورید زیرکونیم، یک ترکیب بین‌فلزی با سختی، مدول الاستیک، پایداری شیمیایی و حرارتی بالایی است. این ترکیبات به دلیل ضریب انبساط حرارتی پایین و هدایت حرارتی نسبتاً خوب می‌توانند مقاومت به شوک حرارتی کامپوزیت‌های حاوی خود را به طور قابل توجهی افزایش دهند. این در حالی است که شکنندگی و تردی کامپوزیت را کاهش می‌دهند (Rendtorff et al., 2012).

### ۲-۳-۳- چگالی نسبی و تخلخل

چگالی نسبی نمونه‌های کامپوزیتی متأثر از نوع و درصد فازهای تشکیل شده و در نتیجه، تابع نوع سیستم مواد اولیه است؛ البته در صورتی که سایر شرایط را مشابه در نظر بگیریم. چنانچه بین فازها از نظر ترشوندگی تطابق مناسبی وجود نداشته باشد، همجوشی بین ذرات به خوبی انجام نمی‌شود و اتصال بین آنها ضعیف خواهد بود؛ در نتیجه، عیوب ریزساختاری مانند ریزترک‌ها و در مقیاس بزرگ‌تر، تخلخل ایجاد می‌شوند. میزان تخلخل در سیستم‌های مورد استفاده در این مطالعه که حاوی کربن هستند، به مقدار کربن اولیه و این که کربن به چه نسبتی در فاز کاربید و به چه نسبتی به شکل گازهای منواکسید و دی‌اکسید کربن درمی‌آید، بستگی دارد. جدول ۲، چگالی نسبی و درصد تخلخل نمونه‌های کامپوزیتی زیت‌شده شامل AZBC، AZSBC و AZTC را نشان می‌دهد. لازم به ذکر است که چگالی تئوری نمونه‌های کامپوزیتی، براساس قانون مخلوط‌ها در کامپوزیت‌ها و براساس ترکیب فازی استوکیومتری آنها محاسبه شد که اعداد ۳/۹۷، ۴/۹۳ و ۴/۰۴ گرم بر سانتی‌متر مکعب به ترتیب برای نمونه‌های AZBC، AZSBC و AZTC به دست آمد  $\rho_{comp} = \sum \rho_i V_i$  که در آن  $V_i$  و  $\rho_i$  به ترتیب کسر حجمی و چگالی فاز  $i$  هستند).

جدول ۲. داده‌های مربوط به چگالی نسبی، درصد تخلخل و خواص مکانیکی برای نمونه‌های کامپوزیتی پس از عملیات زینتر

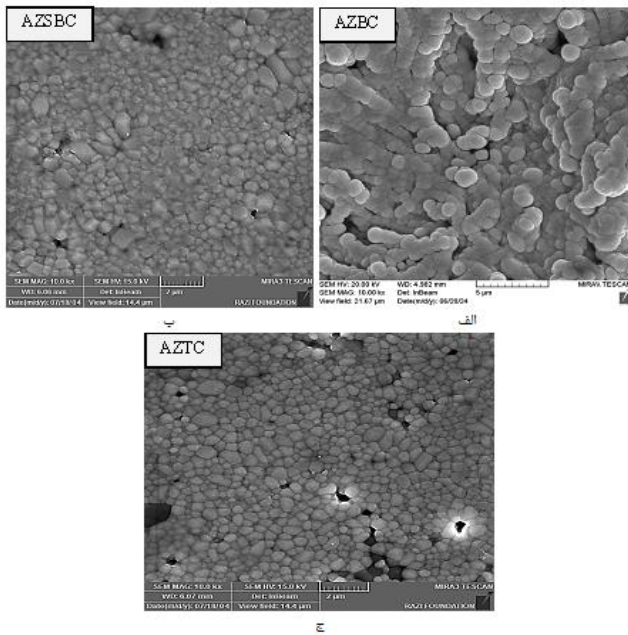
قوس پلاسما

خواص ↓ شناسه نمونه ←	AZTC	AZSBC	AZBC
درصد چگالی نسبی	۷۲±۷	۹۲±۳	۸۵±۵
درصد تخلخل	۲۸	۸	۱۵
سختی (Kgf/mm <sup>2</sup> )	۶۲۳±۱۷	۱۱۵۹±۲۳	۴۷۹±۱۵
استحکام (MPa)	۱۵۰±۱۳	۲۷۱±۹	۱۷۹±۱۰
چقرمگی شکست (MPa.m <sup>1/2</sup> )	۶/۱۴±۰/۵	۸/۷۶±۰/۳	۵/۵۶±۰/۷

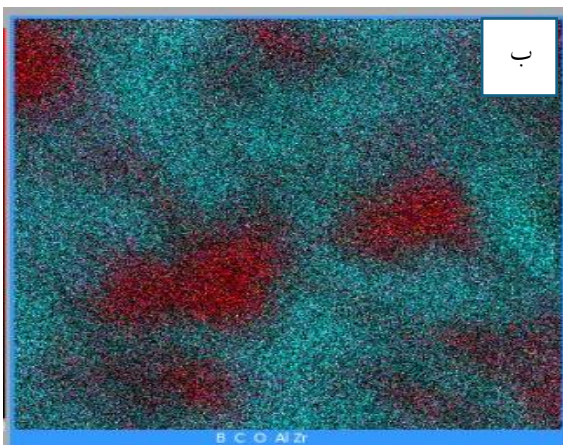
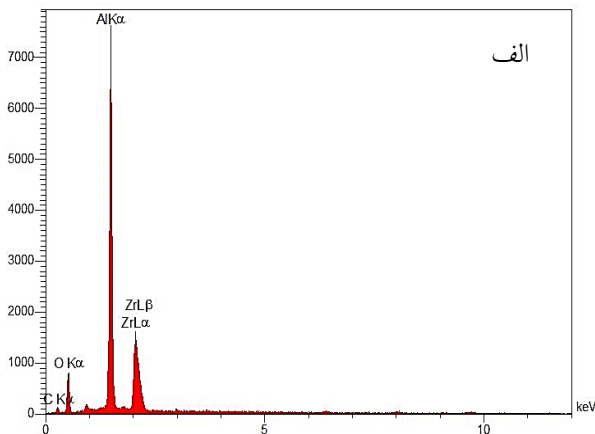
مطابق جدول ۲، نمونه AZSBC دارای بالاترین درصد چگالی نسبی است؛ در واقع، کربن در این نمونه عمدتاً به صورت فازهای کاربید زیرکونیم (به عنوان فاز غالب) و کاربید سیلیسیم تشکیل شده و سهم کمتری از آن به شکل گازهای منواکسید یا دی‌اکسید کربن از سیستم خارج می‌شود. علاوه بر این، به دلیل حضور اکسید بور که واکنش‌دهی بالاتری با آلومینیم نسبت به اکسید تیتانیم دارد و همچنین حضور زیرکون که نسبت به زیرکونیا واکنش‌پذیرتری بالاتری دارد، گرمایی بیشتری در فرایند زینتر قوس پلاسما ایجاد می‌شود و در نتیجه، درجه زینتر شدن افزایش یافته و چگالی نسبی این سیستم در مقایسه با سایر نمونه‌ها، به بیشترین مقدار می‌رسد.

### ۳-۳-۳- خواص مکانیکی و ریزساختار

با توجه به نتایج اندازه‌گیری ارائه شده در جدول ۲، مشاهده می‌شود که با تغییر ترکیب فازی نمونه‌ها، سختی آنها تغییر می‌کند؛ به طوری که نمونه AZSBC به دلیل حضور فازهای سختی مانند کاربید سیلیسیم و دی‌سیلیسید و دی‌بورید زیرکونیم، بالاترین سختی را نسبت به سایر نمونه‌ها نشان می‌دهد. همچنین در نمونه AZTC، به دلیل حضور چشمگیر کاربید زیرکونیم و فاز آلومینا، سختی نسبت به نمونه AZBC بیشتر است. براساس نتایج حاصل از اندازه‌گیری و محاسبه، مقادیر استحکام خمشی برای نمونه‌های AZBC، AZSBC و AZTC به ترتیب ۱۷۹، ۲۷۱ و ۱۵۰ مگاپاسکال به دست آمده است (جدول ۲). همان‌طور که پیش‌تر گفته شد در نمونه AZSBC به دلیل حضور سیلیکات زیرکونیم در ترکیب مواد اولیه، واکنش‌ها کامل‌تر انجام شده و در نتیجه، ترکیبات کاربید، دی‌بورید و دی‌سیلیسید زیرکونیم و همچنین کاربید سیلیسیم به خوبی در آن شکل گرفته‌اند (شکل ۸). از طرفی، همین نمونه چگالی نسبی بالاتری از خود نشان می‌دهد که این موضوع، بالاتر بودن استحکام خمشی آن را توجیه می‌کند. علاوه بر این، ریزساختار نمونه AZSBC (شکل ۱۰) از همگنی بیشتر، تراکم بالاتر و دانه‌بندی ریزتری نسبت به سایر نمونه‌ها برخوردار است که این امر تأییدی بر بالاتر بودن چگالی، سختی و استحکام خمشی آن محسوب می‌شود. در مقابل، برای نمونه AZTC، حفره‌های توخالی در تصویر میکروسکوپی مشاهده می‌شوند که تأییدی بر پایین‌تر بودن استحکام این نمونه است. همچنین در نمونه AZBC، ناهمگنی ریزساختار و وجود



شکل ۱۰. تصاویر FESEM برای نمونه‌های مختلف کامپوزیتی بعد از SPS الف: AZBC ب: AZSBC ج: AZTC



شکل ۱۱. طیف‌سنجی پراش انرژی پرتو ایکس (EDAX) برای نمونه AZBC الف: آنالیز ب: توزیع و پراکندگی عناصر (آلومینیم سبز، اکسیژن قرمز و زیرکونیم نقاط تیره‌رنگ)

حفره‌های بزرگ در آن به وضوح قابل مشاهده است. برای دو سیستم حاوی اکسید بور به دلیل سرعت واکنش دهی بالاتر آن با آلومینیم و گرم‌مازیایی بیشتر در مرحله زینتر قوس پلاسما، ریزساختاری متراکم‌تر همراه با دانه‌بندی ریزتر حاصل شده است. همچنین در مقایسه بین این دو سیستم بردار، سیستمی که شامل زیرکون است، به دلیل واکنش پذیری بیشتر آن نسبت به زیرکونیا و قابلیت زینترپذیری بالاتر، بالاترین چگالی نسبی و متراکم‌ترین ریزساختار را از خود نشان می‌دهد.

مطابق نتایج طیف‌سنجی پراش انرژی پرتو ایکس برای نمونه AZBC در شکل ۱۱، فراوانی بیشتر عنصر آلومینیم نسبت به زیرکونیم (شکل ۱۰-الف) تأییدی بر تشکیل فاز آلومیناید زیرکونیم ( $Zr_2Al_3$ ) به عنوان فاز اصلی در طیف تفرق اشعه ایکس (شکل ۷) است. همچنین نقشه توزیع عناصر در شکل ۱۱-ب، نشان‌دهنده توزیع یکنواخت عناصر  $O$ ،  $Zr$ ،  $C$ ،  $B$  در زمینه آلومینیومی نمونه است. مطابق جدول ۲، مقدار چقرمگی نیز برای نمونه AZSBC از سایر نمونه‌ها بیشتر است. این موضوع را می‌توان به چگالی نسبی بالاتر، ریزساختار همگن‌تر و تراکم بیشتر این نمونه نسبت داد. از طرفی، تصاویر FESEM از سطح مقطع شکست نمونه‌های کامپوزیتی (شکل ۱۲)، نشان‌دهنده شکست زیر و خشن‌تر (سطح شکست ناهموار) در نمونه AZSBC است که بیانگر شکست بین‌دانه‌ای و نیمه‌ترد است. در این نمونه حفره‌هایی در مقطع شکست به خوبی دیده می‌شوند که ناشی از خارج‌شدگی دانه‌ها است؛ به عبارتی، شکست بین دانه‌ای برای آن مشهود است؛ در مقابل، در نمونه AZTC شکست بین‌دانه‌ای کمتر بوده و با توجه به وجود رخ‌های شکست و کلیواژ شدن، شکست ترد در آن محسوس‌تر است؛ از این رو، چقرمگی شکست این نمونه (AZTC) از نمونه AZSBC نسبتاً کمتر است. همچنین، نمونه AZBC دارای سطح شکست صاف است که مشخصه شکست ترد محسوب می‌شود؛ بنابراین، این نمونه در مقایسه با دو نمونه دیگر، کمترین چقرمگی را از خود نشان می‌دهد. می‌توان گفت که در نمونه AZSBC به دلیل هیبریدی بودن و حضور تقویت‌کننده‌های متنوعی مانند بورید و سیلیسید زیرکونیم، کاربید سیلیسیم و کاربید زیرکونیم، سازوکارهای تقویت‌کنندگی (سازوکارهای افزایش مقاومت به رشد ترک) محسوس‌تر است و در نتیجه،

نسبی (۹۲ درصد)، همگن‌ترین و فشرده‌ترین ریزساختار و برترین خواص مکانیکی (سختی ۱۱۵۹ ویکرز، استحکام خمشی ۲۷۱/۵ مگاپاسکال و چقرمگی  $۸/۷۶ \text{ MPa.m}^{1/2}$ ) را نسبت به دو سیستم دیگر نشان داد.

### سپاسگزاری

بدین‌وسیله نویسندگان مقاله از دانشکده معدن و متالورژی دانشگاه یزد به دلیل در اختیار قرار دادن امکانات آزمایشگاهی و کارگاهی مورد نیاز این پژوهش، تشکر و قدردانی می‌کنند.

### منابع

- Aghili, S. E., Enayati, M. H., & Karimzadeh, F. (2014). Synthesis of (Fe, Cr) 3Al-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanocomposite through mechanochemical combustion reaction induced by ball milling of Cr, Al and Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> powders. *Advanced Powder Technology*, 25(1), 408-414. <https://doi.org/10.1080/09506608.2016.1243291>
- Amirimoghaddam, A., & Kalantar, M. (2025). Fabrication and Characterization of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-WxSiy-WwBz Composite Prepared by Spark Plasma Sintering Method in Al-Si-WO<sub>3</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> System. *Journal of Materials Engineering and Performance*, 34(15), 15738-15747. <https://doi.org/10.1007/s11665-024-10349-1>
- Dong, Q., Tang, Q., & Li, W. (2008). Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-TiC-ZrO<sub>2</sub> nanocomposites fabricated by combustion synthesis followed by hot pressing. *Materials Science and Engineering: A*, 475(1-2), 68-75. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2007.01.158>
- Hoseinpour, M., & Kalantar, M. (2024). Fabrication and characterization of alumina-based composites by in-situ combustion synthesis in Al-FeTiO<sub>3</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-C alumino-thermic system. *Journal of the Australian Ceramic Society*, 60(4), 1249-1264. <https://doi.org/10.1007/s41779-024-01036-4>
- Hosseini, M., & Abdolghanizadeh, K. (2017). Representing an Empirical Relationship for the Estimating Mode I Fracture Toughness of Rock Obtained from Testing on SCB Specimen using Tensile Strength. *Journal of Engineering Geology*, 11(2), 157-174. <http://jeg.khu.ac.ir/article-1-2509-en.html>
- Jalaly, M., Sh. Bafghi, M., Tamizifar, M., & Gotor, F. J. (2013). Mechanochemical synthesis of nanocrystalline ZrB<sub>2</sub>-based powders by mechanically induced self-sustaining reaction method. *Advances in Applied Ceramics*, 112(7), 383-388. <https://doi.org/10.1179/1743676113Y.0000000091>
- Kholghy, M., Kharatyan, S., & Edris, H. (2010). SHS/PHIP of ceramic composites using ilmenite concentrate. *Journal of alloys and compounds*, 502(2), 491-494. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2010.04.204>
- Kumar, S.M., Jeffrey, A.J., Boopathy, R., & Sangeetha, D. (2017). Effect of SiC on Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-ZrB<sub>2</sub> Composite prepared by self-propagating high temperature synthesis (SHS). *International Journal of Science, Engineering and Technology Research (IJSETR)*, 6(1), 122-130. ResearchGate. Retrieved from: [https://www.researchgate.net/publication/342082483\\_Effect\\_of\\_SiC\\_on\\_Al2O3-ZrB2\\_Composite\\_Prepared\\_by\\_Self\\_Propagating\\_High\\_Temperature\\_Synthesis\\_SHS](https://www.researchgate.net/publication/342082483_Effect_of_SiC_on_Al2O3-ZrB2_Composite_Prepared_by_Self_Propagating_High_Temperature_Synthesis_SHS)
- Kuruppu, M. D., Obara, Y., Ayatollahi, M. R., Chong, K. P., & Funatsu, T. (2014). ISRM-suggested method for determining the

رفتار شکست این نمونه نسبت به سایر نمونه‌ها کمتر ترد است (سطح زیر و ناهموار، نشانه مسیره‌های پیچیده‌تری برای رشد ترک است). در مطالعه مشابه بر روی سیستم Al-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-C، حضور کاربید بور در زمینه آلومینا موجب افزایش چقرمگی از ۲/۹ برای آلومینا به ۶/۱ برای کامپوزیت آلومینا-کاربید بور شد (وعیدی و ربیعی‌زاده، ۱۳۹۹). در نمونه کامپوزیتی AZTC، فاز قوی کاربید زیرکونیم بخش عمده‌ای از کامپوزیت را تشکیل می‌دهد؛ درمقابل، نمونه AZBC ماهیت کامپوزیتی ضعیفتری دارد و ساختار آن عمدتاً از فاز آلومیناید زیرکونیم تشکیل شده است که چقرمگی خوبی دارد؛ اما چقرمگی آن نسبت به دو نمونه کامپوزیتی دیگر به دلایل گفته‌شده، کمتر است. در مجموع، نتایج نشان می‌دهد که نمونه AZSBC به دلیل برخورداری از کمترین میزان تخلخل و داشتن ریزساختار نسبتاً همگن‌تر نسبت به دو نمونه دیگر، بهترین خواص مکانیکی را از خود نشان می‌دهد.

### ۴- نتیجه‌گیری

- نتایج آنالیز حرارتی نشان داد که در تمامی سیستم‌های مورد بررسی، واکنش‌های آلومینوترمیک پس از ذوب آلومینیم تشدید شده و پیک شاخص مربوط به آنها، بعد از ذوب آلومینیم ظاهر می‌شود (۷۰۰-۸۰۰ درجه سلسیوس برای سیستم Al-ZrO<sub>2</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-C و ۱۰۰۰-۱۱۰۰ درجه سلسیوس برای سیستم Al-ZrSiO<sub>4</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-C).
- انواع فازهای مختلف آلومیناید، دی‌سیلیسید و دی‌بورید زیرکونیم، کاربید بور، کاربید زیرکونیم، کاربید سیلیسیم و تیتانات آلومینیم بسته به نوع سیستم مورد مطالعه، در زمینه آلومینا تشکیل شدند. در سیستم پایه (Al-ZrO<sub>2</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-C)، ترکیب بین‌فازی آلومیناید زیرکونیم فاز غالب بود. با جایگزینی زیرکون به جای زیرکونیا به‌عنوان پیش‌ماده حاوی زیرکونیم، تنوع بیشتری از فازهای تقویت‌کننده مشاهده شدند (ZrSi<sub>2</sub>, ZrC, ZrB<sub>2</sub>, SiC) و همچنین با جایگزینی اکسید تیتانیوم به جای اکسید بور به‌عنوان ماده اولیه در سیستم پایه، ZrC فاز غالب بود.
- در میان سیستم‌های مورد مطالعه، سیستم Al-ZrSiO<sub>4</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-C بهترین عملکرد را از خود نشان داد. نمونه‌های کامپوزیتی تولیدشده در این سیستم، دارای بالاترین چگالی

23. Tapsuan, K., & Niyomwas, S. (2012). Effect of preform conditions on synthesis of Fe<sub>3</sub>Al-TiB<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> composite by self-propagating high-temperature synthesis. *Procedia Engineering*, 32, 635-641. <https://doi.org/10.1016/j.proeng.2012.01.1320>
24. Vaeedi, M., & Rabieezadeh, A. (2021). Fabrication of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-B<sub>4</sub>C Nanocomposite via Ball Milling, Subsequent Self-Propagation High-Temperature Synthesis, and Final Hot Pressing. *Journal of Advanced Materials and Technologies*, 9(4), 1-11. <https://doi.org/10.30501/jamt.2020.235445.1096>
25. Vallauri, D., Shcherbakov, V. A., Khitev, A. V., & Deorsola, F. A. (2008). Study of structure formation in TiC-TiB<sub>2</sub>-MexOy ceramics fabricated by SHS and densification. *Acta Materialia*, 56(6), 1380-1389. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2007.11.022>
26. Xiao, G. Q., Fu, Y. L., Zhang, Z. W., & Hou, A. D. (2015). Mechanism and microstructural evolution of combustion synthesis of ZrB<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> composite powders. *Ceramics International*, 41(4), 5790-5797. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2015.01.007>
27. Yeh, C. L., & Chou, C. C. (2015). Formation of NbB<sub>2</sub>/mullite composites by combustion synthesis involving metallothermic reduction of Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> and B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. *Ceramics International*, 41(10), 14592-14596. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2015.07.177>
28. Yeh, C. L., & Kao, W. C. (2014). Preparation of TaB/TaB<sub>2</sub>/mullite composites by combustion synthesis involving aluminothermic reduction of oxide precursors. *Journal of alloys and compounds*, 615, 734-739. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2014.06.167>
29. Yeh, C. L., & Li, R. F. (2009). Formation of TiB<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and NbB<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> composites by combustion synthesis involving thermite reactions. *Chemical Engineering Journal*, 147(2-3), 405-411. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2009.01.007>
30. Yeh, C. L., Li, R. F., & Shen, Y. G. (2009). Formation of Ti<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> in situ composites by SHS involving thermite reactions. *Journal of alloys and compounds*, 478(1-2), 699-704. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2008.11.131>
10. Levashov, E. A., Mukasyan, A. S., Rogachev, A. S., & Shtansky, D. V. (2017). Self-propagating high-temperature synthesis of advanced materials and coatings. *International materials reviews*, 62(4), 203-239. <https://doi.org/10.1080/09506608.2016.1243291>
11. Li, Y., Bai, P., Liu, B., & Wang, J. (2012). Effect of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> content on the synthesized products by the laser ignited self-propagating high-temperature synthesis reaction of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Ti-C system. *International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*, 34, 53-56. <https://doi.org/10.1016/j.ijrmhm.2012.04.006>
12. Liu, G., Chen, K. and Li, J., (2016). Combustion Synthesis. Handbook of Theory: Fundamentals of Combustion Synthesis, Wiley-VCH, Vol. 1, 1-61. <https://doi.org/10.1002/9783527628148.hoc094>
13. Maleki, A., Hosseini, N., & Nirouman d, B. (2018). A review on aluminothermic reaction of Al/ZnO system. *Ceramics International*, 44(1), 10-23. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2017.09.168>
14. Mishra, S. K., Das, S. K., & Sherbacov, V. (2007). Fabrication of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-ZrB<sub>2</sub> in situ composite by SHS dynamic compaction: a novel approach. *Composites Science and Technology*, 67(11-12), 2447-2453. [10.1016/j.compscitech.2006.12.017](https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2006.12.017)
15. Pacheco, M. (2007). Self-sustained high-temperature reactions: Initiation, propagation and synthesis. Printed by PrintPartners Ipskamp, The Netherlands. [https://www.sensorprod.com/wp-content/uploads/2023/09/wp\\_pbg.pdf](https://www.sensorprod.com/wp-content/uploads/2023/09/wp_pbg.pdf)
16. Rao, C. N. R., & Biswas, K. (2015). *Essentials of inorganic materials synthesis*. John Wiley and Sons. <https://books.google.com/books?id=O-l8CAAQBAJ>
17. Rendtorff, N. M., Grasso, S., Hu, C., Suarez, G., Aglietti, E. F., & Sakka, Y. (2012). Zircon-zirconia (ZrSiO<sub>4</sub>-ZrO<sub>2</sub>) dense ceramic composites by spark plasma sintering. *Journal of the European Ceramic Society*, 32(4), 787-793. <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2011.10.021>
18. Sadrnejad, S.K.A., (1378). Heat and motion in materials, Ministry of Foreign Affairs Printing and Publications Center, Vol. 1, 609-613 (In persian)
19. Sakaki, M., Behnami, A. K., & Bafghi, M. S. (2014). An investigation of the fabrication of tungsten carbide-alumina composite powder from WO<sub>3</sub>, Al and C reactants through microwave-assisted SHS process. *International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*, 44, 142-147. <https://doi.org/10.1016/j.ijrmhm.2014.02.003>
20. Sedaghat Ahangari Hossein Zadeh, Askarzadeh, Maedeh., & Faraji, Arash. (2019). SPS device and the effect of its parameters on final properties of sintered samples, *Journal of Iranian Ceramic Society*, 15(2), 31-46. [http://jicers.ir/browse.php?a\\_code=A-10-33-1&slc\\_lang=fa&sid=1](http://jicers.ir/browse.php?a_code=A-10-33-1&slc_lang=fa&sid=1)
21. Sen, M., Shukla, R., Pathak, N., Ali, K., Sathian, V., & Tyagi, A. K. (2022). Synthesis, characterization, and thermoluminescence-based high-dose neutron and gamma dosimetry study of Al<sub>5</sub>BO<sub>9</sub>: Mn, Li nanophosphor. *Journal of the American Ceramic Society*, 105(11), 6693-6709. <https://doi.org/10.1111/jace.18639>
22. Shen, Y. F., Zou, Z. G., Xiao, Z. G., Liu, K., Long, F., & Wu, Y. (2011). Properties and electronic structures of titanium aluminides-alumina composites from in-situ SHS process. *Materials Science and Engineering: A*, 528(4-5), 2100-2105. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2010.11.039>