

## ساخت قطعات متخلخل از ترکیبات AlTi به روش سنتز احتراقی خود گستر

رحیم یزدانی راد\*<sup>۱</sup> و سید علی طیبی فرد<sup>۲</sup>

<sup>۱</sup>دانشیار، پژوهشگاه مواد و انرژی، کرج

<sup>۲</sup>استادیار، پژوهشگاه مواد و انرژی، کرج

تاریخ ثبت اولیه: ۱۳۹۱/۹/۷، تاریخ دریافت نسخه اصلاح شده: ۱۳۹۱/۱۰/۱۲، تاریخ پذیرش قطعی: ۱۳۹۱/۱۰/۱۸

**چکیده** ترکیب بین فلزی تیتانیوم آلومیناید با هدف بکارگیری به عنوان بدنه متخلخل مستحکم به روش سنتز احتراقی خود گستر ایجاد شد. از پودر تیتانیوم و آلومینیوم به عنوان مواد اولیه استفاده شد. مواد اولیه در یک آسیاب با یکدیگر مخلوط شده و سپس به روش پرس سرد از آن قطعاتی تهیه گردید. قطعات حاصل تحت گرمایش با نرخ ۵۰۰ درجه بر دقیقه قرار گرفت و موج احتراق در آنها مشاهده شد. در این تحقیق فشار پرس جهت ساخت قطعات خام به عنوان متغیر فرآیند در نظر گرفته شد. چگالی نسبی قطعات پس از سنتز، استحکام خمشی و رسانش الکتریکی قطعات اندازه گیری شد. مورفولوژی قطعات سنتز شده توسط SEM و فازهای ایجاد شده توسط XRD شناسایی گردید. نتایج حاصل از این پژوهش حاکی از این بود که ترکیبات مختلف AlTi به روش SHS تحت شرایط متفاوت به خوبی سنتز شده و تغییر این شرایط تأثیر چندانی بر سنتز این فازها ندارد. با افزایش فشار پرس از میزان تخلخل‌ها کاسته شده و اندازه تخلخل‌ها نیز ریزتر می‌گردند. اندازه گیری رسانش الکتریکی می‌تواند معیاری باشد، برای پیشبینی مقدار تخلخل باشد و استحکام خمشی در نمونه‌های ساخته شده با افزایش فشار اولیه پرس افزایش چشمگیری نشان می‌دهد.

**واژه‌های کلیدی** ترکیب بین فلزی تیتانیوم آلومیناید، سنتز احتراقی خود گستر، فشار پرس، تخلخل.

## Production of AlTi porous bodies by SHS

R. Yazdani Rad\*<sup>1</sup> and S.A Tayyebi Fard<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Materials & Energy Research Center, Karaj, Iran

**Abstract** AlTi porous bodies for use as structural materials are produced by Self-propagating High-temperature Synthesis (SHS). Initial Al and Ti POWDERS were first mixed and then cold pressed into preformed specimens. The specimens were then subjected to SHS by heating at the rate of 500°C /min. In this research the compaction pressure was chosen as the main variable. For all specimens, relative density, bending strength and electrical conductivity was measured. Also Phase composition and morphology was determined by XRD and SEM. Results indicated that various Al-Ti binary compounds could be produced by SHS. Porosity decreased and pore size increased by increasing the compaction pressure. Electrical conductivity is found to be a good measure of porosity within the specimens. Bending strength increased considerably by increasing the initial compaction pressure of the pressed samples.

**Keywords** Intermetallic compounds of Al-Ti, Self-propagating High-temperature Synthesis (SHS), Compaction pressure, Porosity.

\*عهده‌دار مکاتبات

نشانی: کرج، پژوهشگاه مواد و انرژی

تلفن: ۰۲۶۳۶۲۰۴۱۳۱، دورنگار: ۰۲۶۳۶۲۰۱۸۸۸، پیام نگار: ryazdani5@yahoo.com



## ۱- مقدمه

فلزات متخلخل به دلیل خواص ویژه از قبیل نسبت صلبیت به وزن قابل قبول، قابلیت جذب انرژی، قابلیت عبوردهی آب و هوا، چگالی کم، قابلیت بازیافت، هدایت صوتی، حرارتی و الکتریکی متوسط پایداری شیمیایی و قابلیت کارکرد در دمای بالا در حال گسترش هستند بعنوان مواد مهندسی از توجه ویژه‌ای در صنایع مختلف برخوردارند [۱،۲،۳]. آلیاژهای بین‌فلزی به منظور کاربردهای دمای بالا مورد مطالعه قرار گرفته‌اند چراکه خواص مکانیکی فوق-العاده‌ای در دمای بالا دارند و دارای مقاومت به خوردگی و اکسیداسیون بالایی هستند. عمده مطالعات روی آلومینیدهای تیتانیوم و نیکل مثل  $TiAl$ ،  $Ti_3Al$ ،  $NiAl$ ،  $Ni_3Al$  انجام شده است. این نوع فلزات متخلخل خواص مکانیکی بالاتری نسبت به سایر فلزات متخلخل با حفره‌هایی با ساختار نامعین دارند [۴،۵].

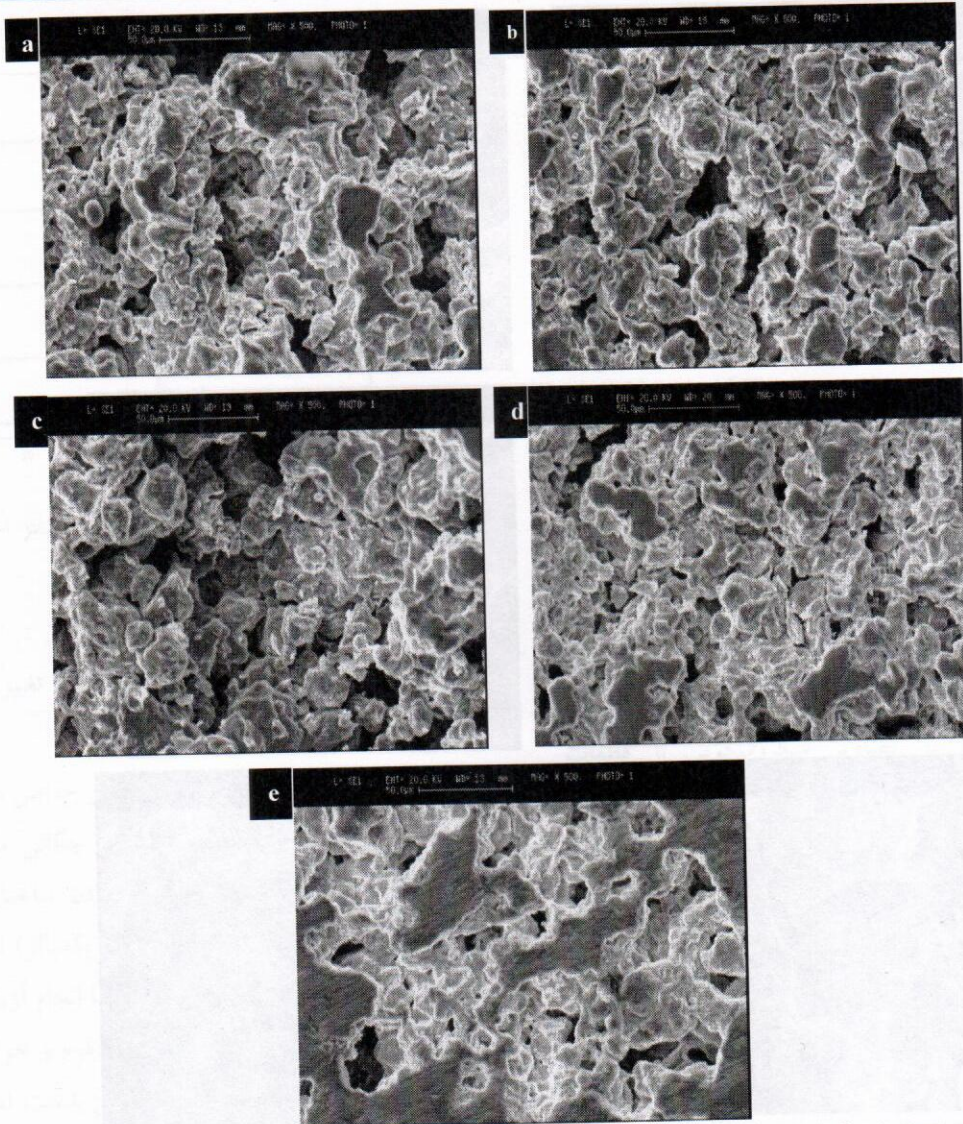
روش سیتترینگ واکنشی، روشی موثر برای تولید ترکیبات بین‌فلزی برپایه  $TiAl$  می‌باشد. در فرآیند مرسوم سیتترینگ واکنشی، سه مرحله فرآیندی وجود دارد؛ مخلوط کردن پودرهای تشکیل‌دهنده، فشرده‌سازی در شکل مورد نظر و در نهایت سیتترینگ. در یکی از مطالعات صورت گرفته است [۶،۷]، با استفاده از اکستروژن گرم، مخلوطی از تیتانیوم و آلومینیوم-منگنز به شکل میله ساخته شد. سپس مخلوط مورد نظر با استفاده از سیتترینگ واکنشی که با واکنش اگزوترمیک بین پودرهای تیتانیوم و آلومینیوم-منگنز ادامه یافت، مستحکم گردید [۸]. در این روش اگرچه فاز مورد نظر با دقت بالایی ایجاد میگردد ولیکن ایجاد و کنترل مقدار تخلخل به سادگی میسر نیست.

روش‌های سیتترینگ مختلفی برای ساخت مواد مختلف با استفاده از انرژی الکتریکی توسعه یافته‌اند. سیتترینگ، سیتترینگ پالسی [۹]، سیتترینگ تخلیه الکتریکی [۱۰]، به عنوان مثال؛ سیتترینگ فعال شده توسط پلاسما (سیتترینگ اسپارک) یک فرآیند چگالش سریع است که توانایی آنرا دارد تا

میزان رشد دانه‌ها را با بهبود قابلیت سیتترینگ از طریق شکست دی‌الکتریک فیلم اکسیدی بین سطوح ذرات پودر و گرمایش سریع به حداقل برساند [۱۱]. ولیکن این تجهیزات هزینه سرمایه گذاری اولیه نسبتاً زیادی داشته و تعمیر و نگهداری آن نیز پر هزینه است. در روش MACS (Microwave Activated Combustion Synthesis) از یک راکتور میکروویو برای سنتز و سیتترینگ استفاده می‌شود [۱۲،۱۳]. گرچه امواج میکروویو تنها چند میکرون به ضخامت فلز نفوذ می‌کنند، که توده ماده امواج را بازتاب می‌دهد و موجب آشفته‌گی و ایجاد گرما در قطعه میگردد [۱۴،۱۵]. این روش نیز معایبی از جمله غیر یکنواختی در گرم کردن به صورت میکروسکوپی و گرمایش موضعی شدید و ایجاد گرادیان گرما بین نقاط فلزی و پوسته‌های اکسیدی با خواص دی‌الکتریک ناهمگن را دارد که وجود تخلخل با سطح نامنظم این غیر یکنواختی را شدت می‌بخشد. در این تحقیق سعی شده است ترکیبات بین فلزی نامبرده با هزینه کم و طی فرآیندی ساده سنتز شود و در عین حال فرآیند از بازده مناسبی برخوردار بوده و مواد اولیه در ترکیب نهایی حضور ندارند و امکان کنترل تخلخل نیز بررسی شده است. به طور معمول در واکنش‌های سنتز احتراقی چگالی خام قطعه نقش موثر در کیفیت واکنش انجام شده و نوع فازهای به وجود آمده و تنوع آنها دارد.

در این تحقیق رابطه چگالی خام که به طور مستقیم با فشار پرس حین قطعه سازی ارتباط دارد با نوع فازهای به وجود آمده و مقدار تخلخل قطعات محصول بررسی شده است. همچنین به دلیل آنکه شروع واکنش با ذوب آلومینیوم بوده و واکنش در فاز مایع رخ می‌دهد چگالی خام که با میزان حفره‌ها و گاز محبوس در قطعه رابطه معکوس دارد می‌تواند در ایجاد و افزایش تخلخل در فرآیند سنتز احتراقی نقش موثری داشته باشد. در این تحقیق این مورد نیز مورد ارزیابی قرار می‌گیرد.





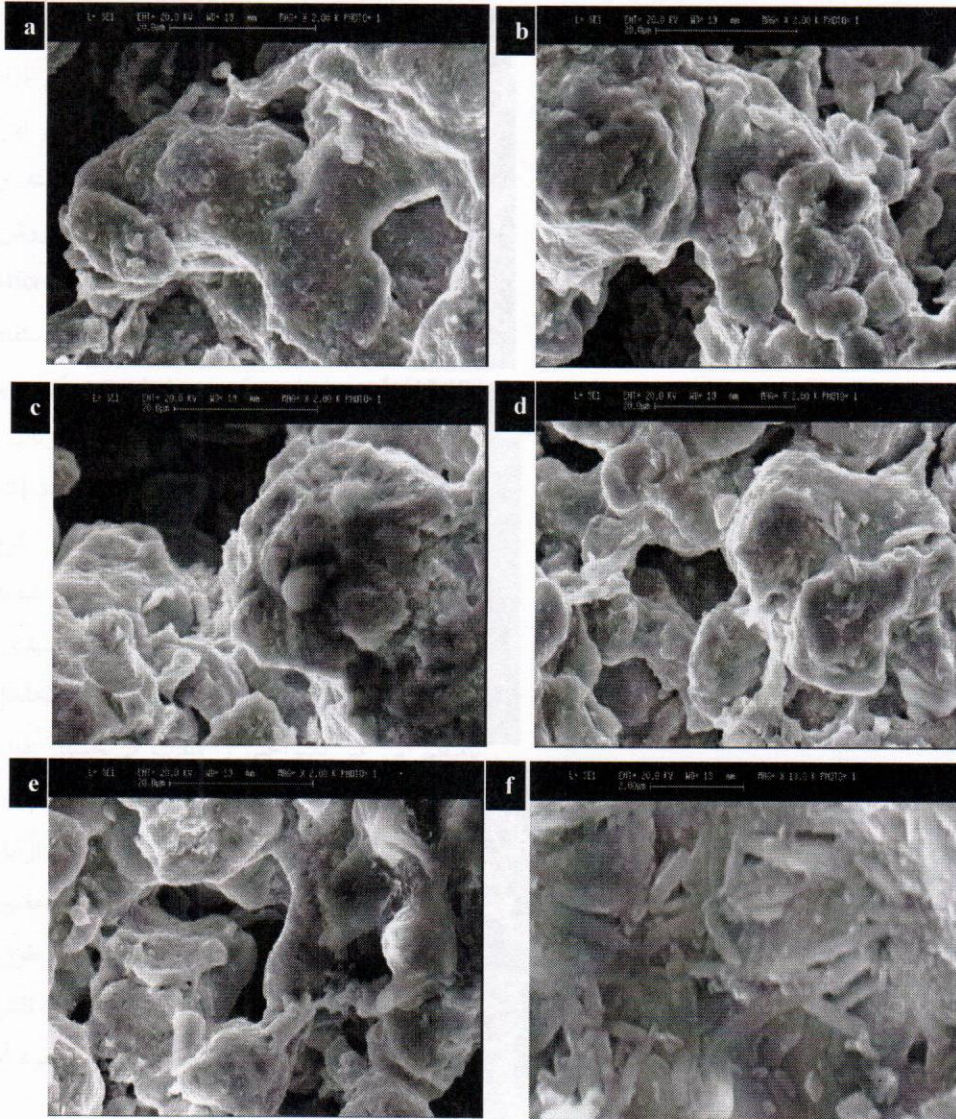
شکل ۱. تصاویر SEM با بزرگنمایی ۵۰۰ مربوط به نمونه‌هایی که در مرحله ساخت قطعه، تحت فشار ۷۵ تا ۶۰۰ مگا پاسکال قرار گرفته‌اند.

میلی‌متر ریخته شد و از آن قطعات دیسکی تهیه گردید. متغییر فرآیند قطعه سازی پیش از سنتز، فشار پرس انتخاب شد. پودر حاصل تحت فشار متفاوت از ۷۵، ۱۵۰، ۳۰۰، ۴۵۰ و ۶۰۰ MPa پرس شدند. سپس عمل سنتز با وارد کردن نمونه‌ها در یک کوره تیوبی که از قبل در دمای ۱۰۰۰ درجه سانتیگراد تنظیم و تثبیت شده بود قرارداد شد. گاز آرگون با فشار ۰.۲ بار در کوره دمیده شد و تا پایان فرآیند و خنک شدن نمونه‌ها این فلو ثابت نگه داشته شد.

## ۲- روش آزمایش

از پودر فلز Al با دانه‌بندی زیر ۲۰۰ میکرومتر با خلوص ۹۹٪ تهیه شده از شرکت Fluka و پودر فلز Ti با دانه بندی زیر ۱۵۰ میکرومتر با خلوص ۹۸٪ تهیه شده از شرکت Merck برای ساخت آلیاژ متخلخل TiAl استفاده شد. ابتدا پودرهای اولیه به حالت خشک در یک آسیاب استوانه‌ای به مدت ۰.۵ ساعت با سرعت چرخش ۷۵ دور در دقیقه مخلوط شد. نسبت مولی آلومینیوم به تیتانیوم (یک به یک) انتخاب شد. پس از آسیاب، پودر مخلوط شده درون قالب استوانه ای به قطر ۱۳





شکل ۲. تصاویر SEM با بزرگنمایی ۲۰۰۰ مربوط به نمونه‌هایی که در مرحله ساخت قطعه، تحت فشار ۷۵ تا ۶۰۰ مگا پاسکال قرار گرفته اند (تصویر f همان نمونه e است که با بزرگنمایی ۱۳۰۰۰ تصویر برداری شده است).

$$\sigma = \frac{\Delta I}{A \Delta V} I \quad (\Omega \cdot \text{cm})^{-1} \quad \text{رابطه (۱)}$$

A= سطح مقطع نمونه

$\Delta V$ = اختلاف پتانسیل در نمونه

I= جریان عبوری از نمونه

### ۳- نتایج و بحث

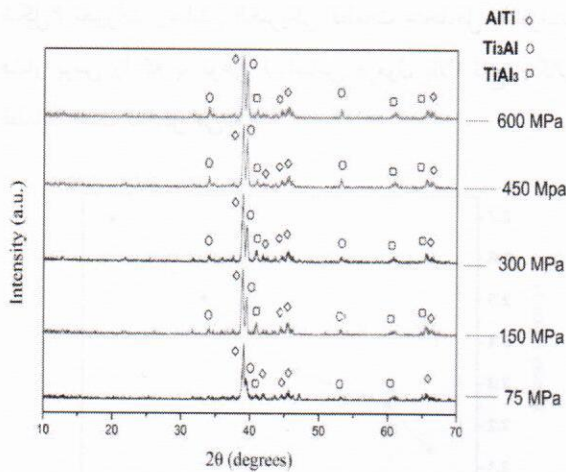
#### ۳-۱- بررسی ریزساختاری قطعات سنتز شده

شکل ۱ مربوط به بزرگنمایی ۵۰۰ توسط میکروسکوپ

الکترونی SEM است که به ترتیب مربوط به نمونه‌هایی است

همچنین برای انجام آزمون استحکام خمشی از پودر حاصل از مرحله اول، مجدداً قطعاتی به شکل مکعب مستطیل در ابعاد ۲۰×۶×۵ میلی‌متر و با شرایط آزمایش گفته شده در بالا ساخته شد. آزمون استحکام خمشی سه نقطه‌ای با استفاده از دستگاه استاندارد ASTM B373 روی نمونه‌ها انجام گرفت. رسانش الکتریکی به روش دوپروب و با استفاده از اندازه‌گیری افت پتانسیل در دو نقطه ثابت در نمونه و براساس فرمول زیر اندازه‌گیری شد.





شکل ۳. الگوی XRD قطعات سنتز شده به روش سنتز احتراقی خود پیش‌رونده در فشار ۷۵ تا ۶۰۰ مگا پاسکال.

### ۳-۲-۲- بررسی تغییرات چگالی قطعات با تغییرات فشار پرس نمونه‌های خام

خواص یک فوم به شدت تحت تأثیر خواص ماده اولیه، چگالی نسبی فوم (چگالی فوم تقسیم بر چگالی ماده جامد سازنده دیواره سلولی) و باز یا بسته بودن ساختار سلولی (ارتباط یا عدم ارتباط سلول‌های مجاور با یکدیگر) قرار دارد. به منظور پیش‌بینی خواص فیزیکی فوم‌ها، با انجام آزمایش‌های متعدد، معادلات بین خواص الکتریکی یک فوم و خواص ماده اولیه و چگالی نسبی فوم به صورت تجربی بدست آمده است. مقاومت الکتریکی ( $R$ ) با چگالی نسبی به صورت زیر ارتباط دارند:

$$R = R_s \left( \frac{\rho}{\rho_s} \right)^n \quad \text{رابطه (۲)}$$

که  $R_s$  مربوط به حالت بالک می‌باشند. معمولاً گستره تغییرات  $n$  از  $1/60$  تا  $1/85$  می‌باشد. مقاومت الکتریکی تحت تأثیر اندازه سلول‌ها نیز قرار دارد. اما به دلیل کم بودن میزان اثر آن، ابعاد سلول‌ها در معادله فوق در نظر گرفته نشده است و تنها اثر چگالی نسبی بر مقاومت الکتریکی در رابطه فوق دیده می‌شود. شکلهای ۴ و ۵ تغییرات چگالی و درصد تخلخل قطعات سنتز شده با فشار پرس اولیه را نشان می‌دهد. واضح است که با افزایش چگالی نسبی، سطح مقطع محل جریان الکترون‌ها افزایش می‌یابد و هدایت الکتریکی زیاد می‌شود.

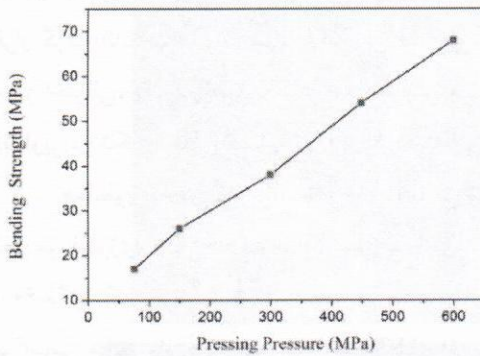
که در مرحله ساخت قطعه، تحت فشار ۷۵ تا ۶۰۰ مگا پاسکال قرار گرفته اند. مشاهده می‌شود با افزایش فشار پرس پیش از سنتز احتراقی، دانسیته قطعات سنتز شده افزایش می‌یابد. همین تصاویر در شکل ۲ با بزرگنمایی ۱۰۰۰ برابر دیده می‌شود. همانطور که در تصویر شماره ۲-۵ دیده می‌شود از نقطه نظر مورفولوژی یک اختلاف فاحش بین نمونه‌ای که در فشار ۶۰۰ مگاپاسکال پرس شده است با دیگر نمونه‌ها وجود دارد. بر اساس منابع، فاز مورد نظر می‌تواند  $Al_3Ti$  باشد [۱۶]. این فاز ناخواسته دارای مورفولوژی سوزنی شکل است و طولی کمتر از ۳ میکرومتر دارد. فاز غنی از آلومینیوم در حالی یافت شده است که در ساخت قطعات از مخلوط مولی برابر و بدون آلومینیوم اضافی استفاده شده است. این امر نشان دهنده آن است که طی فرآیند مذکور در این حالت خاص غلظت آلومینیوم نسبت به تیتانیوم به طور موضعی تغییر کرده است.

همانطور که در تصاویر میکروسکوپی از قطعات متخلخل تولید شده در شکل ۲ دیده می‌شود اگرچه ذرات چیدمان منظمی بر یکدیگر ندارند، ولیکن یکپارچگی در اتصال بین ذرات دیده می‌شود و به نظر میرسد تخلخل‌ها فضاهای باقیمانده در اثر چگالش ناقص حاصل از فرآیند پرس سرد هستند. همچنین فصل مشترک ذرات با یکدیگر نه تنها شکل گلوبی ندارد بلکه پهن و کشیده است.

### ۳-۲-۳- بررسی آزمون رسانش الکتریکی قطعات سنتز شده

#### ۳-۲-۱- بررسی آنالیز XRD قطعات سنتز شده

می‌دانیم چنانچه ترکیب در قطعات مورد آزمون یکسان باشد می‌توان از رسانش الکتریکی به عنوان معیاری برای میزان تخلخل استفاده کرد. نتایج آزمون پرتو ایکس حکایت از عدم اختلاف محسوس به لحاظ ترکیب در قطعات پرس شده در فشارهای مختلف دارند (شکل ۳). لذا می‌توان جهت مقایسه مقدار تخلخل از آزمون رسانش الکتریکی استفاده نمود.



شکل ۷. استحکام خمشی قطعات ساخته شده در شرایط متفاوت سنتز.

#### ۴- نتیجه گیری

در این پژوهش تغییرات مورفولوژی و ریز ساختار قطعات متخلخل ساخته شده از ترکیبات آلومینیوم و تیتانیوم ساخته شده به روش پرس سرد و سنتز احتراقی نسبت به تغییرات فشار پرس سرد بررسی شده است. پودر آلومینیوم و تیتانیوم در یک آسیاب گلوله‌ای ماهواره‌ای مخلوط شده و از آن قطعاتی به روش پرس سرد ساخته شده و درون کوره شرایط سنتز احتراقی به وجود آمده است. از قطعات نهایی آزمون‌های چگالی سنجی، رسانش الکتریکی و استحکام خمشی به عمل آمد.

نتایج بدست آمده به شرح زیر است:

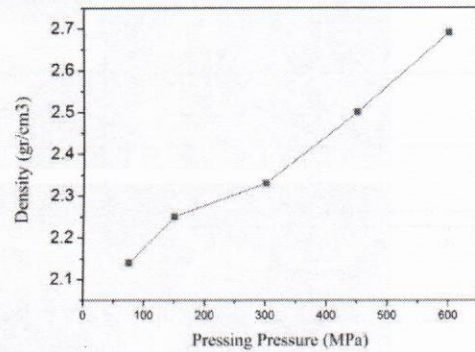
۱- میان فشار پرس اولیه و فازهای به وجود آمده پس از سنتز احتراقی ارتباطی مشاهده نشد.

۲- شکل و توزیع اندازه تخلخل‌ها پس از سنتز قطعات کاملاً به فشار پرس مرتبط بوده و با افزایش فشار پرس از میزان تخلخل‌ها کاسته شده و اندازه تخلخل‌ها نیز ریز تر می‌گردند.

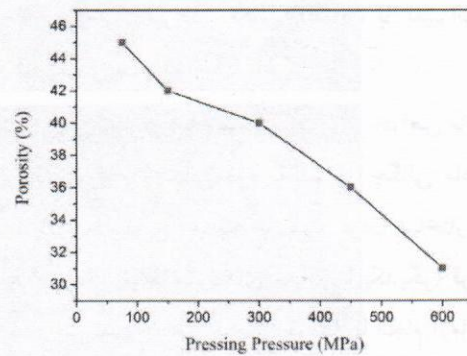
۳- اندازه گیری رسانش الکتریکی می‌تواند معیاری باشد برای پیشبینی مقدار تخلخل باشد و با توجه به اینکه ترکیبات ایجاد شده در نمونه‌ها پس از سنتز مشابه یکدیگرند می‌توان تغییرات رسانش الکتریکی را صرفاً ناشی از تفاوت در میزان چگالی قطعات دانست.

۴- استحکام خمشی در نمونه‌های ساخته شده با افزایش فشار اولیه پرس افزایش چشمگیری نشان می‌دهد.

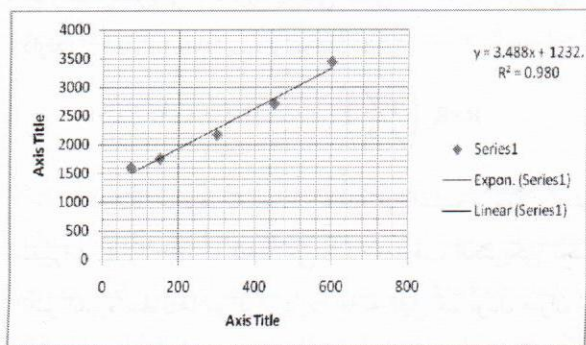
شکل ۶ تغییرات رسانش الکتریکی قطعات متخلخل با افزایش فشار پرس را که به نوعی (براساس فرمول بالا) تابع چگالی قطعات است نمایش می‌دهد.



شکل ۴. تغییرات چگالی و درصد تخلخل قطعاتی (ساخته شده به روش سنتز احتراقی) در فشار پرس اولیه متفاوت.



شکل ۵. تغییرات درصد تخلخل قطعاتی (ساخته شده به روش سنتز احتراقی) در فشار پرس اولیه متفاوت.



شکل ۶. نمودار تغییرات رسانش الکتریکی قطعات متخلخل با افزایش فشار پرس.

#### ۳-۳- بررسی استحکام خمشی قطعات سنتز شده

استحکام خمشی نمونه‌های سنتز شده در شکل ۷ ارائه شده است. افزایش فشار پرس باعث افزایش استحکام خمشی شده است.



## مراجع

1. Lefebvre L.P., Dunand D.C., Banhart J., *Porous metals and metallic foams*. Advanced Engineering Materials, Vol. 9-10, (2008), p 775-787.
2. Wen C.E., et al., Processing of biocompatible porous Ti and Mg. Scripta Materialia, Vol. 45, ( 2001), p. 1147-1153.
3. Davies G.J., & Zhen, S. Journal of Material Science, Vol. 18, (1983), p 1899.
4. Jiang B., et al., Processing of open cell aluminum foams with tailored porous morphology. Scripta Materialia, Vol. 53, (2005), p. 781-785.
5. Gaillard C., Depois J.F., Mortensen A. Material Science Engineering, (2004), A374:250
6. Liu CT, Schneibel JH, Maziasz PJ, Wright JL, Easton DS. Intermetallics 1996;4:429.
7. He YH, Liu YX, Huang BY, Qu ZH, Lei CM. J Mater Sci Technol 1994;10:205.
8. Van Loo FJJ, Rieck GD. Acta Metall 1973;21:61. Lapin J. Intermetallics 2006;14:115.
9. Chan KS, Wang P, Bhate N, Kumar KS. Acta Mater 2004;52:4601.
10. Report No. AD-A009 241, Spark sintering of powdered metal, National Technical Information Service U.S.Department of Commerce, June 1974, p. 1.
11. Weissler, G. A., *Powder Metall. ht.*, 10( 1) (1978) 34.
12. Matsugi, K., Hatayama, T. & Yanagisawa, O., *J. Jpn. Inst. of Metals*, 60(3) (1966) 301.
13. Sohn, H. Y. & Wang, X., *Materials and Manufacturing Process*, 9 (1994) 75.
14. Yum, J.-T., Moon, J.-T., Kim, Y.-S. & Lee, Y.-H., *Proc. of 2nd Pacific Rim ht. ConJ: on Advanced Materials and Processing*, eds K.-S. Shin, J.-K. Yoon & S.-J. Kim, Korea Inst. of Metals and Materials, 1995, p. 493.
15. E.G. Kandalova, V.I. Nikitin a, Jie Wanqi b, A.G. Makarenko, Effect of Al powder content on SHS Al-Ti grain refiner, *Materials Letters* 54 (2002) 131– 134.