

بررسی تاثیر افزودنی نانولوله کربنی و روش سینتر بر ریزساختار و خواص مکانیکی نانو- کامپوزیت زمینه آلومینیوم تقویت شده با سیلیکون نایتراید و نانولوله های کربنی

مسعود علیزاده^{۱*}، مهسا سلطانی^۱، اصغر کاظم زاده^۲، آیدا فایقی نیا^۱، تورج عبادزاده^۱

^۱ پژوهشکده سرامیک، پژوهشگاه مواد و انرژی، مشکین دشت، البرز، ایران.

^۲ پژوهشکده نیمه هادیها، پژوهشگاه مواد و انرژی، مشکین دشت، البرز، ایران.

تاریخ ثبت اولیه: ۱۳۹۸/۰۹/۱۱، تاریخ دریافت نسخه اصلاح شده: ۱۳۹۸/۰۹/۱۳، تاریخ پذیرش قطعی: ۱۳۹۸/۰۹/۳۰

چکیده در این پژوهش، پودر اولیه آلومینیوم خالص و به عنوان زمینه کامپوزیت همراه با ذرات نیتريد سيليسيم به ميزان ۵، ۱۰ و ۱۵ درصد وزنی و نانولوله کربنی با درصد وزنی ثابت (۲۵٪ وزنی) مخلوط شدند. نمونه‌ها تا دمای ۴۰۰ درجه سانتی‌گراد و مدت زمان نگهداری پنج دقیقه به کمک پلاسمای جرقه‌ای سینتر شدند. هم‌چنین نمونه‌های استحکام توسط پرس تک‌محور در فشار ۲۵۰ مگاپاسکال پرس و در دماهای ۶۰۰، ۷۰۰ و ۸۰۰ درجه سانتی‌گراد در کوره مایکروویو به مدت یک دقیقه در بستر گرافیت سینتر شدند. نتایج نشان می‌دهد افزودن ذرات نیتريد سيليسيم به میزان ۱۵ درصد وزنی بدون و به همراه نانو-لوله‌های کربنی، به ترتیب موجب افزایش استحکام خمشی کامپوزیت با زمینه آلومینیوم در کوره مایکروویو در دمای ۷۰۰ درجه سانتی‌گراد به میزان ۱۷۹ مگاپاسکال و ۲۱۲ مگاپاسکال، می‌شود. هم‌چنین استحکام نمونه‌های سینتر شده توسط پلاسمای جرقه‌ای در دمای ۴۰۰ درجه سانتی‌گراد با ترکیب ۱۵ درصد وزنی نیتريد سيليسيم بدون نانولوله کربنی و به همراه نانولوله کربنی به ترتیب ۲۴۹ و ۲۸۵ مگاپاسکال می‌باشد. نمونه‌های سینتر شده با پلاسمای جرقه‌ای به دلیل اعمال فشار و دما به صورت هم‌زمان، ریزساختار همگن‌تر و چگالی نسبی بیشتری را نسبت به نمونه‌های سینتر شده در کوره مایکروویو نشان می‌دهند.

کلمات کلیدی: کامپوزیت، نیتريد سيليسيم، نانولوله کربنی، پلاسمای جرقه‌ای، مایکروویو.

Investigation of Addition of CNT and Sintering Process on Microstructure and Mechanical Properties of Al-Si₃N₄-CNT Nano Composite

M. Alizadeh^{*1}, M. Soltani¹, A. Kazemzadeh², A. Faeghinia¹, T. Ebadzadeh¹

¹Ceramic Department, Materials and Energy Research Center, MeshkinDasht, Alborz, Iran.

²Semi-Conductor Department of Materials and Energy Research Center, Meshkin Dasht Alborz Iran.

Abstract In this study, pure aluminum powder as a composite substrate was mixed with 5, 10 and 15 wt. % of silicon nitride particles and constant wt% of carbon nanotube.

The specimens were sintered at 400 ° C with 5 holding time by SPS. Also, the samples were prepared by uniaxial press at 250 MPa pressure and sintered at 600, 700 and 800 ° C in microwave for one minute.

The results show that by adding 15% silicon nitride particles with and without carbon nanotubes to the composites the flexural strengths of the composites with microwave sintering at 700 ° C increases to 179 MPa and 212 MPa, respectively. Also, the strength of the SPS sintered samples at 400 ° C with 15 wt. % of silicon nitride without carbon nanotubes and with carbon nanotubes are 249 and 285 MPa, respectively.

The SPS samples exhibit a more homogeneous microstructure and is relatively denser than the samples which were microwave sintered due to the pressure and temperature that applied simultaneously in SPS.

Keywords: Composite, Si₃N₄, CNT, SPS, Microwave.

۱- مقدمه

سیلیسیم به همراه کاربید تیتانیم را توسط روش میکروویو تهیه نمودند. نتایج تحقیقات آنها بهبود استحکام را ۳۴۰ مگاپاسکال و سختی را ۱۹۲ ویکرز نشان داد. هم‌چنین در پژوهشی دیگر سیواستوای و همکاران [۹] به بررسی خواص سایشی و مکانیکی کامپوزیت آلومینیوم- نیتريد سیلیسیم- نیتريد آلومینیوم- دی بوراید زیرکونیم پرداختند. طبق نتایج تحقیقات آنها با افزودن تقویت‌کننده‌ها، خواص مکانیکی مانند سختی و استحکام کششی افزایش یافته است. هم‌چنین مقاومت سایشی نیز با افزایش درصد تقویت‌کننده‌ها افزایش می‌یابد. ایساوی و همکاران [۱۰] در پژوهشی به تولید کامپوزیت آلومینیوم- نیتريد سیلیسیم به روش ریخته‌گری پرداخته و تاثیر افزودن تقویت‌کننده نیتريد سیلیسیم با درصدهای وزنی مختلف را بر خواص مکانیکی نظیر چگالی و سختی بررسی کردند. طبق نتایج تحقیقات آنها با افزایش درصد وزنی نیتريد سیلیسیم از صفر درصد به ۱۲ درصد، چگالی از ۲/۶۹ به ۲/۷۵ g/cm³ افزایش و هم‌چنین سختی از ۴۹/۵ به ۹۳/۵ ویکرز افزایش می‌یابد. ژاو و همکاران [۱۱] به بررسی تاثیر نانولوله کربنی تا مقدار پنج درصد با استفاده از روش آسیاب گلوله‌ای برای توزیع یکنواخت نانولوله کربنی در زمینه آلومینیومی پرداختند. نتایج تحقیقات آنها افزایش استحکام کششی بالاتر از ۵۰ درصد و افزایش ۲۳ درصدی سختی را در مقایسه با آلومینیوم خالص نشان داد. تاکنون پژوهشی بر تاثیر توأم ذرات نیتريد سیلیسیم و نانولوله کربنی بر خواص نهایی زمینه آلومینیوم صورت نگرفته است که در این پژوهش سعی شده تاثیر هم‌زمان ذرات نیتريد سیلیسیم و کربن نانو تیوب بر خواص مکانیکی و ریز ساختار این کامپوزیت با استفاده از دو روش میکروویو و پلاسما جرقه‌ای بررسی گردد.

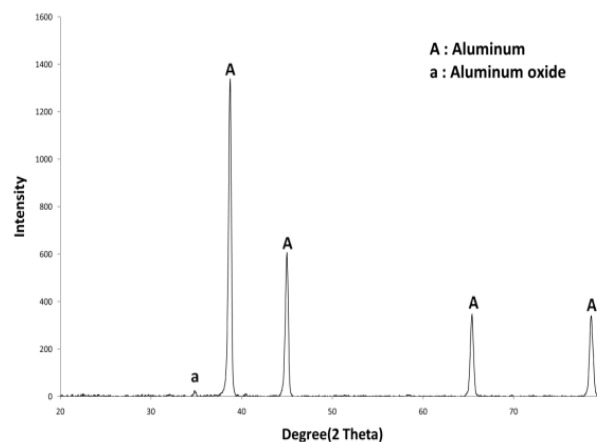
۲- روش تحقیق

در این پژوهش از پودر آلومینیوم (مرک-۱۰۵۶) با متوسط اندازه ذرات ۴۵ میکرومتر به عنوان زمینه کامپوزیت استفاده شد؛ پودر نیتريد سیلیسیم (از یک شرکت چینی با خلوص ۹۰ درصد و میانگین اندازه دانه ۱۰۰ نانومتر) و هم-چنین نانولوله‌های کربنی (OD: 5-15nm، خلوص بالای ۹۵٪ شرکت US Research Nanomaterials) به عنوان ذرات

تاکنون ذرات تقویت‌کننده مختلفی از جمله نیتريد آلومینیوم [۱]، کاربید سیلیسیم [۲]، کاربید بور [۳]، آلومینا [۴] و زیرکونیا [۵] به زمینه آلومینیوم جهت بهبود هرچه بیشتر خواص این فلز افزوده شده‌اند. روش‌های بسیاری بر مبنای نحوه افزودن و شرایط تهیه این دسته از مواد ابداع شده است. از روش‌های ساده هم‌چون ذوب و ریخته‌گری تا روش‌های پیشرفته همگی دارای مزایا و معایب بوده که در این چند دهه اخیر این روش‌ها پیشرفت زیادی داشته‌اند. روش‌های ریخته-گری علاوه بر محدودیت‌های این روش با مشکلاتی هم‌چون واکنش ذرات تقویت‌کننده با زمینه مذاب و یا توده‌ای شدن ذرات تقویت‌کننده روبرو هستند. تحقیقات گسترده‌ای برای کاهش این معایب انجام گرفته است که از جمله این روش‌ها می‌توان به روش‌های متالورژی پودر اشاره نمود [۶]. تاثیر ذرات کاربیدی، اکسیدی و نیتриди مختلفی بر خواص فیزیکی و مکانیکی کامپوزیت‌های زمینه آلومینیوم تهیه شده به روش متالورژی پودر بررسی شده است [۷]. فرآیند متالورژی پودر نسبت به مجموعه روش‌های ریخته‌گری از مزایایی چون توزیع همگن ذرات تقویت‌کننده در فاز زمینه، ساختار ریزدانه و غیره برخوردار است که تاثیر بسزایی بر خواص نهایی قطعات تهیه شده توسط این روش دارد [۷]. انتخاب روش حرارت‌دهی مناسب پس از تهیه قطعات خام در این دسته از روش‌ها سبب بهبود هرچه بیشتر خواص نمونه‌ها می‌گردد؛ به‌نحوی که استفاده از امواج میکروویو به عنوان منبع تولید حرارت با توجه به نرخ گرمایش بسیار بالا و ایجاد حرارت همگن در نمونه و استفاده از روش پلاسما جرقه‌ای به دلیل اعمال فشار هم‌زمان با حرارت‌دهی و کنترل مناسب اندازه دانه می‌تواند گزینه مناسبی در تهیه کامپوزیت‌های آلومینیوم باشند [۷]. ذرات تقویت‌کننده بسیاری به زمینه آلومینیوم اضافه شده‌اند که اخیراً نیتريد سیلیسیم و هم‌چنین نانولوله کربنی بیشتر مورد توجه پژوهشگران بوده است. غسالی و همکاران [۸] در پژوهشی در سال ۲۰۱۵ ذرات کاربید بور و آلومینیوم را توسط روش پلاسما جرقه‌ای تهیه نمودند. نتایج تحقیقات آنها بهبود استحکام و سختی را به میزان ۳۸۲ مگاپاسکال و ۲۴۱ ویکرز نشان داد. غسالی و همکاران [۸] نیز بیان داشتند ذرات کاربید

دستگاه SPEX (Mixer Mill-8000D) در محیط تر (اتانول صنعتی) استفاده شد. برای اختلاط هر سری و انواع مختلف کامپوزیت با زمینه آلومینیوم و با ذرات تقویت کننده با درصدهای وزنی متفاوت، مدت زمان ۲۰ دقیقه در نظر گرفته شد. در پایان، به منظور خروج الکل از مواد اولیه، مخلوط حاصل بر روی یک هیتر در دمای 70°C حرارت داده شد. برای شکل دهی نمونه ها از قالب مکعبی استحکام با ابعاد $25 \times 5 \times 5$ میلی متر و پرس تک محور استفاده شد و نمونه ها در فشار ۲۵۰ مگاپاسکال پرس شدند. پس از فرآیند شکل دهی، نمونه ها در کوره مایکروویو (با قابلیت رسیدن به دمای حداکثر 1600°C همراه با کمک جاذب کاربید سیلیسیم و گرافیت) در بستر گرافیت در دماهای ۶۰۰، ۷۰۰ و 800°C درجه سانتی گراد به مدت یک دقیقه سیتر شدند. فرآیند سیتر در دماهای مختلف، برای کامپوزیت با زمینه آلومینیوم خالص و نانوذرات نیتريد سیلیسیم و همچنین برای آلومینیوم خالص و نانوذرات نیتريد سیلیسیم به همراه درصد وزنی ثابت نانولوله های کربنی در کوره مایکروویو انجام پذیرفت. همچنین نمونه ها جهت سیتر پلاسمای جرقه ای بدون شکل دهی اولیه داخل قالب قرار گرفته و تحت دمای 400°C درجه سانتی گراد تحت فشار ۳۰ مگاپاسکال و به مدت زمان پنج دقیقه سیتر شدند. پس از تکمیل فرآیند سیتر چگالی نمونه ها توسط روش غوطه وری ارشمیدسی اندازه گیری شد. به منظور کاهش خطا، چگالی شش نمونه اندازه گیری و میانگین آنها محاسبه شد. استحکام خمشی نمونه ها توسط دستگاه آزمون خمش مدل Santam-STM 20 با قابلیت بارگذاری حداکثر دو تن با سرعت 1 mm/min و فاصله فک 18 میلی متر اندازه گیری و به منظور کاهش خطا سه نمونه برای هر آزمون در نظر گرفته شد. به منظور بررسی ریزساختار نمونه ها (مورفولوژی و توزیع ذرات فاز تقویت کننده در زمینه) تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی توسط دستگاه (Cambridge S360) تهیه شد. جهت آماده سازی، نمونه ها پس از فرآیند پولیش جهت تخلیه بار الکتریکی در سطح نمونه ها، از فرآیند پوشش دهی توسط طلا با استفاده از دستگاهی با ولتاژ 6 شش کیلوولت و جریان شش میلی آمپر به مدت 10 دقیقه، استفاده شد.

تقویت کننده در این کامپوزیت مورد استفاده قرار گرفت. شکل ۱ الگوی پراش پرتو ایکس آلومینیوم را نشان می دهد.



شکل ۱. الگوی پراش پرتو ایکس آلومینیوم.

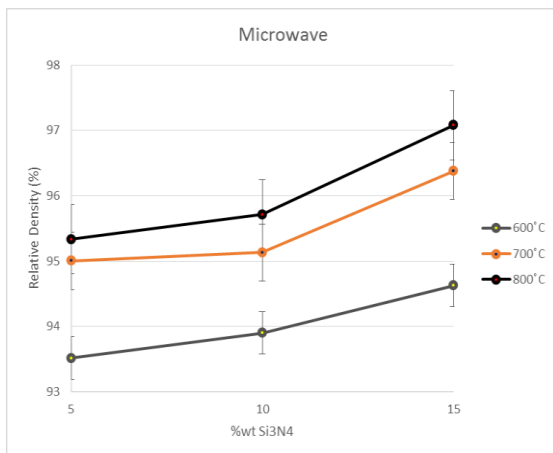
در پژوهش حاضر، پودر آلومینیوم به عنوان زمینه کامپوزیت طی دو فرآیند مجزا ولی مشابه، یکبار پودرهای آلومینیوم توسط ذرات تقویت کننده نیتريد سیلیسیم در ابعاد نانومتری و با نسبت وزنی مشخص که در جدول ۱ نمایش داده شده است مخلوط شدند و بار دیگر ذرات تقویت کننده نیتريد سیلیسیم با همان درصد وزنی مشخص به همراه نانولوله کربنی با درصد وزنی ثابت با پودر آلومینیوم مخلوط شدند. با توجه به استفاده از ذرات تقویت کننده متفاوت در این کامپوزیت در تقسیم بندی اولیه دو نوع کامپوزیت جهت بررسی خواص نهایی ایجاد شد.

جدول ۱. نسبت وزنی مواد اولیه جهت اختلاط

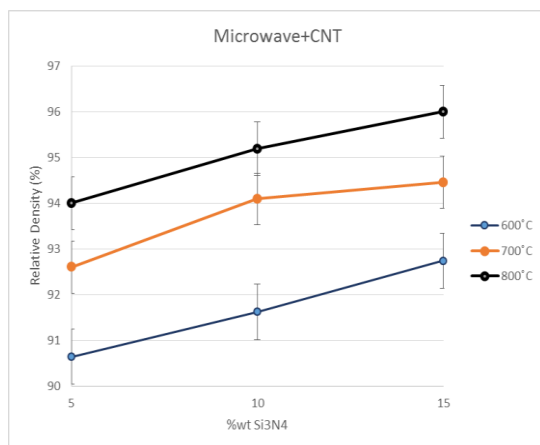
نوع سری	آلومینیوم (درصد وزنی)	نیتريد سیلیسیم (درصد وزنی)	نانولوله های کربنی (درصد وزنی)
سری A	۹۵	۵	---
سری B	۹۰	۱۰	---
سری C	۸۵	۱۵	---
سری D	۹۴٫۷۵	۵	۰٫۲۵
سری E	۸۹٫۷۵	۱۰	۰٫۲۵
سری F	۸۴٫۷۵	۱۵	۰٫۲۵

پس از توزین اولیه پودرها (دقت اندازه گیری ± 0.001 گرم) با نسبت های مشخص، برای اختلاط همگن مواد اولیه از

چگالی نمونه‌های مشابه بدون نانولوله کربنی به ترتیب ۹۵/۳ و ۹۷٪ چگالی بدست آمد.



شکل ۲. نمودار تغییرات چگالی نسبی بر حسب درصد وزنی نیتريد سيليسيم در دماهای مختلف برای نمونه‌های کامپوزیتی سیتتر شده به روش مایکروویو.



شکل ۳. نمودار تغییرات چگالی نسبی بر حسب درصد وزنی نیتريد سيليسيم در دماهای مختلف برای نمونه‌های کامپوزیتی حاوی نانولوله کربنی سیتتر شده به روش مایکروویو.

۳-۲ سینتر با پلاسمای جرقه‌ای

شکل ۴ چگالی نسبی نمونه‌های کامپوزیتی حاوی نانو-لوله کربنی را با افزایش درصد وزنی نیتريد سيليسيم و در دمای ۴۰۰°C توسط روش پلاسمای جرقه‌ای نشان می‌دهد. همان‌طور که از شکل مشخص است با افزایش درصد وزنی نیتريد سيليسيم چگالی نمونه‌های کامپوزیتی افزایش داشته است. چگالی نمونه کامپوزیتی حاوی ۹۷/۸ درصد Si₃N₄ به ۹۸/۹٪ رسید که ۱۵ درصد به حداکثر ۹۸/۹٪ رسیده که

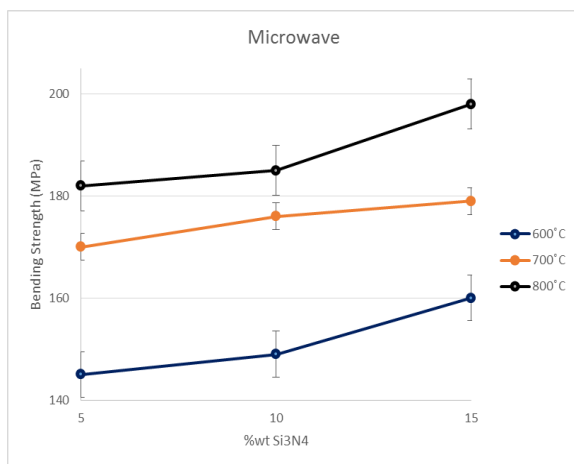
۳- نتایج و بحث

۳-۱ سینتر با مایکروویو

شکل ۲ چگالی نمونه‌های کامپوزیتی را با افزایش درصد وزنی نیتريد سيليسيم و در دماهای مختلف سینتر به روش مایکروویو نشان می‌دهد. شکل ۳ چگالی نمونه‌های کامپوزیتی حاوی نانولوله کربنی را با افزایش درصد وزنی نیتريد سيليسيم و در دماهای مختلف سینتر به روش مایکروویو نشان می‌دهد.

طبق شکل ۲، فاز ثانویه نیتريد سيليسيم با چسبندگی به ذرات آلومینیوم در حین فرآیند سینتر، سبب بهبود فرآیند و افزایش چگالی شده است از طرف دیگر، به دلیل جذب بیشتر امواج مایکروویو توسط نیتريد سيليسيم، با افزایش درصد وزنی این فاز، چگالی افزایش یافته است. باید به این نکته اشاره کرد که به دلیل انرژی سطحی بالای ذرات نانو، با افزایش درصد وزنی فاز ثانویه تمایل به آگلومره شدن و کاهش چگالی وجود دارد. در تحقیق حاضر با افزایش درصد وزنی نیتريد سيليسيم تا ۱۵ درصد وزنی آگلومره شدن اتفاق نیفتاده و چگالی افزایش داشته است. با توجه به محاسبات چگالی به نظر می‌رسد که آگلومراسیون در درصدهای وزنی بیش از ۱۵ درصد اتفاق می‌افتد. هکنر و همکاران در تحقیقی مشابه نشان دادند که آگلومراسیون ذرات نیتريد سيليسيم و کاهش چگالی در درصدهای وزنی بیش از ۱۵ درصد وزنی اتفاق می‌افتد. همچنین آنها نشان دادند که بیشترین چگالی نمونه‌های کامپوزیتی مربوط به نمونه حاوی ۱۵ درصد وزنی بوده است [۲]. با مقایسه شکل‌های ۲ و ۳ مشخص می‌شود که در شرایط یکسان پخت و ترکیب مشابه، در نمونه کامپوزیتی، با افزودن نانولوله کربنی، حتی به مقدار بسیار کم (حدود پنج درصد وزنی) چگالی کاهش یافته است. دلیل این امر را می‌توان خاصیت دیرگدازی و سینترپذیری ضعیف نانولوله کربنی، بیان نمود. در دمای سینتر ۸۰۰°C چگالی برای نمونه حاوی پنج درصد نیتريد سيليسيم، ۹۵٪ و برای نمونه حاوی ۱۵ درصد وزنی نیتريد سيليسيم حدود ۹۶/۹٪ محاسبه شد از طرف دیگر

وزنی نیتريد سيليسيم، استحکام خمشی نمونه‌ها، افزایش یافته است. به‌طوری‌که در سينتر مايکروویو، در دمای 700°C استحکام خمشی، برای نمونه حاوی پنج درصد و ۱۵ درصد وزنی نیتريد سيليسيم، از 170 MPa به 179 MPa رسیده است. با استفاده از SPEX و مخلوط کردن پودرها قبل از عملیات سينتر، ذرات پودری آلومينوم و نیتريد سيليسيم به صورت تصادفی، در کنار هم قرار می‌گیرند و خوشه‌های بزرگ و متمرکز ذرات نیتريد سيليسيم تبدیل به ذرات منفرد و خوشه‌های کوچکتر می‌شوند. توزیع ذرات قبل از سينتر، منجر به توزیع مناسب ذرات در ریزساختار نهایی می‌شود. در نتیجه، نابیایی‌ها برای حرکت در ریزساختار، باید از تعداد موانع بیشتر نیتريد سيليسيم عبور کنند که با ایجاد سازوکار کندوکاو، منجر به افزایش استحکام می‌گردند.

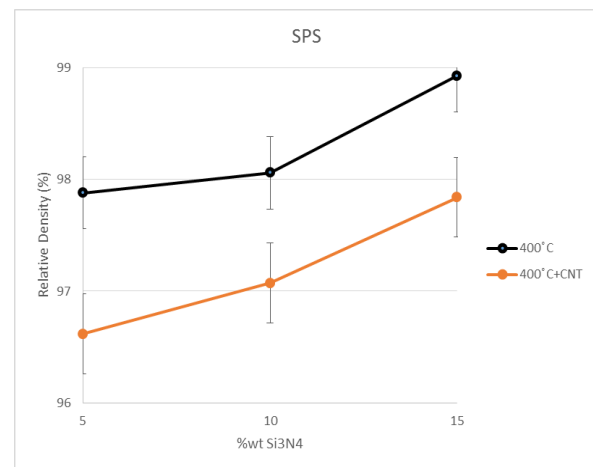


شکل ۵. نمودار تغییرات استحکام خمشی بر حسب درصد وزنی نیتريد سيليسيم در دماهای مختلف برای نمونه‌های کامپوزیتی سينتر شده به روش مايکروویو.

شکل ۶، استحکام خمشی نمونه‌های کامپوزیتی حاوی نانولوله کربنی را با افزایش درصد وزنی نیتريد سيليسيم و در دماهای مختلف سينتر به روش مايکروویو نشان می‌دهد. حضور ذرات نانومتری نانولوله کربنی، نیتريد سيليسيم و توزیع مناسب در زمینه آنها، منجر به افزایش استحکام خمشی نمونه‌های کامپوزیتی شده است. مشخص است، با افزایش درصد Si_3N_4 از پنج درصد وزنی به ۱۵ درصد وزنی و افزودن نانولوله کربنی، استحکام خمشی برای نمونه‌های سينتر شده در دمای 800°C از 200 MPa به 222 MPa افزایش یافته است.

نزدیک چگالی نهایی است. همان‌طور که گفته شد، با توجه به خاصیت دیرگدازی و سينترپذیری ضعیف نانولوله کربنی، با افزایش پنج درصد وزنی نانولوله کربنی، چگالی نمونه کامپوزیتی، کاهش یافته است. نانولوله‌های کربنی، بین ذرات آلومينوم، در حین سينتر، قرار می‌گیرند و به دلیل دیرگداز بودن، مانع از پیوند ذرات آلومينوم به یکدیگر می‌شوند.

سينتر به روش پلاسما جرقه‌ای، با استفاده اعمال هم-زمان فشار و حرارت ناشی از پلاسمای جرقه‌ای به صورت پالسی در دماها و زمان‌های پایین‌تر نسبت به روش‌های متداول صورت می‌گیرد. با مقایسه نمونه حاوی ۱۵ درصد وزنی نیتريد سيليسيم به روش مايکروویو در دمای 800°C و سينتر همين نمونه به روش جرقه قوس پلاسما در دمای 400°C منجر به افزایش چگالی نسبی از ۹۷٪ به ۹۸٫۹٪ شده است. مشاهده می‌شود که با استفاده از روش پلاسمای جرقه‌ای، در دماهای کمتر از روش مايکروویو، نتایج بهتر و قابل قبول‌تری به دست خواهد آمد.

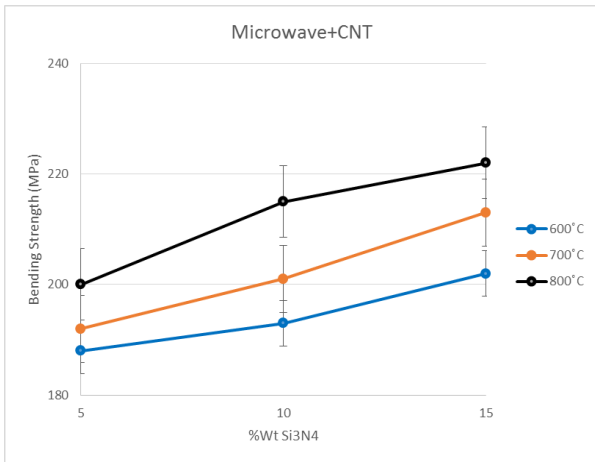


شکل ۴. نمودار تغییرات چگالی نسبی بر حسب درصد وزنی نیتريد سيليسيم برای نمونه‌های کامپوزیتی بدون نانولوله کربنی و با افزودن نانولوله‌های کربنی سينتر شده به روش پلاسمای جرقه‌ای در دمای 400°C .

نتایج استحکام خمشی

شکل ۵ استحکام خمشی نمونه‌های کامپوزیتی را با افزایش درصد وزنی نیتريد سيليسيم و در دماهای مختلف سينتر، به روش مايکروویو نشان می‌دهد. ملاحظه می‌شود که با افزایش دما و کاهش تخلخل، استحکام خمشی نمونه‌های کامپوزیتی، افزایش یافته است. از طرف دیگر، با افزایش درصد

و منجر به اتصال قوی ذرات نیتريد سيليسيم و آلومينيوم شده است [۷].



شکل ۶. نمودار تغییرات استحکام بر حسب درصد وزنی نیتريد سيليسيم در دماهای مختلف برای نمونه‌های کامپوزیتی حاوی نانولوله کربنی سیتتر شده به روش میکروویو.

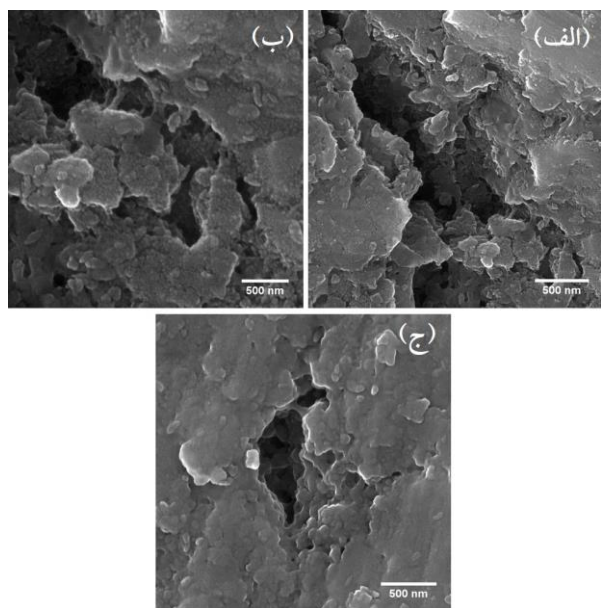
اتصال قوی و فصل مشترک مستحکم بین ذرات تقویت کننده و فاز زمینه در نهایت منجر به افزایش قابل توجه در استحکام خمشی نمونه‌های کامپوزیتی سیتتر شده به روش پلاسمای جرقه‌ای شده است (نتایج حاصل از استحکام خمشی این مطلب را تایید می‌کند). در واقع یک انتقال بار مناسب از آلومینیوم زمینه به نیتريد سيليسيم تقویت کننده نیازمند اتصال مناسب و قوی در فصل مشترک می‌باشد [۷]. در نتیجه پیوند بین ذرات تقویت کننده و زمینه به طور مستقیم روی خواص مکانیکی از جمله اتصال خمشی تاثیرگذار است. با افزایش فشار تک محوری در فرآیند سینترینگ پلاسمای جرقه‌ای کیفیت فصل مشترک افزایش یافته و پیوند بین ذرات نیتريد سيليسيم، نانولوله کربنی و آلومینیوم بهبود یافته است. از طرف دیگر با اعمال فشار در حین فرآیند سینتر، تداخل موجود در فصل مشترک کاهش یافت و در نتیجه استحکام خمشی کامپوزیت افزایش می‌یابد. این نتایج با یافته‌های غسالی و همکاران مطابقت کامل دارد [۸]. باید این نکته را در نظر گرفت که اعمال فشار بیش از حد در فرآیند سینترینگ پلاسمای جرقه‌ای منجر به خرد شدن نانولوله‌های کربنی و هم چنین ایجاد ترک در فصل مشترک فاز تقویت کننده و زمینه شده و باعث ایجاد عیب در فصل مشترک و در نهایت کاهش خواص مکانیکی از جمله استحکام خمشی را به دنبال خواهد

با مقایسه دو نمونه یکسان از لحاظ ترکیب شیمیایی سیتتر شده در دمای مشخص، بدون نانولوله کربنی (شکل ۷) و نمونه حاوی نانولوله کربنی (شکل ۷)، مشخص است که نانولوله کربنی نقش موثری در افزایش استحکام خمشی داشته است. علاوه بر سازوکار استحکام دهی از طریق ذرات تقویت کننده، می‌توان از سازوکار کاهش اندازه دانه زرن نام برد.

$$Z = 4r/3f \quad (1)$$

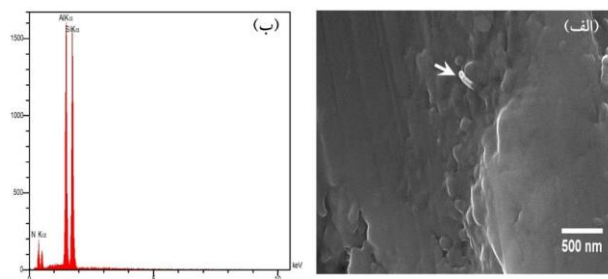
در رابطه (۱)، Z اندازه دانه‌های زمینه، f کسر حجمی فاز ثانویه و r شعاع ذرات ثانویه است. به عبارت دیگر، با افزایش کسر حجمی ذرات تقویت کننده، اندازه دانه فاز زمینه، کاهش می‌یابد. در تحقیق حاضر، با افزودن درصد حجمی ذرات نیتريد سيليسيم به ۳/۹، ۸ و ۱۲/۱ (معادل ۵، ۱۰ و ۱۵ درصد وزنی) با شعاع ذرات کمتر ۱۰۰ نانومتر، اندازه دانه‌های آلومینیوم طبق رابطه زرن، کاهش یافته است. افزودن ذرات نیتريد سيليسيم و نانولوله کربنی از یک سو، با ایجاد تنش پسماند در ساختار نانوکامپوزیت و انتقال تنش پسماند فشاری به طرف مرزدانه‌ها، موجب افزایش استحکام و چقرمگی شکست آنها شده است [۱۰] و از سوی دیگر، نقشی شبیه یک پین را بازی می‌کنند و با قرارگیری در مرزدانه‌ها، از تحرک آنها جلوگیری کرده و مانع از رشد بی‌رویه‌ی دانه‌ها می‌شوند و با حفاظت از مرزدانه مانع گسترش ترک در طول آن می‌گردند [۱۱]. باید به این نکته اشاره کرد که نانو بودن ذرات نیتريد سيليسيم تعداد موانع را افزایش داده است. با توجه به رابطه هال-پچ، کاهش اندازه دانه، منجر به افزایش استحکام شکست می‌شود. پس می‌توان نتیجه گرفت که چرا با افزودن ذرات نیتريد سيليسيم استحکام کامپوزیت افزایش می‌یابد. اما باید به این نکته هم اشاره کرد که افزودن بیش از مقدار مشخص نیتريد سيليسيم منجر به کاهش چگالی شده و اثر معکوس بر استحکام و چقرمگی شکست خواهد داشت.

مرادف و همکاران [۶] گزارش دادند که ذرات تقویت کننده نیتريد سيليسيم توسط مذاب آلومینیوم در دمای کمتر از ۱۰۰۰°C تر نمی‌شود. در سینتر پلاسمای جرقه‌ای، مشکل ترشوندگی ذرات نیتريد سيليسيم توسط آلومینیوم به دلیل سینتر در دماهای پایین تر از دمای ذوب آلومینیوم برطرف شده



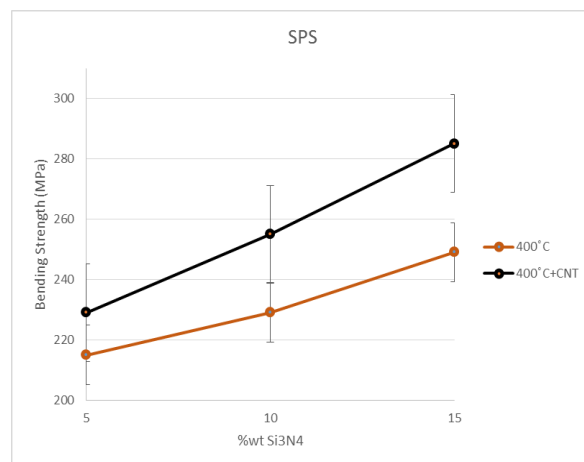
شکل ۸. ریزساختار نمونه های کامپوزیتی حاوی پنج درصد وزنی نیتريد سيليسيم سينتر شده به روش مايكروويو در دمای (الف) ۶۰۰°C، (ب) ۷۰۰°C و (ج) ۸۰۰°C.

شکل ۹- الف، ریزساختار نمونه حاوی ۱۵ درصد وزنی نیتريد سيليسيم سينتر شده به روش مايكروويو در دمای ۸۰۰°C را نشان می دهد. از شکل استنباط می شود که با افزایش درصد وزنی نیتريد سيليسيم و افزایش دما، میزان تخلخل در ریزساختار کاهش یافته است. از روی شکل مشخص است که میزان تخلخل در این نمونه ها کمترین میزان نسبت به سایر نمونه های سينتر شده به روش مايكروويو دارد که با نتايج حاصل از محاسبات چگالی همخوانی مناسبی دارد. نتايج آناليز EDS روی نقطه مشخص شده در شکل، وجود ذرات نیتريد سيليسيم را در ریزساختار اثبات کرد (شکل ۹ ب).



شکل ۹. (الف) ریزساختار نمونه حاوی ۱۵ درصد وزنی نیتريد سيليسيم سينتر شده به روش مايكروويو در دمای ۸۰۰°C (ب) آناليز EDS قسمت مشخص شده با فلش.

داشت. نتايج مطلوب حاصل از استحکام خمشی نشان می دهد که مقدار فشار اعمالی ۴۰ MPa مناسب بوده است.



شکل ۷. نمودار تغییرات استحکام خمشی بر حسب درصد وزنی نیتريد سيليسيم برای نمونه های کامپوزیتی بدون نانولوله کربنی و با افزودن نانولوله های کربنی سينتر شده به روش پلاسمای جرقه ای در دمای ۴۰۰°C

بررسی های ریزساختاری

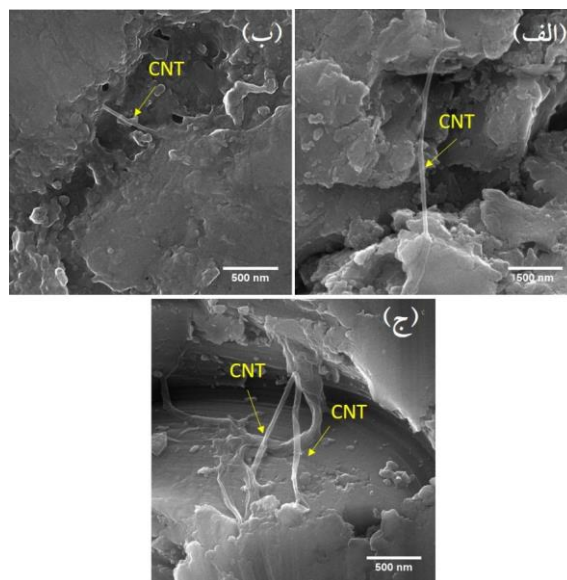
شکل ۸ ریزساختار نمونه حاوی ۵ درصد وزنی Si₃N₄ سينتر شده در دماهای مختلف ۶۰۰°C، ۷۰۰°C و ۸۰۰°C به روش مايكروويو را نشان می دهد. وجود تخلخل های نمونه های سينتر شده در دمای ۶۰۰°C نشان دهنده این است که با توجه به وجود لایه اکسیدی در سطح ذرات اولیه آلومینیوم زمینه در فصل مشترک ذرات تقویت کننده با ذرات آلومینیوم فرآیند سينتر بطور کامل انجام نشده است و تخلخل هایی در این فصل مشترک مشاهده می شود. به نظر می رسد دمای سينتر بالاتر از ۸۰۰°C توانسته است موجب شکسته شدن لایه اکسیدی موجود در سطح ذرات آلومینیوم شود و پر نمودن تخلخل ها توسط فاز مایع نسبت به دماهای پایین تر سينتر (۶۰۰°C و ۷۰۰°C) تسريع شده است.

قوی نانولوله‌های کربنی به زمینه نقش موثری در انتقال بار از زمینه به فاز تقویت‌کننده داشته است. به دست آوردن یک توزیع یکنواخت از نانولوله‌های کربنی در زمینه آلومینیومی یکی از بزرگ‌ترین چالش‌ها در این زمینه تحقیقاتی است [۱]. توزیع نانولوله‌ها در غلظت‌های بالاتر احتمال آگلومره شدن را افزایش می‌دهد. آگلومره شدن تقویت‌کننده باعث تمرکز تنش و تخلخل شده و قابلیت تغییرشکل و خواص مکانیکی را به شدت تضعیف می‌کند [۲].

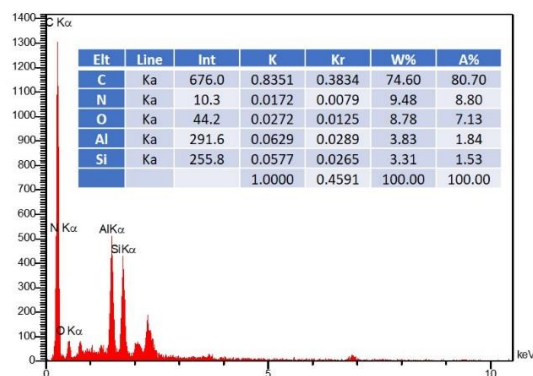
می‌توان استدلال کرد که مقدار پنج درصد وزنی نانولوله کربنی قابل قبول بوده و هیچ‌گونه آگلومراسیون و اتصال ضعیف بین نانولوله‌های کربنی به یکدیگر و حتی به تقویت‌کننده نیتريد سیلیسیم صورت نگرفته است. شایان ذکر است که عدم اتصال قوی و مستحکم فاز تقویت‌کننده به زمینه و اتصال فاز تقویت‌کننده به تقویت‌کننده منجر به افت شدید در خواص مکانیکی خواهد شد. توزیع یکنواخت فاز ثانویه نتایج مطلوبی در سختی نمونه‌های کامپوزیتی ارائه داده است.

شکل ۱۲ توزیع ذرات فاز نیتريد سیلیسیم را در ریزساختار نمونه سینترینگ پلاسمای جرقه‌ای شده حاوی ۱۵ درصد وزنی نیتريد سیلیسیم در دمای 400°C نشان می‌دهد. فاز ثانویه نیتريد سیلیسیم به صورت یکنواخت در زمینه آلومینیوم پراکنده شده است. نمونه‌های سینتر شده با پلاسمای جرقه‌ای همان‌طور که در بخش چگالی توضیح داده شد چگالی نسبی بالاتری نسبت به نمونه‌های سینتر شده به روش مایکروویو دارا بودند. وجود تخلخل جزئی این مطلب را اثبات می‌کند. دمای پایین و اعمال فشار نقش موثری در فرآیند متراکم‌سازی نمونه‌های کامپوزیتی داشته و در مقایسه با نمونه‌های سینتر شده به روش مایکروویو، نمونه‌ها حداقل تخلخل و بیشترین چگالی را دارند. علاوه بر این، هیچ‌گونه آگلومره شدن و به هم چسبیدگی بین ذرات در شکل مشاهده نمی‌شود. از طرف دیگر، انتخاب حداکثر ۱۵ درصد وزنی نیتريد سیلیسیم مناسب بوده و ساختار یکنواخت و توزیع مناسب در ریزساختار ایجاد کرده است.

شکل ۱۰ ریزساختار نمونه حاوی ۱۵ درصد وزنی نیتريد سیلیسیم به همراه پنج درصد وزنی نانولوله کربنی را در دماهای مختلف 600°C ، 700°C و 800°C نشان می‌دهد.



شکل ۱۰. ریزساختار نمونه‌های کامپوزیتی حاوی ۱۵ درصد وزنی نیتريد سیلیسیم به همراه پنج درصد وزنی نانولوله کربنی سینتر شده به روش مایکروویو در دمای (الف) 600°C ، (ب) 700°C و (ج) 800°C



شکل ۱۱. آنالیز EDS قسمت‌های مشخص شده در شکل نشان‌دهنده وجود نانولوله کربنی در ریزساختار.

نتایج SEM نشان می‌دهد اتصال قوی بین فاز نیتريد سیلیسیم و نانولوله کربنی تقویت‌کننده با زمینه وجود دارد. هم‌چنین، هیچ‌گونه ترکی در فصل مشترک مشاهده نشد. نتایج آنالیز EDS حضور نانولوله کربنی را در ریزساختار ثابت کرد (شکل ۱۱). همان‌طور که از تصاویر مشخص است نانولوله‌های کربنی به خوبی در بین دانه‌های آلومینیوم قرار گرفته‌اند. اتصال

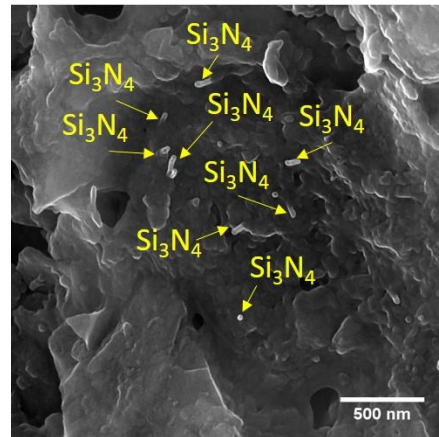
دماهای 700°C و 600°C است. هر چند روش سیتترینگ پلاسمای جرقه‌ای نتایج بهتری ارائه داده است اما مزیت اصلی روش مایکروویو صرفه در انرژی و هزینه است. هم‌چنین در روش مایکروویو محدودیت ابعادی برای ساخت نمونه‌ها وجود ندارد کما اینکه در روش سیتترینگ پلاسمای جرقه‌ای به دلیل محدودیت قالب، ساخت نمونه‌های پیچیده و بزرگ، عملاً امکان‌پذیر نیست.

۴- نتیجه

در این پژوهش، پودر اولیه آلومینیوم خالص و به عنوان زمینه کامپوزیت همراه با ذرات نیتريد سيليسيم با به میزان ۵، ۱۰ و ۱۵ درصد وزنی و نانولوله کربنی با درصد وزنی ثابت مخلوط شدند. نمونه‌ها توسط پلاسمای جرقه‌ای و مایکروویو در شرایط دمایی مختلف سیتتر شدند.

نتایج حاصل از اندازه‌گیری چگالی نشان می‌دهد، نمونه حاوی ۱۵ درصد وزنی نیتريد سيليسيم به روش مایکروویو در دمای 800°C چگالی نسبی ۹۶/۹٪ دارد و با سیتتر همین نمونه به روش پلاسمای جرقه‌ای در دمای 400°C ، افزایش چگالی نسبی تا ۹۸/۹٪ دیده می‌شود. توسط تصاویر SEM مشاهده شد که سیتتر در دمای پایین همراه با اعمال فشار، نقش موثری در فرآیند تراکم‌سازی نمونه‌های کامپوزیتی داشته و در مقایسه با نمونه‌های سیتتر شده به روش مایکروویو، نمونه‌ها، حداقل تخلخل و بیشترین چگالی را دارند. هیچ‌گونه آگلومره شدن و به هم چسبیدگی بین ذرات در تصاویر ریزساختار، مشاهده نمی‌شود. روش پلاسمای جرقه‌ای در دماهای بسیار کمتر از روش مایکروویو، نتایج بهتر و قابل قبول‌تری داشته است.

در تحقیق حاضر، به دلیل استفاده از روش سیتتر پلاسمای جرقه‌ای مشکل ترشوندگی ذرات نیتريد سيليسيم توسط آلومینیوم به دلیل سیتتر در دماهای پایین‌تر از دمای ذوب آلومینیوم برطرف شده و منجر به اتصال قوی ذرات نیتريد سيليسيم و آلومینیوم شده است. اتصال قوی و فصل-مشترک مستحکم بین ذرات تقویت‌کننده و فاز زمینه در نهایت منجر به افزایش قابل توجه در استحکام خمشی نمونه‌های کامپوزیتی سیتتر شده به روش پلاسمای جرقه‌ای شده است.



شکل ۱۲. توزیع مناسب فاز ثانویه در زمینه آلومینیوم نمونه حاوی ۱۵ درصد وزنی نیتريد سيليسيم سیتتر شده به روش پلاسمای جرقه‌ای.

شکل ۱۳ ریزساختار نمونه سیتتر شده به روش پلاسمای جرقه‌ای حاوی ۱۵ درصد وزنی نیتريد سيليسيم و ۵ درصد وزنی نانولوله کربنی در دمای 400°C را نشان می‌دهد. توزیع یکنواخت و مناسب ذرات نیتريد سيليسيم در کنار نانولوله کربنی دیده می‌شود. از شکل مشخص است که ذرات نیتريد سيليسيم در زمینه آلومینیوم توزیع شده و در واقع نانولوله‌های کربنی به نحوی بین دانه‌های آلومینیوم اتصال ایجاد کرده‌اند. هم‌چنین، هیچ‌گونه اتصال بین ذرات نیتريد سيليسيم و نانولوله کربنی مشاهده نمی‌شود. اتصال نانولوله کربنی به نیتريد سيليسيم اتصال ضعیف بوده و با کیفیت فصل‌مشترک پایین منجر به افت خواص سختی می‌شود.



شکل ۱۳. توزیع مناسب فاز ثانویه در زمینه آلومینیوم نمونه حاوی ۱۵ درصد وزنی نیتريد سيليسيم حاوی پنج درصد وزنی نانولوله کربنی سیتتر شده به روش پلاسمای جرقه‌ای.

به‌طور کلی، در بررسی‌های ریزساختاری نمونه‌ها ساخته شده به روش مایکروویو در دمای 800°C قابل قبول بوده و دارای تخلخل نسبی کمتری نسبت به نمونه‌های سیتتر شده در

- Engineering and Materials Sciences, 2008. 15, (3), 247-255. <http://npl.csircentral.net/id/eprint/1099>
10. A. Esawi, and K. Morsi, "Dispersion of carbon nanotubes (CNTs) in aluminum powder," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 2007, 38, (2), 646-650. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2006.04.006>
 11. C. He, N. Zhao, C. Shi, X. Du, J. Li, H. Li, and Q. Cui, "An approach to obtaining homogeneously dispersed carbon nanotubes in Al powders for preparing reinforced Al-matrix composites," *Advanced Materials*, 2007, 19, (8), pp.1128-1132. <https://doi.org/10.1080/15376494.2014.929766>

حضور ذرات نانومتری نانولوله کربنی و نیتريد سيليسيم و توزيع مناسب در زمينه آنها، منجر به افزايش استحکام خمشی نمونه‌های کامپوزیتی شده است. مشخص شده است، با افزايش درصد نیتريد سيليسيم از پنج درصد وزنی به ۱۵ درصد وزنی و افزودن نانولوله کربنی، استحکام خمشی برای نمونه‌های سیتتر شده با مایکروویو در دمای ۸۰۰°C از ۲۰۰ MPa به ۲۲۲ MPa افزايش یافته است.

سپاسگزاری

از کلیه همکاران در پژوهشگاه مواد و انرژی که در انجام این پژوهش ما را یاری نموده اند کمال تشکر را دارم.

مراجع

1. W. M. Khairaldien, A. A. Khalil, and M. R. Bayoumi, "Production of aluminum-silicon carbide composites using powder metallurgy at sintering temperatures above the aluminum melting point," *Journal of Testing and Evaluation*, 2007, 35(6), 55-667. <https://doi.org/10.1520/JTE100677>
2. B. Hekner, J. Myalski, T. Pawlik, and M. Sopicka-Lizer, "Effect of carbon in fabrication Al-SiC nanocomposites for tribological application," *Materials*, 2017, 10, (6), 679. DOI: 10.3390/ma10060679
3. J. Echeverria, N. Rodríguez, J. Vleugels, K. Vanmeensel, A. Reyes-Rojas, A. Garcia-Reyes, C. Dominguez-Rios, A. Aguilar-Elguezabal, and M. H. Bocanegra-Bernal, "Hard and tough carbon nanotube-reinforced zirconia-toughened alumina composites prepared by spark plasma sintering," *Carbon*, 2012, 50, (2), 706-717. DOI: 10.1016/j.carbon.2011.09.031
4. M. Naranjo, J. A. Rodriguez, and E. J. Herrera, "Sintering of Al/AlN composite powder obtained by gas-solid reaction milling," *Scripta materialia*, 2003, 49, (1), 65-69. DOI: 10.1016/S1359-6462(03)00179-9
5. L. M. Tham, M. Gupta, and L. Cheng, "Effect of limited matrix-reinforcement interfacial reaction on enhancing the mechanical properties of aluminium-silicon carbide composites," *Acta Materialia*, 2001, 49, (16), 3243-3253. [https://doi.org/10.1016/S1359-6454\(01\)00221-X](https://doi.org/10.1016/S1359-6454(01)00221-X)
6. L. Mouradoff, P. Tristant, J. Desmaison, J. C. Labbe, M. Desmaison-Brut, and R. Rezakhanlou, "Interaction between liquid aluminium and non-oxide ceramics (AlN, Si₃N₄, SiC)." 177-188. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/KEM.113.177>
7. Z.-y. Xiu, G.-q. Chen, G.-h. Wu, W.-s. Yang, and Y.-m. Liu, "Effect of volume fraction on microstructure and mechanical properties of Si₃N₄/Al composites," *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*, 2011, 21, 285-289. [https://doi.org/10.1016/S1003-6326\(11\)61592-6](https://doi.org/10.1016/S1003-6326(11)61592-6)
8. E. Ghasali, M. Alizadeh, and T. Ebadzadeh, "Mechanical and microstructure comparison between microwave and spark plasma sintering of Al-B₄C composite," *Journal of Alloys and Compounds*, 2016, 655, 93-98. DOI: 10.1016/j.jallcom.2015.09.024
9. A. K. Srivastava, C. L. Xu, B. Q. Wei, R. Kishore, and K. N. Sood, "Microstructural features and mechanical properties of carbon nanotubes reinforced aluminum-based metal matrix composites," *Indian Journal of*