مواد و فناوری های پیشرفته

مجله علمی پژوهشی

دوره ۱۰، شماره ۲، تابستان ۱۴۰۰

شاپا چاپی: ۰۸۱۰-۲۷۸۳
شاپا الکترونیکی: ۰۸۲۹-۲۷۸۳

اثر سرعت سردکردن در انحلال کامل و زمان پیرسازی بر ریزساختار و سختی سوپرآلیاژ IN718 تولید شده به روش ذوب گزینشی با لیزر (SLM) ۱-۱۱

حبیب همت‌زاده دستگردی، محسن استاد شعبانی، یزدان شجری، محسن سمیعی

سنتز الکتروشیمیایی نانوساختارهای گارنت ایتریوم آلومینیوم در حضور سورفکتانت کاتیونی: CTAB ۱۳-۱۹

مجتبی حسینی‌فرد، حسن گلدوز، علیرضا بدیعی، اصغر کاظم‌زاده، کامران احمدی

ساخت داربست‌های آپاتیتی نانوساختار به روش ریخته‌گری انجمادی برای مهندسی بافت استخوان ۲۱-۳۱

شکوفه برهان، جواد اسماعیل‌زاده

اثر روش آماده‌سازی سطح زیرلایه فولاد زنگ‌نزن ۳۰٤ بر فرایند پوشش‌دهی پلیمرهای رسانای پلی‌پیرول/پلی‌آنیلین و بهبود مقاومت به خوردگی ۳۳-٤٤

نیوشا پناهی، محمدرضا افشارمقدم زنجانی، هادی عادل‌خانی

بررسی ریزساختار و خواص کششی نانوکامپوزیت‌های Al5083-TiB_2 تولیدشده به روش ریخته‌گری گردابی ٤٥-٥٧

علی علیزاده، مهدی عبدالهی آذغان

طراحی و شبیه‌سازی دیود اثر میدانی با تحرک الکترونی بالا مبتنی بر AlGaN/GaN ٥٩-٦٩

تارا غفوری، نگین معنوی زاده، متینه سادات حسینی قیداری

مقایسه خواص الکتریکی و اپتیکی لایه‌های نازک نانوساختاری TeO_2 قبل و بعد از تابش گاما ۷۱-۸۲

توکل توحیدی

اثر ساچمه‌زنی پرانرژی بر خواص پوشش استلایت ٦ اعمال‌شده روی فولاد زنگ‌نزن ۳۱٦ به روش لایه‌نشانی جرقه الکتریکی ۸۳-۹٦

مهدی غلام‌پور، محمدحسن عامری

ISSN: 2783-0810; e-ISSN: 2783-0829

فصلنامه مواد و فناوری‌های پیشرفته: دوره ۱۰، شماره ۲، (تابستان ۱٤۰۰)، ۹٦-۱

فهرست

اثر سرعت سردکردن در انحلال کامل و زمان پیرسازی بر ریزساختار و سختی سوپرآلیاژ IN718 تولید شده به روش ذوب گزینشی با لیزر (SLM) ۱-۱۱

حبیب همت‌زاده دستگردی، محسن استاد شعبانی، یزدان شجری، محسن سمیعی

سنتز الکتروشیمیایی نانوساختارهای گارنت ایتریوم آلومینیوم در حضور سورفکتانت کاتیونی: CTAB ۱۳-۱۹

مجتبی حسینی‌فرد، حسن گلدوز، علیرضا بدیعی، اصغر کاظم‌زاده، کامران احمدی

ساخت داربست‌های آپاتیتی نانوساختار به روش ریخته‌گری انجمادی برای مهندسی بافت استخوان ۲۱-۳۱

شکوفه برهان، جواد اسماعیل‌زاده

اثر روش آماده‌سازی سطح زیرلایه فولاد زنگ‌نزن ۳۰٤ بر فرایند پوشش‌دهی پلیمرهای رسانای پلی‌پیرول/پلی‌آنیلین و بهبود مقاومت به خوردگی ۳۳-٤٤

نیوشا پناهی، محمدرضا افشارمقدم زنجانی، هادی عادل‌خانی

بررسی ریزساختار و خواص کششی نانوکامپوزیت‌های $Al5083-TiB_2$ تولیدشده به روش ریخته‌گری گردابی ٤٥-٥۷

علی علیزاده، مهدی عبدالهی آذغان

طراحی و شبیه‌سازی دیود اثر میدانی با تحرک الکترونی بالا مبتنی بر AlGaN/GaN ۵۹-٦۹

تارا غفوری، نگین معنوی زاده، متینه سادات حسینی قیداری

مقایسه خواص الکتریکی و اپتیکی لایه‌های نازک نانوساختاری TeO_2 قبل و بعد از تابش گاما ۷۱-۸۲

توکل توحیدی

اثر ساچمه‌زنی پرانرژی بر خواص پوشش استلایت ٦ اعمال‌شده روی فولاد زنگ‌نزن ۳۱٦ به روش لایه‌نشانی جرقه الکتریکی ۸۳-۹٦

مهدی غلام‌پور، محمدحسن عامری

فصلنامه مواد و فناوری‌های پیشرفته

Journal Homepage: www.jamt.ir

مقاله کامل پژوهشی

اثر سرعت سردکردن در انحلال کامل و زمان پیرسازی بر ریزساختار و سختی سوپرآلیاژ IN718 تولید شده به روش ذوب گزینشی با لیزر (SLM)

حبیب همت‌زاده دستگردی [۱]، محسن استاد شعبانی [۲*]، یزدان شجری [۳]، محسن سمیعی [۴]

[۱] دانشجوی کارشناسی ارشد، دانشگاه صنایع و معادن ایران، تهران، تهران، ایران

[۲] استادیار، پژوهشکده سرامیک، پژوهشگاه مواد و انرژی، مشکین‌دشت، البرز، ایران

[۳] دانشجوی دکتری، پژوهشکده سرامیک، پژوهشگاه مواد و انرژی، مشکین‌دشت، البرز، ایران

[۴] دانشجوی دکتری، گروه مهندسی مواد، دانشکده فنی و مهندسی، واحد کرج، دانشگاه آزاد اسلامی، کرج، البرز، ایران

تاریخچه مقاله:

ثبت اولیه: ۱۳۹۹/۰۱/۰۸

دریافت نسخهٔ اصلاح‌شده: ۱۳۹۹/۰۳/۳۰

پذیرش قطعی: ۱۴۰۰/۰۴/۲۵

کلیدواژه‌ها:

سوپرآلیاژ IN718،

ذوب گزینشی با لیزر،

سرعت سرد¬کردن،

پیرسازی،

ریزساختار

چکیده آلیاژ IN718 نوعی سوپرآلیاژ پایه نیکل با استحکام بالاست که بیشتر در دماهای متوسط و شرایط کاری خورنده استفاده می‌شود. در پژوهش حاضر، نمونه‌های تولید شده باروش ذوب گزینشی با لیزر (SLM) در دمای ۱۰۴۰ سلسیوس و زمان ۱۲۰ دقیقه، محلول‌سازی شدند. پس از انحلال، نمونه‌ها در سه محیط سردایش آب، هوا و کوره خاموش‌شده با درِ باز، سردایش شدند. در انتها، نمونه‌ها در سه شرایط استاندارد به مدت زمان ۴۸ و ۷۲ ساعت پیرسازی شدند. برای بررسی تأثیر نرخ سرمایش پس از انحلال و زمان پیرسازی، بر مشخصه رسوبات و ریزساختار نمونه‌ها، از میکروسکوپ الکترونی روبشی نشر میدانی (FESEM)، پراش پرتو ایکس (XRD) و آزمون سختی‌سنجی استفاده شد. نتایج نشان داد که افزایش زمان پیرسازی در شرایط ثابت محلول‌سازی، کسر حجمی و اندازه فازهای ثانویه را افزایش می‌دهد. همچنین، کاهش سرعت سردکردن در مرحله محلول‌سازی، به افزایش سختی نمونه‌ها در مرحله پیرسازی منجر می‌شود. درنهایت، با افزایش زمان پیرسازی، بیشترین سختی نمونه، ۷۹۴ ویکرز بدست آمد.

https://doi.org/10.30501/jamt.2020.224723.1080 URL: https://www.jamt.ir/article_126425.html

Original Research Article

Journal of Advanced Materials and Technologies (JAMT): Vol. 10, No. 2, (Summer 2021), 1-11

The Effect of Cooling Rate After Full Solution and Aging Time on Microstructure and Hardness of IN718 Superalloy Fabricated via SLM

Habib Hematzadeh Dastgerdi [1], Mohsen Ostadshabani [2*], Yazdan Shajari [3], Mohsen Samiee [4]

[1] *M. Sc. Student, Iran University of Industries and Mines (IUIM), Tehran, Tehran, Iran*

[2] *Assistant Professor, Department of Ceramics, Materials and Energy Research Center (MERC), Meshkindasht, Alborz, Iran*

[3] *Ph. D. Student, Department of Ceramics, Materials and Energy Research Center, (MERC), Meshkindasht, Alborz, Iran*

[4] *Ph. D. Student, Department of Metallurgy and Materials Engineering, Karaj Branch, Islamic Azad University, Karaj, Alborz, Iran*

***عهده دار مکاتبات**

نشانی: ایران، البرز، مشکین دشت، پژوهشگاه مواد و انرژی، پژوهشکده سرامیک، **تلفن:** ۰۲۶-۳۶۲۸۰۰۴۰، **دورنگار:** ۰۲۶-۳۶۲۰۱۸۸۸

پیام نگار: vahid_ostadshabany@yahoo.com

Please cite this article as: Hematzadeh Dastgerdi, H., Ostadshabani, M., Shajari, Y., Samiee, M., "The effect of cooling rate after full solution and aging time on microstructure and hardness of IN718 superalloy fabricated via SLM", ***Journal of Advanced Materials and Technologies (JAMT)***, Vol. 10, No. 2, (2021), 1-11. (https://doi.org/10.30501/jamt.2020.224723.1080).

2783-0829/© 2021 The Author(s). Published by MERC.

This is an open access article under the CC BY license (https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/).

Paper History:
Received: 2020-03-27
Revised in revised form: 2020-06-19
Accepted: 2021-07-16

Keywords:
IN718 Superalloy,
Selective Laser Melting,
Cooling Rate,
Aging,
Microstructure

Abstract IN718 alloy is a high strength Nickel base superalloy that mainly used in moderate temperatures and corrosive service conditions. In the present study, samples produced by selective laser melting (SLM) at 1040 °C for 120 minutes were prepared under solution treatment. After solution, the samples were cooled in three cooling media of water, air and extinguished furnace with open door. Finally, the samples were aged in three standard conditions for 48 and 72 hours. To investigate the effect of cooling rate after solution and aging time on precipitates characteristics and microstructure of samples, Field Emission Scanning Electron Microscope (FESEM), X-ray diffraction (XRD) and hardness test were used. The results showed that increasing the aging time under constant solution conditions increases the volume fraction and the size of the secondary phases. Also, reducing the cooling rate in the solution step leads to increasing the hardness of the samples in the aging stage. Finally, with increasing aging time, the maximum hardness of the sample was 794 H. V.

https://doi.org/10.30501/jamt.2020.224723.1080 URL: https://www.jamt.ir/article_126425.html

۱- مقدمه

بخش عمده‌ای از قطعات توربین‌های گازی، از جنس سوپرآلیاژهای پایه نیکل است و IN718، یکی از سوپرآلیاژهای محبوب و پُرکاربرد است. سوپرآلیاژ IN718، آلیاژ پایه نیکل است که به‌دلیل توانایی حفظ ریزساختار و پایداری مکانیکی در دماهای بالا تا ٦٥٠ سلسیوس، عمر خستگی خوب و مقاومت در برابر خوردگی، در صنایع هوافضا و نیروگاهی بسیار کاربردی و قابلِ استفاده است [۱].

ریزساختار سوپرآلیاژِ IN718، از فاز زمینه γ حاوی عناصر نیکل، کروم و آهن تشکیل شده است. استحکام‌دهی در سوپرآلیاژ IN718، با استفاده از عملیات حرارتی شامل عملیات حرارتی انحلال فازهای (Ni_3Nb) γ"، $(Ni_3(Al,Ti))$ γ' و کاربیدهای MC و پیرسازی برای تشکیل γ' و γ" انجام می‌شود. γ"، مهم‌ترین فاز در مرحله استحکام‌دهی است و رفتار رسوبات در مرحله استحکام‌دهی، به مقدارNb، دما و زمان عملیات حرارتی بستگی دارد. سایر فازهای رایج موجود در سوپرآلیاژ IN718، کاربیدهای MC غنی از TiN، فاز دلتا $(\delta\text{-}Ni_3Nb)$ و فازهای لاوه[1] $[(Ni, Cr, Fe)_2(Nb, Mo, Ti)]$ هستند [۱ و ۲]. خواص سوپرآلیاژ IN718، به ریزساختار، به‌خصوص به اندازه دانه، حساس است که با استفاده از فرایندهای ترمومکانیکی، قابلِ کنترل است و به‌دلیل خواص شکل‌پذیری مطلوبش، اهمیت ویژه‌ای دارد. شکل‌پذیری و جوش‌پذیر بودن سوپرآلیاژ IN718 سبب شده است روش‌های مختلف تولید افزایشی[2] (AM) برای تولید قطعات مختلف از این ماده به‌کار برده شوند. تولید قطعه به‌وسیله ذوب گزینشی، یکی از روش‌های AM است [۳ و ٤].

فناوری بستر پودر، یکی از روش‌های ذوب گزینشی است. عمدتاً دو نوع فناوری بسترِ پودر وجود دارد: ذوب گزینشی با لیزر[3] (SLM) و ذوب با باریکه الکترونی[4] (EBM). تفاوت عمده‌ای که بین این فناوری‌ها وجود دارد ناشی از منبع انرژی‌ای است که برای ذوب‌شدن پودر استفاده می‌شود [۳ و ٤]. SLM، نوعی فرایند تولید افزایشی است که طی دهه گذشته در حوزه پژوهشی و صنعتی، در حال رشد بوده است. SLM، از یک پرتو لیزر با قدرت بالا برای ذوب‌کردن لایه‌های پودر، به‌منظور تولید اجسام جامد سه‌بعدی، استفاده می‌کند. امکان تولید اَشکال پیچیده با دقت ابعادی و مصرفِ کم مواد، از جمله مزایای فناوری SLM است [٥ و ٦]. بااین‌حال، قطعات تولیدی SLM، به‌دلیل ذوب بسیار موضعی و سپس سرمایش سریع، معمولاً با تنش‌های باقیمانده و انواع متفاوت تخلخل روبه‌رو هستند. تخلخل در قطعات ساخته‌شده SLM ممکن است به‌دلیل وجود ذرات پودر دارای منافذ ذاتی حاصل از فرایند تولید پودر باشد یا به‌دلیل انقباض حین جامدشدن و ناهمجوشی در طی فرایند SLM رخ دهد. پارامترهای بسیاری از جمله پارامترهای پردازش[5]، مانند ضخامت لایه پودر، قدرت لیزر، سرعت روبش، فاصله روزنه و دمای بسترِ پودر وجود دارند که می‌توانند روند SLM را تعیین کنند. همه این پارامترهای فرایند، در روند شکل‌گیری مسیر در یک لایه و بیشتر در قسمت تولید نهایی، تأثیر دارند. طبق مطالعات پیشین، پارامترهای مهم شناسایی‌شده که ذوب کامل لایه پودری را تضمین می‌کنند، شامل قدرت لیزر، فاصله روزنه و سرعت روبش هستند. سرعت روبش، از دو پارامتر تشکیل شده است که شامل فاصله نقطه لیزر، تقسیم بر زمانِ قرارگرفتن در معرض لیزر است. فاصله نقطه را فاصله بین دو پالس لیزر و

[1] Laves
[2] Additive Manufacturing

[3] Selective Laser Melting
[4] Electron Beam Melting
[5] Processing

مدت زمان قرارگرفتن در معرض را مدت زمانی در نظر می‌گیرند که لیزر در یک نقطه ساطع می‌شود. سوپرآلیاژ IN718، به‌دلایل گوناگون، باید با تولید افزایشی از جمله فرایند SLM تولید شود [۷ و ۸].

ریزساختار SLM سوپرآلیاژ IN718 تولیدشده، از کاربیدهای MC با ساختار شاخه‌ای[1] بسیار ریز و فاز یوتکتیک لاوه/γ در مناطق بین شاخه‌ها تشکیل شده است. ناهمگنی ریزساختار در روش SLM، به کاهش خواص مکانیکی منجر می‌شود و ازاین‌رو، برای دستیابی به ریزساختارهای یک‌دست، باید عملیات حرارتیِ پس از تولید انجام شود. بررسی جنبه‌های مختلف سوپرآلیاژ IN718 پردازش‌شده با SLM و مطالعه در خصوص فرایندهای مناسبِ پس از تولید، با هدف بهبود ساختار و کاهش ناهمسانگردی ذاتی، هنوز در مرحله اولیه قرار دارد [۱]. مطالعات پیشین نشان می‌دهد عملیات حرارتی‌های مختلف، بسته به دما و زمان، می‌توانند جدایش در سوپرآلیاژ IN718 تولیدشده به روش SLM را تا حدی از بین ببرند. برای از بین‌بردن جدایش با هدف همگن‌سازی ریزساختار و استحکام مواد، عملیات حرارتیِ پس از تولید در سوپرآلیاژ IN718 انجام می‌شود. طراحی عملیات حرارتی‌ای که مبتنی بر ریزساختار ذاتی است، بخشی از فرایند تولید و ویژگی‌های موردِ نظر در کاربردهای خاص را تشکیل می‌دهد. ریزساختار سوپرآلیاژ IN718 کارشده، در مقایسه با ریزساختار آلیاژ ریخته‌گری‌شده، دانه‌های ریزتری دارد و اساساً یکدست‌تر است. سوپرآلیاژ IN718 کارشده، به‌منظور استحکام فاز رسوبی، معمولاً تحت عملیات حرارتی محلول‌سازی و سپس پیرسازی قرار می‌گیرد. چرخه عملیات حرارتی تنش‌زدایی برای سوپرآلیاژ IN718 تولیدشده به روش SLM، درحالی‌که هنوز قطعات به بستر ساخت متصل هستند، در قسمت‌های تولیدشده، آغاز می‌شود [۱۱-۹].

پوپویچ[2] و همکاران [۱۲]، ریزساختار و خواص مکانیکی IN718 تولیدشده به روش SLM و عملیات حرارتی پس از آن را بررسی کردند. نتایج پژوهش آن‌ها مشخص کرد که نمونه‌ها، پس از عملیات حرارتی، خواص مکانیکی مناسبی را در مقابل مواد نورد گرم‌شده نشان می‌دهند. در پژوهشی دیگر، فنگ[3] و همکاران [۱۳]، به بررسی ریزساختار IN718 تولیدشده به روش SLM پرداختند که نتایج این پژوهش نشان می‌دهد سختی نمونه‌های آنیل‌شده، به‌دلیل وجود دانه‌های ستونی، به میزان ٤٤ درصد افزایش یافته است. در این تحقیق، سعی شد تأثیر نرخ سرمایش در مرحله انحلال و تأثیر زمان پیرسازی بر مشخصه رسوبات و ریزساختار سوپرآلیاژ IN718 تولیدشده به روش SLM بررسی شود.

۲- روش تحقیق

در تحقیق حاضر، نمونه‌ها از جنس سوپرآلیاژ پایه نیکل IN718، به روش SLM تهیه شدند. ترکیب شیمیایی این آلیاژ، به روش طیف‌سنجی نشر اتمی بر حسب درصد وزنی تعیین شد که نتایج آن در جدول ۱ نشان داده شده است.

به این منظور، نمونه‌های مکعب مربعی در ابعاد ۵ میلی‌متر آماده شدند. نمونه‌های تهیه‌شده درون کوره‌ای تیوبی تحت اتمسفر محافظ گاز آرگون با خلوص ۹۹/۹۹ درصد، در دمای ۱۰٤۰ سلسیوس و زمان ۱۲۰ دقیقه، تحت عملیات محلول‌سازی قرار گرفتند. پس از انحلال، نمونه‌ها در سه محیط آب، هوا و کوره خاموش‌شده با درِ باز، سردایش[4] شدند. در انتها، نمونه‌ها در سه دمای ٦۲۰ سلسیوس به مدت ۸ ساعت، ٦۲۰ سلسیوس به مدت ٤۸ ساعت و ٦۲۰ سلسیوس به مدت ۷۲ ساعت، پیرسازی شدند. در جدول ۲، نام‌گذاری نمونه‌ها براساس شرایط مختلف نمونه‌ها و متغیرهای عملیات حرارتی، ارائه شده است.

پس از هر مرحله، نمونه‌ها با سنباده SiC از شماره ۱۰۰ تا ۲۵۰۰، سنباده‌زنی شدند. پس از آن، به‌وسیله نمد ٦ µm و محلول نانو آلومینای ۷ درصد، پولیش‌کاری شدند. برای بررسی‌های متالوگرافی، نمونه‌ها در محلول 20 ml HCl + 20 ml C_2H_5OH + 2 gr $CuCl_2$ به مدت ۱۵ دقیقه به روش غوطه‌وری، اچ شدند.

[1] Dendritic
[2] Popovich
[3] Feng
[4] Quench

جدول ۱. ترکیب شیمیایی سوپرآلیاژ مصرفی برای تحقیق بر حسب درصد وزنی

عنصر	Ni	Si	Mn	Cr	Mo	Cu	Fe	Co	Ti	Al	Nb	C	P	S	B
درصد وزنی	پایه	۰/۱۳	۰/۰۵	۱۹/۱	۲/۹۵	۰/۱۰	۱۸/۵	۰/۱	۱۸/۵	۰/۰۷	۰/۹۱	۰/٤۵	۵/۰٤	۰/۰۳۵	۰/۰۰۵

جدول ۲. نام‌گذاری و شرایط انحلال و پیرسازی نمونه‌ها

کد نمونه	محلول‌سازی			شرایط پیرسازی
	دما (°C)	زمان (h)	محیط سردشدن	
SL0	---	---	---	---
SL1	۱۰٤۰	۱	آب	استاندارد
SL2	۱۰٤۰	۱	آب	ادامه گام دوم استاندارد تا ٤۸ ساعت
SL3	۱۰٤۰	۱	آب	ادامه گام دوم استاندارد تا ۷۲ ساعت
SL4	۱۰٤۰	۱	هوا	استاندارد
SL5	۱۰٤۰	۱	هوا	ادامه گام دوم استاندارد تا ٤۸ ساعت
SL6	۱۰٤۰	۱	هوا	ادامه گام دوم استاندارد تا ۷۲ ساعت
SL7	۱۰٤۰	۱	کوره	استاندارد
SL8	۱۰٤۰	۱	کوره	ادامه گام دوم استاندارد تا ٤۸ ساعت
SL9	۱۰٤۰	۱	کوره	ادامه گام دوم استاندارد تا ۷۲ ساعت
* پیرسازی استاندارد: ۸ ساعت در دمای ۷۲۰ سلسیوس ، ۲ ساعت تا رسیدن به دمای ٦۲۰ سلسیوس و ۸ ساعت در دمای ٦۲۰ سلسیوس				

بررسی‌های ریزساختاری به‌وسیله میکروسکوپ نوری[1] (OM) و میکروسکوپ الکترونی روبشی نشر میدانی[2] (FESEM) مدلِ VEGA/TESCAN ساخت کشور جمهوری چک و مجهز به آنالیز نقطه‌ای عنصری EDS، انجام شد. بررسی‌های فازی به‌وسیله آزمون پراش پرتو ایکس (XRD)، دستگاه ساخت شرکت Philips مدل PW1730 و نرم‌افزار اکسپرت[3] انجام شد. نمونه‌ها قبل و بعد از محلول‌سازی توسط آزمون سختی‌سنجی در مقیاس میکرو تحت بار ۱۰۰ گرم و زمان نگهداری ۱۰ ثانیه آزموده شدند (ASTM E92-16) [۱٤]. اندازه دانه‌ها با استفاده از نرم‌افزار Image J به دست آمد.

۳- نتایج و بحث

در شکل ۱، تصویر OM و FESEM نمونه SL0 تولیدشده به روش SLM نشان داده شده است. بررسی‌های انجام‌شده روی نمونه SL0 نشان می‌دهند که فازهای استحکام‌بخش در ساختار، رسوبات γ'' هستند. همچنین، میزان فازهای استحکام‌بخش γ' و γ'' تولیدشده در زمینه، به‌علت گرادیان دمایی بالا و سرعت انجماد سریع، بسیار ناچیز است. اما در عوض ممکن است مقدار زیادی کاربید و فاز لاوه بسیار ریز یافت شود. طبق پژوهش‌های پیشین، نقاط پراکندگی ذرات γ''، در جهت <100> و عمود بر محور اصلی رسوبات هستند. فقط فوق‌شبکه γ''، در جهات <100> و <½10> و <1½0> ظاهر شده است. توده‌های γ''، به‌موازات جهتِ ساخت، رسوب داده شده‌اند. رسوبات γ'' با صفحات (100)، هم‌سیما هستند، درحالی‌که در بعضی مواقع با صفحات (010)، مطابق می‌شوند. تجمع متراکم و اغلب نامنظم و با هندسه‌های مختلف و اندازه‌های بسیار کوچکِ (معمولی) رسوبات γ'' نیز در سراسر زمینه γ NiCr (fcc) رخ می‌دهد [۱۵ و ۱٦].

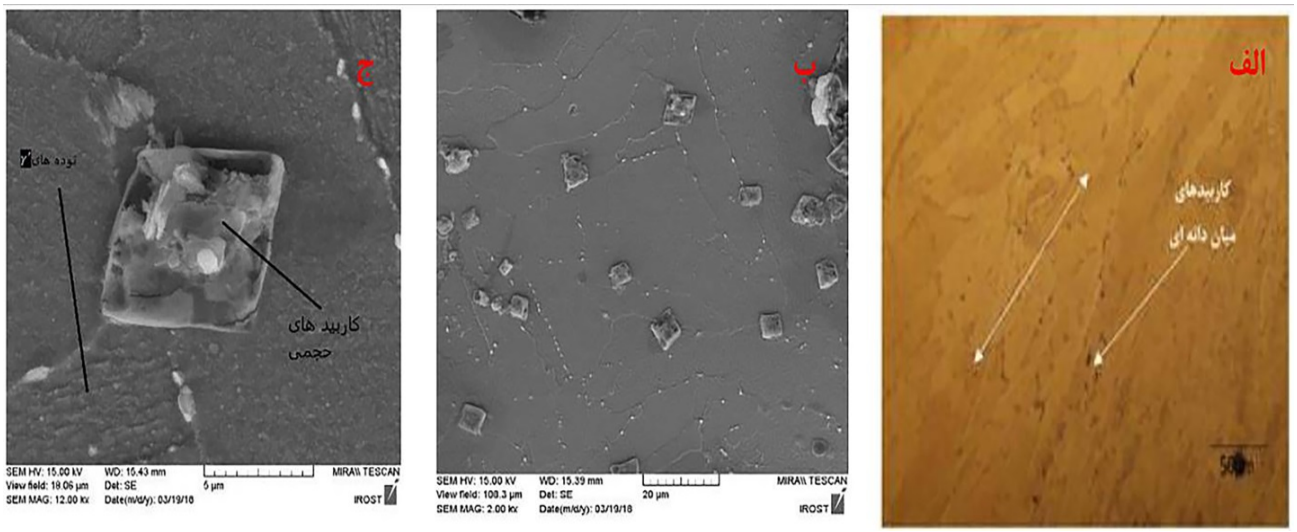
در شکل ۲، تصاویر OM نمونه‌های محلول‌سازی‌شده و خنک‌شده SL1، SL4 و SL7 نشان داده شده است. در این تصاویر، ریزساختاری جهت‌دار مشاهده می‌شود که دانه‌ها در جهت ساخت نمونه SLM رشد کرده‌اند. سازوکار

[1] Optical Microscope
[2] Field Emission Scanning Electron Microscope
[3] XPert

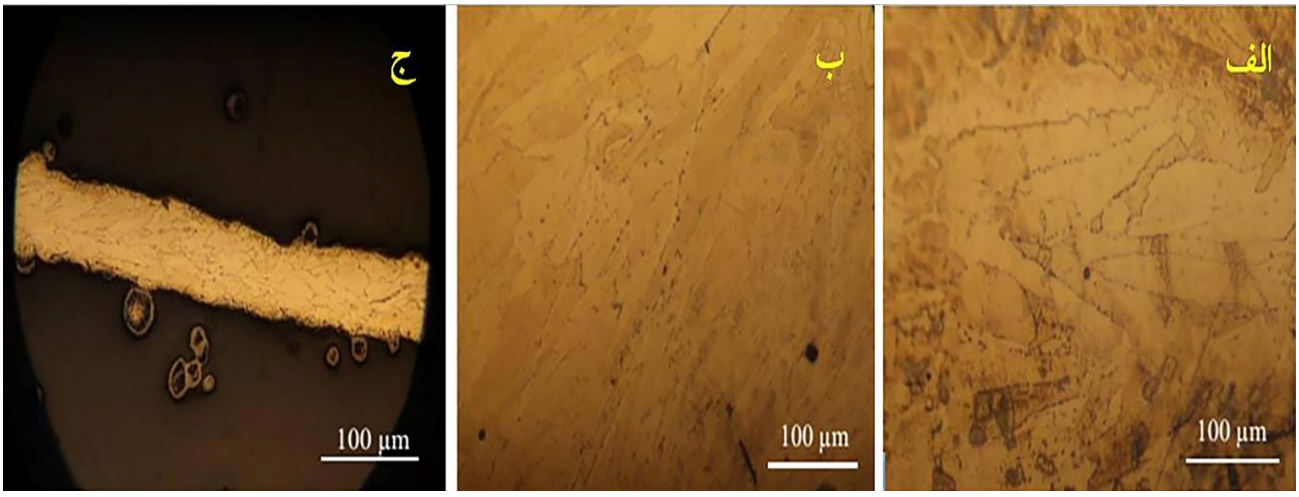
استحکام‌دهی در نمونه‌های SLM، نابجایی‌ها و تنش باقی‌مانده است [۱۲ و ۱۵ و ۱٦].

این‌که انتظار داشته باشیم سرعت سردشدن تأثیر چشمگیری در اندازه دانه‌ها داشته باشد، انتظاری بیهوده است. اما در انحلال به‌خودی‌خود، به‌دلیل دمای بالا و سازوکارهای مبتنی بر نفوذ که بر دمای بالا (دماهای بالاتر از تبلور مجدد) استوارند، مرزدانه‌ها درهم کشیده و اندازه دانه‌ها دستخوش تغییر می‌شوند و افزایش می‌یابند. سازوکار دیگری که برای این افزایش اندازه دانه‌ها می‌توان در نظر گرفت حرکت مرزهای دانه در جهت انحلال فازهای تیغه‌ای و موانع کاربیدی حول مرزدانه در طول محلول‌سازی است. در شکل ۳، نمودار این تغییرات نشان داده شده است. همان‌طور که از شکل ۳ پیداست، سرعت سردکردن، تأثیر مشهودی بر اندازه نمونه‌ها نمی‌گذارد و تقریباً نمونه‌های سردشده در آب و هوا، اندازه دانه‌ای در حد نمونه مرجع دارند. اما نمونه سردشده در کوره، به‌دلیل این‌که مدتی طولانی در معرض حرارت بوده، تغییرات اندازه دانه محسوسی را نشان می‌دهد.

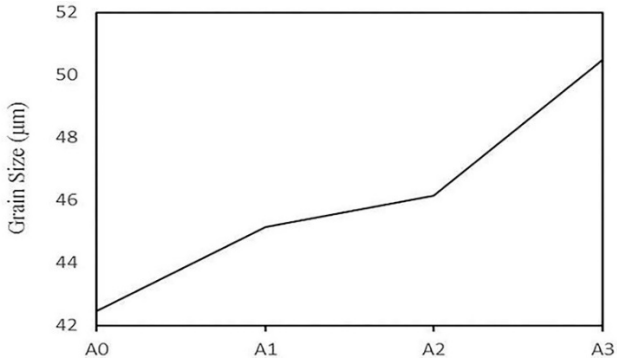
در شکل ٤، تصاویر FESEM نمونه‌های SLM محلول‌سازی‌شده و سردشده در محیط‌های مختلف نشان داده شده است. در شکل ۵ نیز، طیف آزمون EDS نقطه مشخص‌شده با فلش زرد در شکل ٤ (ب) ارائه شده است [۱۵ و ۱٦].



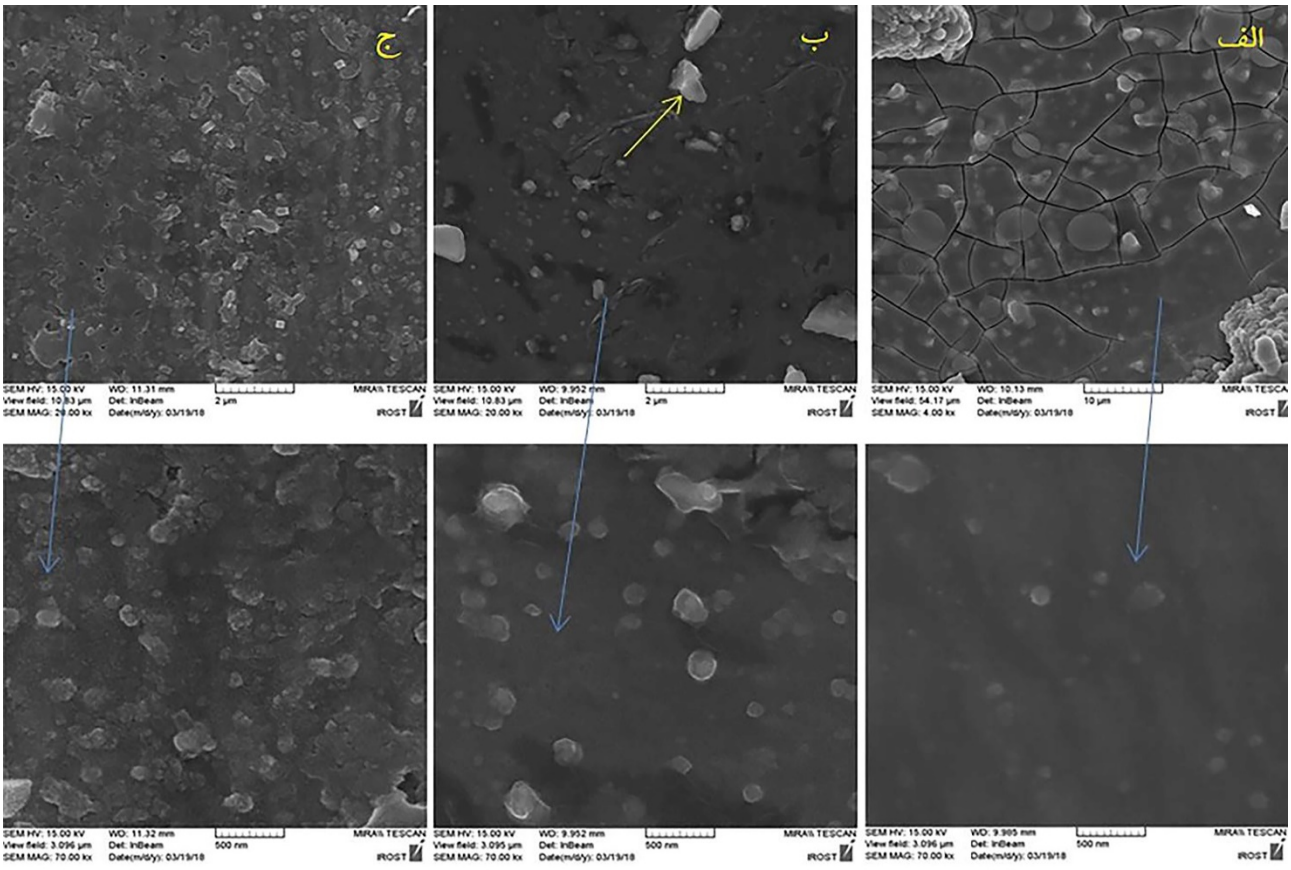
شکل ۱. (الف) تصویر OM نمونه (SLM)، (فلش دوطرفه جهت کشیدگی دانه‌ها را نشان می‌دهد)، (ب) تصویر FESEM نمونه مرجع SLM در بردارنده کاربیدهای اولیه MC و جهت‌گیری دانه‌ها و (ج) کاربیدهای اولیه MC و توده‌های رسوبات



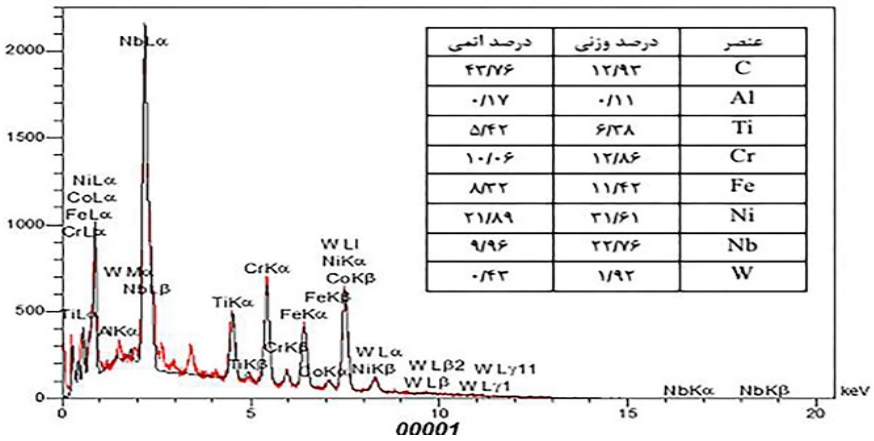
شکل ۲. تصویر نمونه‌های SLM پس از انحلال (الف) سردشده در آب، (ب) سردشده در هوا و (ج) سردشده در کوره



شکل ۳. تغییرات اندازه دانه نمونه‌های SLM بر اثر سرعت سردشدن



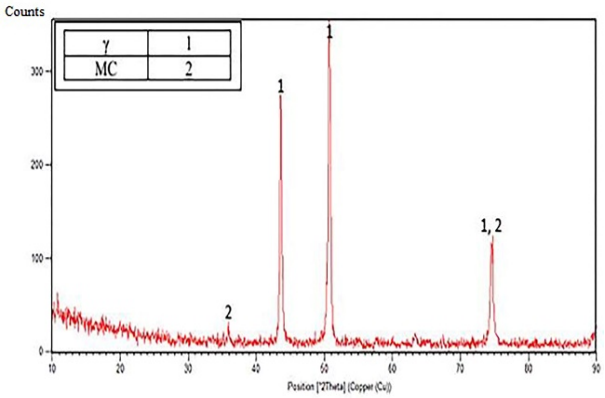
شکل ٤. تصویر FESEM نمونه‌های SLM پس از انحلال در بزرگنمایی‌های متفاوت، الف) سردشده در آب، ب) سردشده در هوا و ج) سردشده در کوره



عنصر	درصد وزنی	درصد اتمی
C	۱۲/۹۳	۴۳/۷۶
Al	۰/۱۱	۰/۱۷
Ti	۶/۳۸	۵/۴۲
Cr	۱۲/۸۶	۱۰/۰۶
Fe	۱۱/۴۲	۸/۳۲
Ni	۳۱/۶۱	۲۱/۸۹
Nb	۲۲/۷۶	۹/۹۶
W	۱/۹۲	۰/۴۳

شکل ۵. طیف آزمون EDS نقطه مشخص‌شده در شکل ٤ (ب)

همان‌طور که از مقادیر ارائه‌شده در جدول مندرج در شکل ۵ برمی‌آید، نقطه مشخص‌شده، کاربید MC و حاوی مقدار زیادی Nb است. مقادیر Ni، Fe و Cr در نتایج آزمون، به‌دلیل شناسایی از نقاط مجاور توسط آشکارساز EDS است. همان‌طورکه در شکل ۵ مشهود است، کسر حجمی رسوبات پس از انحلال، کاهش یافته است تاجایی‌که در بسیاری از نقاط نمونه سردشده در آب، اثری از رسوبات کروی γ'، شبه‌کروی و بیضی γ'' و کشیده δ مشاهده نشده و این تصاویر پس از جست‌وجوهای بسیار از نمونه موردِ نظر تهیه شده است. پس از سردایش در هوا و مخصوصاً کوره، رسوبات نانومتری تعادلی و سرمایشی فرصت تشکیل و رشد می‌یابند که این موضوع به‌خوبی در شکل ٤ (ب) و (ج) نشان داده شده است. در شکل ٦، تصویر الگوی XRD نمونه SLM سردشده در آب پس از انحلال نشان داده شده است که شماره کارت‌های آن ۰۰-۰۰۶-۰۶۷۵ و ۰۰-۰۴۴-۰۹۶۲ است. این الگو به‌خوبی انحلال کامل انجام‌شده را تأیید می‌کند. رسوبات نمایان‌شده تعادلی در شکل ٤ (الف)، کسر حجمی بسیار کمی داشتند، لذا پیک‌های مربوط به این رسوبات ثانویه، شناسایی نشده است. دمای بالا در عملیات حرارتیِ محلول‌سازی، موجب درصد حجمی کمتر و اندازه کوچک‌تر رسوبات پس از محلول‌سازی می‌شود و تعداد رسوبات نانومتری سرمایشی را افزایش می‌دهد و رسوبات ثانویه بیشتری را پس از پیرسازی تولید می‌کند [۱۵و ۱۶].



شکل ٦. الگوی XRD نمونه SLM سردشده در آب

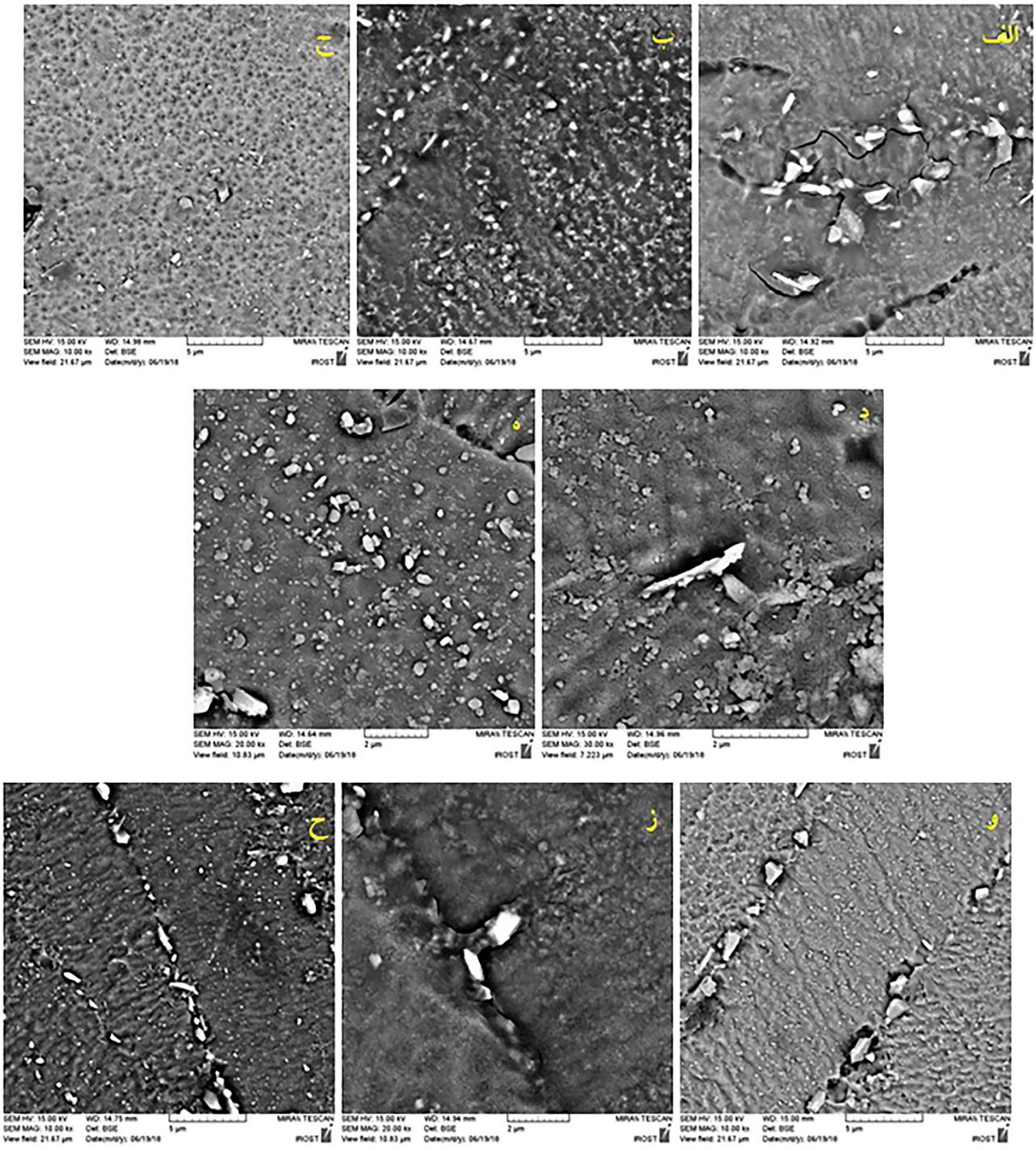
در شکل ۷ تصاویر FESEM ریزساختار نمونه‌های SLM محلول‌سازی‌شده و سردشده در محیط‌های مختلف پس از پیرسازی نشان داده شده است.

همان‌طور که مشخص است، با افزایش زمان پیرسازی در شرایط ثابت محلول‌سازی، کسر حجمی و اندازه فازهای ثانویه افزایش می‌یابد. با افزایش زمان پیرسازی، رسوبات ریز به یکدیگر یا به رسوبات بزرگ‌تر پیوسته و رسوباتی در اندازه‌های بزرگ را پدید می‌آورند. با انجام پیرسازی، کاربیدهای MC به کاربیدهای $M_{23}C_6$ تبدیل می‌شوند. با افزایش زمان پیرسازی، این کاربیدهای ثانویه، پیوسته شده و مرزهای پیوسته‌ای را پدید می‌آورند. همچنین، در دمای ثابت با افزایش زمان پیرسازی نهایی، مقدار رسوبات γ' کاهش می‌یابد و اندازه رسوبات درشت‌تر می‌شود. کاهش مقدار رسوبات γ' و درشت‌شدن اندازه آن‌ها، در زمان ثابت، با افزایش دمای پیرسازی نیز مشاهده شد که نتیجه حاصل با رابطه‌ی گیبس ـ تامسون توجیه‌پذیر است [۱۷ و ۱۸]:

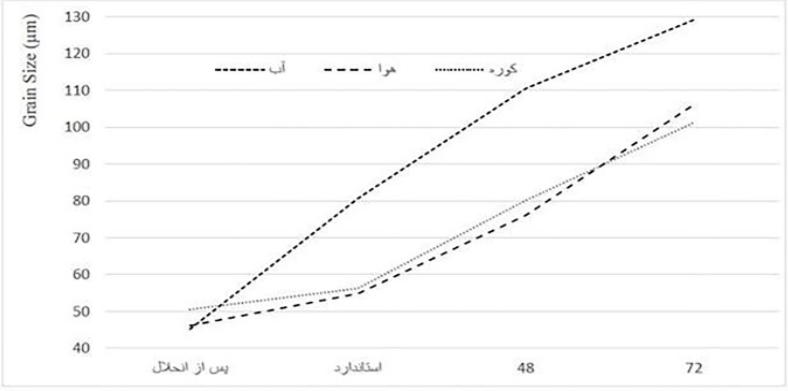
$$C_r = C_e \cdot \exp\left(\frac{2\,\gamma\,\Omega}{R_B T}\cdot\frac{1}{R}\right) \approx C_e\left(1+\frac{2\,\gamma\,\Omega}{R_B T}.\frac{1}{R}\right)$$

در این معادله، C_r، انحلال‌پذیری در سطح ذرات کروی با شعاع R، C_e، غلظت فاز دوم در فصل مشترک هموار در زمینه در تعادل با ذرات با شعاع کم، R_B، ثابت جهانی گازها، γ'، انرژی فصل مشترک بین ذره و زمینه، Ω، حجم اتمی یا مولی ذرات و T، دمای مطلق است. تفاوت بین C_r و C_e باعث پدیدآمدن فلاکس اتمی از ذرات کوچک‌تر به‌سمت ذرات بزرگ‌تر می‌شود.

مطابق نظریه گیبس ـ تامسون، در فصل مشترک، غلظت عناصر آلیاژی در تعادل با ذرات بزرگ‌تر، کمتر از غلظت عناصر آلیاژی در تعادل با ذرات کوچک‌تر است. بنابراین، اتم‌های حل‌شونده، به‌دلیل گرادیان غلظتی موجود، از سطح ذراتِ کوچک‌تر به‌سمت زمینه و از زمینه به‌سمت ذرات بزرگ‌تر جریان می‌یابند. طی این فرایند، شعاع میانگین ذرات، افزایش می‌یابد، درحالی‌که از تعداد آن‌ها کاسته می‌شود و به این ترتیب، آنتالپی آزاد سطحی سیستم، کاهش می‌یابد [۱۷ و ۱۸]. در شکل ۸، تغییرات اندازه دانه بر حسب زمان پیرسازی نشان داده شده است.

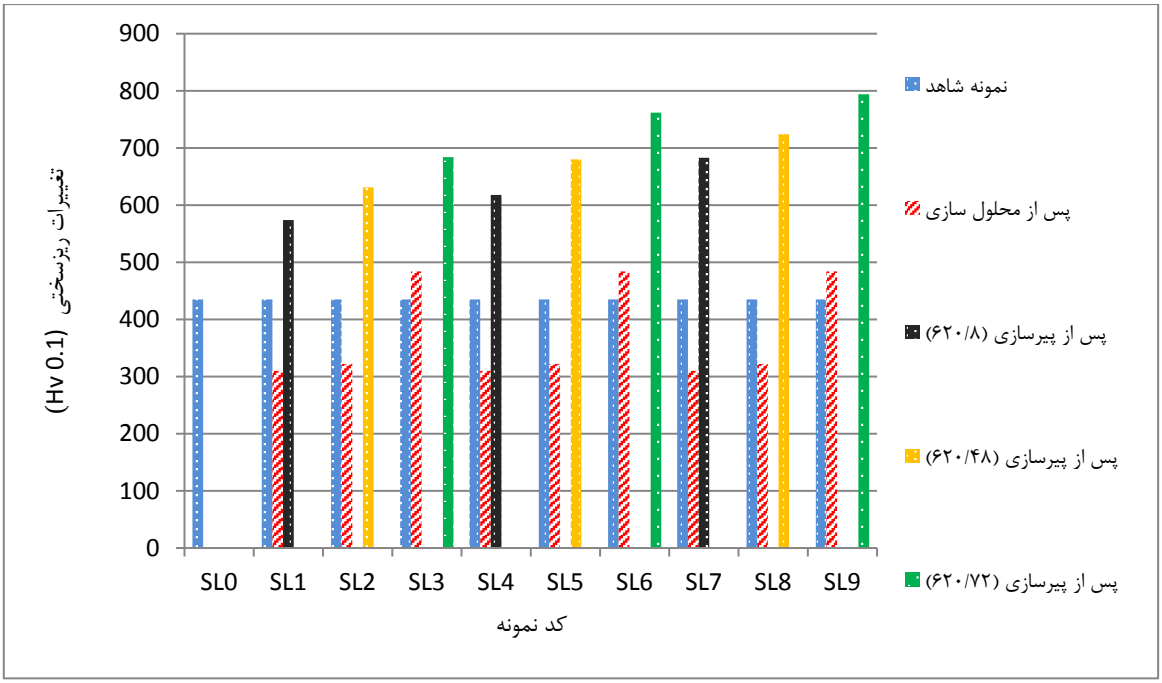


شکل ۷. تصویر FESEM نمونه‌های پیرسازی‌شده، (الف) SL1؛ (ب) SL2؛ (ج) SL3؛ (د) SL5؛ (ه) SL6؛ (و) SL7؛ (ز) SL8 و (ح) SL9



شکل۸. تغییرات اندازه دانه نمونه‌های SLM در اثر پیرسازی

برای این منظور، قطر بزرگ دانه‌ها در جهت کشیده‌شدن در راستای اِعمال فرایند، اندازه‌گیری و گزارش شد. بیشترین تغییرات اندازه دانه، مربوط به نمونه‌های سردشده در آب است. با توجه به کوتاهی بازه سردکردن و زمان فرایند، کسر حجمی و اندازه کاربیدهای MC و رسوبات استحکام‌بخش، در کمترین میزان ممکن است. بخشی از همین رسوبات، در اثر عملیات حرارتی انحلالی، از بین می‌روند یا اندازه‌شان کاهش می‌یابد. از بین‌رفتن رسوبات و تشکیل‌نشدن آن‌ها به‌صورت تعادلی و سرمایشی در اثر سردایش در آب، به بیشترین تغییرات در اندازه دانه‌ها می‌انجامد؛ چراکه در مسیر حرکت مرزهای دانه، مانعی مشاهده نمی‌شود. با توجه به آن‌که دمای پیرسازی معمولاً در حدود دمای تبلور مجدد سوپرآلیاژهای پایه نیکل یا کمی بالاتر از آن است، پدیده رشد دانه‌ها در پیرسازی یا حرارت‌دهی بلندمدت اتفاق می‌افتد. از بین‌رفتن رسوبات و کاربیدها در مرحله محلول‌سازی، به تأمین میزان انرژی لازم برای تشکیل دانه‌های جدید در محل تلاقی مرزهای دانه یا رسوبات باقیمانده منجر می‌شود [۱۸]. دانه‌های کوچک که جدید تشکیل‌شده‌اند، به‌سبب پایین‌بودن میزان انرژی، تحمل دمای بالا را ندارند و توسط دانه‌های بزرگ درهم کشیده می‌شوند و دانه‌های بزرگ را تشکیل می‌دهند. با افزایش زمان پیرسازی، نرخ رشد دانه‌ها کندتر می‌شود؛ چراکه رسوبات و کاربیدها، حول مرزدانه، جوانه زده یا رشد می‌کنند و در اثر سازوکار قفل‌کنندگی، مانع از حرکت مرزدانه‌ها می‌شوند [۱۵ و ۱۹-۲۳]. در شکل ۹، تغییرات ریزسختی پس از محلول‌سازی و پیرسازی نشان داده شده است.



شکل ۹. مقایسه ریزسختی نمونه‌ها قبل و پس از پیرسازی

با توجه به شکل، می‌توان نتیجه گرفت که افزایش سرعت سرد¬کردن در مرحله محلول‌سازی، به‌دلیل کاهش تحرک[1] اتم‌ها، جوانه‌زنی فاز γ' را از فاز زمینه به تعویق می‌اندازد و در پی آن، نرخ جوانه‌زنی فاز γ' افزایش می‌یابد، درحالی‌که رشد محدود می‌شود و درنهایت، به افزایش مواضع ترجیحی برای جوانه‌زنی فاز γ'' و افزایش استحکام تسلیم می‌انجامد [۱۵ و ۲۴-۲۷]. همان‌طور که در تصاویر میکروسکوپ الکترونی و نتایج ریزسختی‌سنجی دیده می‌شود، با افزایش سرعت سردکردن در مرحله محلول‌سازی، به‌دلیل انحلال فازهای γ' و γ'' و باقیماندن مقادیر ناچیز کاربیدهای اولیه و فاز لاوه، ریزساختار همگنی از نظر ترکیب شیمیایی و وجود فازهای متفاوت حاصل می‌شود. با کاهش سرعت سرد کردن در مرحله محلول‌سازی به دلیل انرژی بالاتر سختی بالاتری نسبت به نمونه مرجع حاصل شده است.

[1] Mobility

پس از پیرسازی، مقدار بسیار ناچیزی فاز δ در ساختار میکروسکوپی مشاهده می‌شود که ممکن است به‌دلیل دمای بالای محلول‌سازی (۱۰٤۰ سلسیوس) باشد. در این دما، به‌دلیل انحلال کامل و حتی حل‌شدن فاز δ و نیز سرعت بالای سردشدن در مرحله محلول‌سازی، رسوبات γ′ ریزتر و گسترده‌تری حاصل می‌شود که باعث افزایش مناطق ترجیحی جوانه‌زنی فازهای γ′ و δ می‌شود. بنابراین، انتظار می‌رود در مرحله پیرسازی که مستلزم دما و زمان بالاتری جهت رشد فاز δ است، رشد γ″، محدودتر و پراکنده‌تر شود؛ همان‌طور که در مدت زمان‌های طولانی‌ترِ پیرسازی مشاهده می‌شود، با افزایش زمان نگهداری نمونه‌ها، اندازه ذرات فاز δ و توده‌های γ′ و γ″، بیشتر می‌شود و سختی نیز افزایش می‌یابد.

با کاهش سرعت سردکردن، اندازه رسوبات γ′ در مرحله محلول‌سازی افزایش می‌یابد. این مسئله باعث کاهش پراکندگی ذرات و رشد بیشتر رسوبات γ′ می‌شود و مواضع جوانه‌زنی فازهای γ″ و δ را کاهش می‌دهد. درنتیجه، رشد بیشتر رسوبات با کاهش سرعت سردکردن، افزایش سختی را در پی خواهد داشت.

٤- نتیجه‌گیری

با توجه به بررسی‌های به عمل‌آمده از تحقیق حاضر، نتایج زیر ارائه می‌شود:

الف) نمونه تولیدشده به روش SLM به‌دلیل انجماد سریع، دارای ساختار شاخه‌ای ظریف با زمینه آستنیتی است که فقط کاربیدهای اولیه MC و فاز لاوه در آن وجود دارد و اثری از رسوبات ثانویه استحکام‌بخش قبل از عملیات حرارتی مشاهده نمی‌شود.

ب) با کاهش سرعت سردکردن در مرحله محلول‌سازی، کسر حجمی و اندازه رسوبات ثانویه، به‌دلیل زمان کافی برای پیدایش و رشد رسوبات سرمایشی، افزایش می‌یابند. همچنین، با درهم کشیده‌شدن دانه‌ها و حذف دانه‌های کوچک در جهت عمود بر کشیدگی، دانه‌ها بزرگ‌تر می‌شوند.

ج) با افزایش سرعت سردکردن، سختی نمونه‌ها پس از انحلال، کاهش می‌یابد. البته، به‌دلیل تشکیل رسوبات سرمایشی، سختی در مقایسه با نمونه مرجع، افزایش یافته است.

د) کاهش سرعت سرمایش در انحلال سبب شده است که سختی، پس از پیرسازی، با افزایش زمان نیز افزایش یابد و فاز دلتا رشد بیشتری داشته باشد.

٥- سپاسگزاری

نگارندگان بر خود لازم می‌دانند از حمایت‌های انستیتو توربین گاز که در اجرای این پژوهش ما را یاری رسان بودند، قدردانی نمایند.

مراجع

1. Sims, C. T., Stoloff, N. S., Hagel, W. C., ***Superalloys II***, Wiley, New York, (1987). https://doi.org/10.1080/10426919208947432
2. Radavich, J. F., "The physical metallurgy of cast and wrought Alloy 718", ***Superalloy***, Vol. 718, No. 33, (1989), 229-240. https://doi.org/10.7449/1989/SUPERALLOYS_1989_229_240
3. Tilmanm, W., Schaak, C., Nellesen, J., Schaper, M., Aydinöz, M. E., Hoyer, K. P., "Hot isostatic pressing of IN718 components manufactured by selective laser melting", ***Additive Manufacturing***, Vol. 4, (2017), 93-102. https://doi.org/10.1016/j.addma.2016.11.006
4. Hao, L., Dadbakhsh, S., Seaman, O., Felstead, M., "Selective laser melting of a stainless steel and hydroxyapatite composite for load-bearing implant development", ***Journal of Materials Processing Technology***, Vol. 209, (2009), 5793-5801. https://doi.org/10.1016/j.jmatprotec.2009.06.012
5. Yadroitsev, I., Gusarov, A., Yadroitsava, I., Smurov, I., "Single track formation in selective laser melting of metal powders", ***Journal of Materials Processing Technology***, Vol. 210, No. 12, (2010), 1624-1631. https://doi.org/10.1016/j.jmatprotec.2010.05.010
6. Karimi, P., Raza, T., Andersson, J., Svensson, L. E., "Influence of laser exposure time and point distance on 75 µm thick layer of selective laser melted Alloy 718", ***The International Journal of Advanced Manufacturing Technology***, Vol. 94, No. 5, (2018), 2199-2207. https://doi.org/10.1007/s00170-017-1019-1
7. Chlebus, E., Gruber, K., Kuźnicka, B., Kurzac, J., Kurzynowski, T., "Effect of heat treatment on the microstructure and mechanical properties of Inconel 718 processed by selective laser melting", ***Materials Science and Engineering:*** A, Vol. 639, (2015), 647-655. https://doi.org/10.1016/j.msea.2015.05.035
8. Wakshum, M. T., Priscille, C., Atle, S., Vidar, H., "Microstructure and hardness studies of Inconel 718 manufactured by selective laser melting before and after solution heat treatment", ***Materials Science and Engineering:*** A, Vol. 689, (2017), 220-232. https://doi.org/10.1016/j.msea.2017.02.062
9. DebRoy, H. L., Wei, J. S., Zuback, T., Mukherjee, A. M., Beese, A., Wilson-Heid, J. W., Elmer, J. O., Milewski, A. D., Zhang, W., "Additive manufacturing of metallic components–Process, structure and properties", ***Progress in Materials Science***, Vol. 92, (2018), 112-224. https://doi.org/10.1016/j.pmatsci.2017.10.001
10. ASTM F3056, "Standard specification for additive manufacturing nickel alloy (UNS No7718) with powder bed fusion", ASTM International, West Conshohocken, (2014). https://standards.globalspec.com/std/9881652/F3056
11. Dossett, J. L., Totten, G. E., ***ASM Handbook, Heat treating of irons and steels***, Vol. 4D, ASM International, Materials Park, Ohio 860, (2016). https://doi.org/10.31399/asm.hb.v04d.9781627081689
12. Popovich, A. A., Sufiiarov, V. S. H., Polozov, I. A., Borisov, E. V., "Microstructure and mechanical properties of Inconel 718 produced by SLM and subsequent heat treatment", ***Key Engineering Materials***, Vol. 651, (2015), 665-670. https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/KEM.651-653.665

13. Feng, F., Gong, J. H., Huixiang, L., Haoran, W., "Microstructural investigation of Inconel 718 manufactured by SLM", ***Materials Science and Engineering***, Vol. 452, No. 2, (2018), 022088. https://doi.org/10.1088/1757-899X/452/2/022088
14. ASTM E92-82(2003)e2, "Standard test method for Vickers hardness of metallic materials (Withdrawn 2010)", ASTM International, West Conshohocken, PA, (2003). https://doi.org/10.1520/E0092-82R03E02
15. Hematzadeh Dastgerdi, H., Ostad Shabani, M., Shajari, Y., Mirbagheri, S. M. H., "Investigation of the effect of cooling rate on dissolution of IN718 super alloy produced by selective SLM laser melting method", ***Proceedings of 7th International Conference on Materials and Metallurgical Engineering***, Tehran, (2018). (In Farsi). https://civilica.com/doc/841800
16. Hematzadeh Dastgerdi, H., Ostad Shabani Shabani, M., Shajari, Y., "The effect of cooling rate on the solutionizing of IN718 superalloy produced via selective laser melting (SLM) method", ***Journal of Environmental Friendly Materials***, Vol. 3, (2019), 17-22. http://jefm.kiau.ac.ir/article_663918.html
17. Amato, K. N., Gaytan, S. M., Murr, L. E., Martinez, E., Shindo, P. W., Hernandez, J., Collins, S., Medina, F., "Microstructures and mechanical behavior of Inconel 718 fabricated by selective laser melting", ***Acta Materialia***, Vol. 60, (2012), 2229-2239. https://doi.org/10.1088/1757-899X/452/2/022088
18. Baldan, A., "Review progress in Ostwald ripening theories and their applications to nickel-base superalloys, Part I: Ostwald ripening theories", ***Journal of Materials Science***, Vol. 37, (2002), 2171-2202. https://doi.org/10.1023/A:1015388912729
19. Yang, J., Zheng, Q., Zhang, H., Sun, X., Guan, H. and Hu, Z.,"Effects of heat treatments on the microstructure of IN792 alloy", ***Materials Science and Engineering: A***, Vol. 527, 1016-1021. https://doi.org/10.1016/j.msea.2009.10.026
20. Choi, J. P., Shin, G. H., Yang, S., Yang, D. Y., Lee, J. S., Brochu, M., Yu, J. H., "Densification and microstructural investigation of Inconel 718 parts fabricated by selective laser melting", ***Powder Technology***, Vol. 310, (2017), 60-66. https://doi.org/10.1016/j.powtec.2017.01.030
21. Johannes, S., Terock, M., Uwe, G., "Mechanical and microstructural investigation of nickel-based superalloy IN718 manufactured by selective laser melting (SLM)", ***Advanced Engineering Materials***, Vol. 17, (2015), 1099-1105. https://doi.org/10.1002/adem.201500158
22. Qingbo, J., Dongdong, G., "Selective laser melting additive manufacturing of Inconel 718 superalloy parts: Densification, microstructure and properties", ***Journal of Alloys and Compounds***, Vol. 585, (2014), 713-721. https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2013.09.171
23. Dongyun, Z., Wen, N., Xuanyang, C., Zhen, L., "Effect of standard heat treatment on the microstructure and mechanical properties of selective laser 134 melting manufactured Inconel 718 superalloy", ***Materials Science and Engineering: A***, Vol. 644, (2015), 32-40. https://doi.org/10.1016/J.MSEA.2015.06.021
24. Jackson, M. P., Starink, M. J., Reed, R. C., "Determination of the precipitation kinetics of Ni_3Al in the Ni-Al system using differential scanning calorimetry", ***Materials Science and Engineering:*** **A**, Vol. 264, No. 1-2, (1999), 26-38. https://doi.org/10.1016/S0921-5093(98)01120-4
25. Van der Molen, E. H., Oblak, J. M., Kriege, O. H., "Control of γ′ particle size and volume fraction in the high temperature superalloy Udimet 700", ***Metallurgical Transactions***, Vol. 2, No. 6, (1971), 1627-1630. https://doi.org/10.1007/BF02913886
26. Holland, S., Wang, X., Chen, J., Cai, W., Yan, F., Li, L., "Multiscale characterization of microstructures and mechanical properties of Inconel 718 fabricated by selective laser melting", ***Journal of Alloys and Compounds***, Vol. 784, (2019), 182-194. https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2018.12.380
27. Periane, S., Duchosal, A., Vaudreuil, S., Chibane, H., Morandeau, A., Cormier, J., Leroy, R., "Machining influence on the fatigue resistance of Inconel 718 fabricated by selective laser melting (SLM)", ***Procedia Structural Integrity***, Vol. 19, (2019), 415-422. https://doi.org/10.1016/j.prostr.2019.12.045

فصلنامه مواد و فناوری‌های پیشرفته

Journal Homepage: www.jamt.ir

مقاله کامل پژوهشی

سنتز الکتروشیمیایی نانوساختارهای گارنت ایتریوم آلومینیوم در حضور سورفکتانت کاتیونی: CTAB

مجتبی حسینی‌فرد [۱*]، حسن گلدوز [۲]، علیرضا بدیعی [۲]، اصغر کاظم‌زاده [۳]، کامران احمدی [۳]

[۱] استادیار، پژوهشکده انرژی، پژوهشگاه مواد و انرژی، مشکین دشت، البرز، ایران

[۲] استاد، دانشکده شیمی، پردیس علوم، دانشگاه تهران، تهران، تهران، ایران

[۳] استاد، پژوهشکده نیمه هادی‌ها، پژوهشگاه مواد و انرژی، مشکین دشت، البرز، ایران

تاریخچه مقاله:

ثبت اولیه: ۱۳۹۹/۰۴/۳۰

دریافت نسخهٔ اصلاح‌شده: ۱۳۹۹/۰۶/۲۴

پذیرش قطعی: ۱۴۰۰/۰۵/۰۵

کلیدواژه‌ها:

نانوساختار،

ترسیب الکتروشیمیایی کاتدی،

الکترولیت،

فیلم هیدروکسیدی

چکیده در این پژوهش، نانوساختارهای خالص گارنت ایتریوم آلومینیوم (YAG, $Y_3Al_5O_{12}$) طی فرایند دو مرحله‌ای و با استفاده از پیش‌ماده‌های کلریدی در محلول الکترولیت آب–اتانول با نسبت مشخص سنتز شدند و تأثیر سورفکتانت کاتیونی CTAB بر اندازه ذرات و ریخت‌شناسی نانوساختارهای تولید شده مورد بررسی قرار گرفت. برای سنتز YAG، لایه‌ای از فیلم هیدروکسید به روش ترسیب الکتروشیمیایی کاتدی در سطح کاتد نشانده شد و سپس طی عملیات حرارتی، به فرآورده اکسید نهایی تبدیل شد. از آنالیز پراش پرتو ایکس (XRD)، طیف‌سنجی تبدیل فوریه فروسرخ (FTIR)، گرماسنجی تفاضلی و وزن‌سنجی حرارتی (DTA-TGA) و میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM)، به‌ترتیب برای شناسایی فاز و ساختار بلوری ماده به‌دست‌آمده، شناسایی باندهای جذبی آن، بررسی رفتار حرارتی رسوب هیدروکسید در هنگام عملیات حرارتی و تعیین ریخت‌شناسی و اندازه ذرات پودر حاصل استفاده شد. نتایج مطالعات نشان داد که ترسیب الکتروشیمیایی کاتدی، روشی عملی و بسیار کارآمد برای تهیه نانوساختارهای YAG است و افزودن سورفکتانت کاتیونی CTAB به الکترولیت به هنگام ترسیب الکتروشیمیایی می‌تواند سبب تشکیل ذرات ریزتر شود و همچنین تأثیر چشمگیری در یکنواختی و توزیع باریک‌تر اندازه ذرات دارد.

https://doi.org/10.30501/jamt.2021.237871.1101 URL: https://www.jamt.ir/article_131755.html

Original Research Article

Journal of Advanced Materials and Technologies (JAMT): Vol. 10, No. 2, (Summer 2021), 13-19

Electrochemical Synthesis of Yttrium Aluminum Garnet Nanostructures in the Presence of Cationic Surfactant: CTAB

Mojtaba Hosseinifard [1*], Hassan Goldooz [2], Alireza Badiei [2], Asghar Kazemzadeh [3], Kamran Ahmadi [3]

[1] *Assistant Professor, Department of Energy, Materials and Energy Research Center (MERC), Meshkindasht, Alborz, Iran*

[2] *Professor, School of Chemistry, College of Science, University of Tehran, Tehran, Tehran, Iran*

[3] *Professor, Department of Semiconductors, Materials and Energy Research Center (MERC), Meshkindasht, Alborz, Iran*

***عهده دار مکاتبات**

نشانی: ایران، البرز، مشکین دشت، پژوهشگاه مواد و انرژی، پژوهشکده انرژی، **تلفن:** ۰۲۶-۳۶۲۸۰۰۴۰، **دورنگار:** ۰۲۶-۳۶۲۸۰۰۴۱

پیام نگار: m.hosseini@merc.ac.ir

Please cite this article as: Hosseinifard, M., Goldooz, H., Badiei, A. R., Kazemzadeh, A., Ahmadi, K., "Electrochemical synthesis of yttrium aluminum garnet nanostructures in the presence of cationic surfactant: CTAB", ***Journal of Advanced Materials and Technologies (JAMT)***, Vol. 10, No. 2, (2021), 13-19. (https://doi.org/10.30501/jamt.2021.237871.1101).

2783-0829/© 2021 The Author(s). Published by MERC.

This is an open access article under the CC BY license (https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/).

Paper History:
Received: 2020-07-20
Revised in revised form: 2020-09-14
Accepted: 2021-07-27

Keywords:
Nanostructures,
Cathodic Electrodeposition,
Electrolyte,
Hydroxide Film

Abstract In this research, pure Yttrium Aluminum Garnet (YAG, $Y_3Al_5O_{12}$) nanostructures were synthesized through a two-step process by using chloride precursors in a solution of water–ethanol electrolyte with specific ratio. Also, the effect of cationic surfactant CTAB, on the size and the morphology of the prepared nanostructures were investigated. For the synthesis of YAG, a layer of hydroxide film was deposited on the surface of cathode via cathodic electrodeposition method and then, it was transformed to the final oxide product in the course of a thermal operation. X-Ray Diffraction (XRD) analysis was used for characterization of phase and crystal structure of prepared materials and also Fourier Transform Infra-Red spectroscopy (FTIR) was used for characterization of absorption bonds. Thermal behavior of deposited hydroxide during the thermal operation was studied by Differential Thermal Analysis and Thermal Gravimetric Analysis (DTA-TGA) technique. The morphology and particle size of obtained powder was determined by Scanning Electron Microscopy (SEM). The results of our studies showed that the cathodic electrodeposition method is a practical and very efficient method for preparation of YAG nanostructures and addition of a cationic surfactant like CTAB into the electrolyte during the electrochemical deposition can lead to the formation of smaller particles and also has an impressive effect on the homogeneity and narrower particles size distribution.

https://doi.org/10.30501/jamt.2021.237871.1101 URL: https://www.jamt.ir/article_131755.html

۱- مقدمه

گارنت ایتریوم آلومینیوم[1] با فرمول شیمیایی $Y_3Al_5O_{12}$، ماده سنتزی با ساختار بلوری مکعبی است که معمولاً از واکنش مستقیم اکسیدهای ایتریم و آلومینیوم در دمای بالای ۱۵۰۰ درجه سلسیوس تهیه می‌شود و به‌اختصار YAG نامیده می‌شود. علاوه‌برآن، دو محصول میانی با فرمول شیمیایی $Y_4Al_2O_9$ (با ساختار مونوکلینیک) و $YAlO_3$ (با ساختار بلوری پروسکایت) که به‌اختصار YAM و YAP نامیده می‌شوند، نیز تشکیل می‌گردد. در ساختار بلوری YAG، یون‌های Y^{3+} در موقعیت‌های دوازده‌وجهی و یون‌های Al^{3+} در موقعیت‌های هشت‌وجهی و چهاروجهی قرار دارند. گارنت ایتریوم آلومینیوم (YAG) دارای انبساط حرارتی کم، پایداری شیمیایی و حرارتی زیاد، شفافیت نوری و سختی بالاست. YAG، به‌دلیل داشتن ویژگی ساختاری، نوری و لومینسانس[2] مناسب، به‌عنوان یک ماده لیزر، مورد توجه قرار گرفته است [۱ و ۲]. نکته مهم در تهیه سرامیک‌های شفاف نوری YAG و فسفرهای مبتنی بر YAG، تهیه پودرهایی با کیفیت بالا، اندازه ذرات ریز و پراکندگی خوب است. در سال‌های اخیر، به سرامیک‌های چندبلوری YAG توجه زیادی شده است و این مواد در حوزه‌های مختلفی مانند لیزرهای اشعه کاتدی، نمایشگرهای گسیل میدانی، نمایشگرهای فلورسنت خلأ و... استفاده می‌شوند [۳]. برای استفاده بهینه از YAG، دستیابی به پودر خالص حاوی ذرات کروی‌شکل با ریخت‌شناسی مناسب، توزیع اندازه باریک و اندازه ذرات متوسط ضروری است. روش‌های فیزیکی حالت جامد که تاکنون برای تهیه پودر YAG خالص گزارش شده است، کاستی‌هایی مانند اندازه ذرات بزرگ، توزیع نامتناسب، تشکیل فازهای نامطلوب و غیره دارد [۴-۶]. بنابراین، برای غلبه بر معایب روش حالت جامد و تولید پودرهای حاوی ذرات ریز و با کیفیت بالا، روش‌های جدیدی گسترش یافته است که مهم‌ترین آن‌ها عبارت‌اند از سل–ژل [۷]، هیدروترمال [۸]، احتراق [۹]، پیرولیز پاششی [۱۰] و هم‌رسوبی [۱۱]. لازم به ذکر است که روش‌های یادشده معایبی نیز مانند نیاز به درجه‌حرارت بالا، فشار زیاد، شستشوی فراوان برای خالص‌سازی، زمان‌بر بودن و... دارند. بااین وجود، به‌دلیل الزام عملیات حرارتی بعد از انجام این روش‌ها، تجمع ذرات، اجتناب ناپذیر است. در سال‌های اخیر، اثر سورفکتانت[3] یا ماده فعال سطحی نیز برای به‌دست آوردن ریخت‌شناسی مناسب، اندازه ذرات ریزتر و توزیع باریک فراورده‌های YAG، مورد بحث و بررسی قرار گرفته است [۱۲ و ۱۳].

روش الکتروشیمیایی در میان روش‌های مختلف تولید پودر YAG، یک رویکرد جدید و کاملاً منحصربه‌فرد برای غلبه بر مشکلات روش‌های یاد شده در بالاست. از مزایای این روش می‌توان به کاهش مصرف انرژی، سادگی انجام آزمایش‌ها، امکان کنترل دقیق بر ریخت‌شناسی، انعطاف‌پذیری و روش مناسب تهیه هیدروکسیدهای فلزی برای تولید نانوساختارها، اشاره کرد. روش ترسیب الکتروشیمیایی کاتدی، به‌دلیل کنترل هدفمند روی خواص فرآورده نهایی می‌تواند به‌عنوان روشی مؤثر در سنتز پودر YAG مورد استفاده قرار گیرد. در این روش، هنگام فرایند ترسیب الکتروشیمیایی روی سطح کاتد، هیدروکسیدهای فلزی تشکیل شده و سپس طی

[1] Yttrium Aluminum Garnet
[2] Luminescence
[3] Surfactant

عملیات حرارتی، به اکسید تبدیل می‌شوند. پودرهای خالص و چندبلوری‌های YAG قبلاً توسط گروه تحقیقاتی ما با استفاده از روش ترسیب الکتروشیمیایی کاتدی تهیه شده‌اند [۱۷-۱۴]. در این تحقیق، اثر سورفکتانت کاتیونی ستیل تری متیل آمونیوم بروماید [۱](CTAB) بر ریخت‌شناسی و اندازه ذرات پودر YAG سنتزشده به روش ترسیب الکتروشیمیایی کاتدی، بررسی می‌شود.

۲- روش تحقیق

تهیه نانوپودر YAG از طریق فرایند دو مرحله‌ای و با استفاده از روش ترسیب الکتروشیمیایی کاتدی از پیش ماده‌های $AlCl_3$ و $YCl_3.6H_2O$ (شرکت آلدریچ [۲]) با نسبت مولی مناسب ۰/۰۰۸۳-۰/۰۰۵ در سه محلول الکترولیت آب، اتانول و آب-اتانول با نسبت ۳:۱، بررسی شد. همچنین پیش از انجام فرایند ترسیب، سورفکتانت کاتیونی CTAB شرکت مرک [۳] با درصدهای وزنی مختلف ۱۰، ۱۵ و ۲۰ به محلول الکترولیت انتخاب شده بهینه، افزوده شد. طی فرایند الکتروشیمیایی، یون‌های هیدروکسید در سطح کاتد تولید می‌شوند و سپس طی یک فرایند شیمیایی، کاتیون‌های فلزی موجود در محلول الکترولیت با یون‌های هیدروکسید تولیدشده در سطح کاتد وارد واکنش می‌شوند و رسوب هیدروکسید Y(OH)n Al(OH)n تشکیل می‌دهند (شکل ۱) [۱۷-۱۴]. فرایند رسوب دهی الکتروشیمیایی روی سطح کاتد از جنس فولاد زنگ نزن (استیل) 316L به ابعاد ۱ سانتی‌متر × ۱ سانتی‌متر × ۱ میلی‌متر که موازی بین دو آند گرافیتی قرار داده شده بود، انجام شد. برای انجام واکنش الکتروشیمیایی، از مقدار جریان مستقیم، زمان رسوب‌دهی و دمای حمام، به‌ترتیب ۱ میلی‌آمپر بر سانتی‌مترمربع، ۶۰ دقیقه و ۲۵ درجه سلسیوس استفاده شد.

ورق استیل پس از عمل رسوب‌گذاری روی کاتد، چندین مرتبه با آب شستشو و در دمای محیط خشک شد. در ادامه، رسوب‌ها از بستر جدا شدند و به‌مدت ٤ ساعت تحت عملیات حرارتی در دمای ۱۱۰۰ درجه سلسیوس در محیط هوای خشک قرار گرفتند. برای شناسایی ساختار بلوری پودر YAG، از آنالیز پراش پرتو ایکس [٤] (XRD) توسط دستگاه مدل Phillips PW-1800 با پرتوی تک‌فام Cu-Kα با طول‌موج ۱/٥٤ آنگستروم در محدوده 2θ، ۱۰ تا ۷۰ درجه و سرعت روبش ۵ درجه بر دقیقه، استفاده شد. برای شناسایی باندهای جذبی موجود در ترکیبات نیز از آنالیز تبدیل فوریه فروسرخ [۵] (FTIR) با دستگاه مدل RAYLEIGH WQF-510A و برای تجزیه و تحلیل حرارتی نمونه هیدروکسیدی سنتزشده، از آنالیز گرماسنجی تفاضلی و وزن‌سنجی حرارتی (DTA-TGA) دستگاه مدل TGA/DSC1-METTLER TOLEDO-STARe استفاده شد. ریخت‌شناسی، اندازه ذرات و نحوه قرار گرفتن ذرات سنتزشده در سطح نیز توسط میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) دستگاه مدل TESCAN VEGA Model مورد بررسی قرار گرفت.

۳- نتایج و بحث

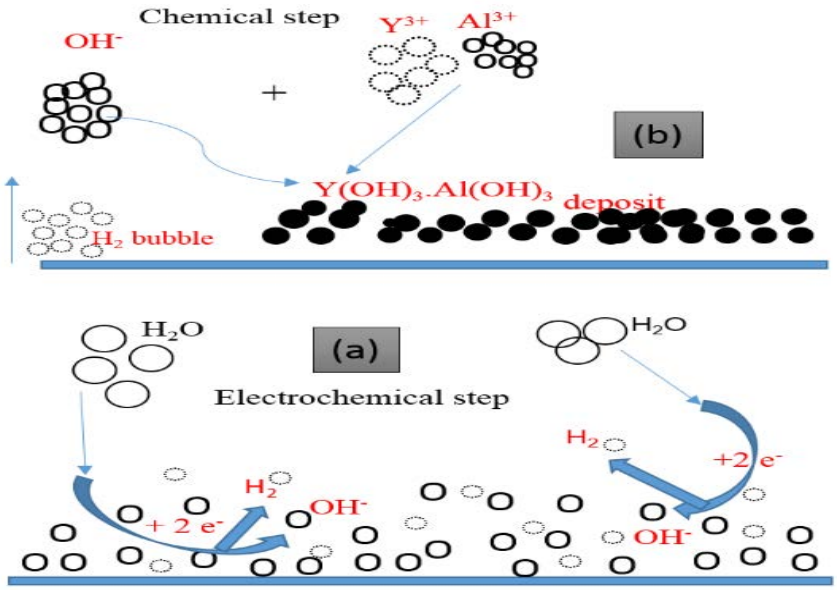
نانو پودرهای گارنت ایتریوم آلومینیوم به روش ترسیب الکتروشیمیایی کاتدی در محلول‌های الکترولیت آب، اتانول و آب-اتانول تهیه شدند.

همان‌طور که در شکل ۲ مشاهده می‌شود، الگوی XRD نمونه A که در محلول الکترولیت آب تهیه شده است، دارای ناخالصی‌های Al_2O_3 و YAM است. همچنین الگوی XRD نمونه B که در محلول الکترولیت اتانول تهیه شده است، ناخالصی Al_2O_3 دارد. الگوی XRD نمونه C تهیه‌شده در مخلوطی از آب و اتانول با استوکیومتری مناسب، ساختار بلوری YAG مکعبی خالص را تأیید می‌کند که با شماره کارت استاندارد JCPDS card No.033-0040 مطابقت دارد [۱۵-۸]. این موضوع نشان می‌دهد که محلول الکترولیت با نسبت مشخص بین آب و اتانول، الکترولیت مناسبی برای تشکیل فاز هیدروکسید طی فرایند ترسیب الکتروشیمیایی برای تشکیل فاز خالص YAG است. همان‌طور که مشاهده می‌شود، فاز نهایی هیچ‌گونه ناخالصی ندارد. تعیین متوسط اندازه بلور YAG خالص با استفاده از معادله شِرر [٦] حدود ۵۰ نانومتر بود

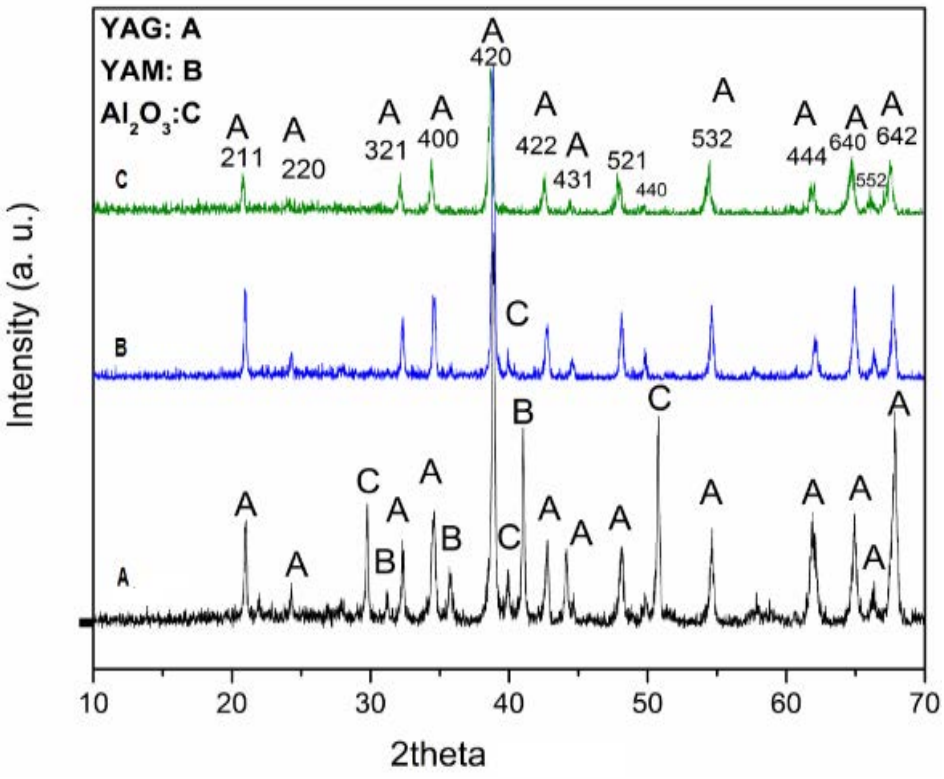
[1] Cetyl Trimethylammonium Bromide
[2] Aldrich
[3] Merck
[4] X-Ray Diffraction
[5] Fourier-Transform Infrared Spectroscopy
[6] Scherrer Equation

[۱۴-۱۷].

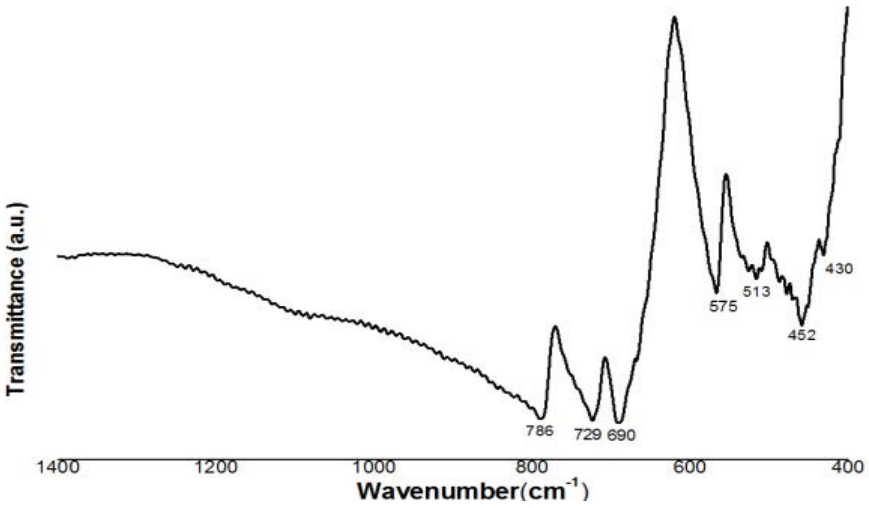
همان‌طور که در طیف FTIR نمونه سنتزشده YAG خالص (شکل ۳) مشاهده می‌شود، باندهای جذبی در نواحی ۴۳۰، ۴۵۲، ۵۱۳، ۷۲۹ و ۷۸۶ cm^{-1} مربوط به ارتعاشات کششی Al-O است. همچنین باندهای مشاهده‌شده در نواحی ۵۷۵ و ۶۹۰ cm^{-1} مربوط به ارتعاشات کششی Y-O و باندهای جذبی در ناحیه ۸۰۰-۴۰۰ cm^{-1} مربوط به ارتعاشات کششی M-O است [۹-۱۵].



شکل ۱. طرحواره ترسیب الکتروشیمیایی هیدروکسید Y(OH)n Al(OH)n



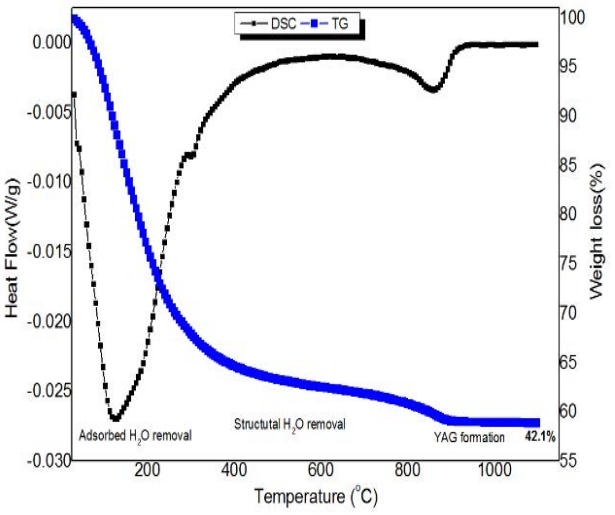
شکل ۲. الگوهای پراش پرتو ایکس (XRD) نمونه‌های سنتزشده YAG در الکترولیت‌های مختلف



شکل ۳. طیف تبدیل فوریه فروسرخ (FTIR) نمونه سنتزشده YAG خالص

در منحنی گرماسنجی روبشی تفاضلی (DSC)[1] (شکل ٤)، سه پیک متوالی گرماگیر مجزّا در دماهای ۱۳۵، ۳۱۰ و ۸۵۰ درجه سلسیوس، بیانگر تغییرات فیزیکی و شیمیایی در طول عملیات حرارتی این نمونه است و نحوه تبدیل هیدروکسید به اکسید را نشان می‌دهد. اولین پیک گرماگیر که در دمای ۱۳۵ درجه سلسیوس قرار دارد، مربوط به از دست دادن آب سطحی است که براین‌اساس، منحنی وزن‌سنجی حرارتی (TG)[2] متناسب با خارج شدن مولکول‌های آب طبق واکنش (۱)، ۵/۸ درصد کاهش را نشان می‌دهد.

$$[AI(OH)_3][Y(OH)_3].yH_2o \rightarrow [AI(OH)_3][Y(OH)_3]+yH_2o \quad (۱)$$



شکل ٤. منحنی‌های DSC-TGA نمونه سنتزشده YAG خالص

دومین پیک گرماگیر واقع‌شده در ناحیه ۳۱۰ درجه سلسیوس، مربوط به از دست دادن آب ساختاری موجود در نمونه است [۱۸ و ۲۰]. براین‌اساس، منحنی TG در محدوده بین ۵۰۰-۱۰۰ درجه سلسیوس، کاهش وزن ۳٦ درصد را نشان می‌دهد که مربوط به خارج شدن مولکول‌های آب طبق واکنش (۲) است.

$$5[AI(OH)_3] + [Y(OH)_3] \rightarrow 5AIOOH.3YOOH + H_2O \quad (۲)$$

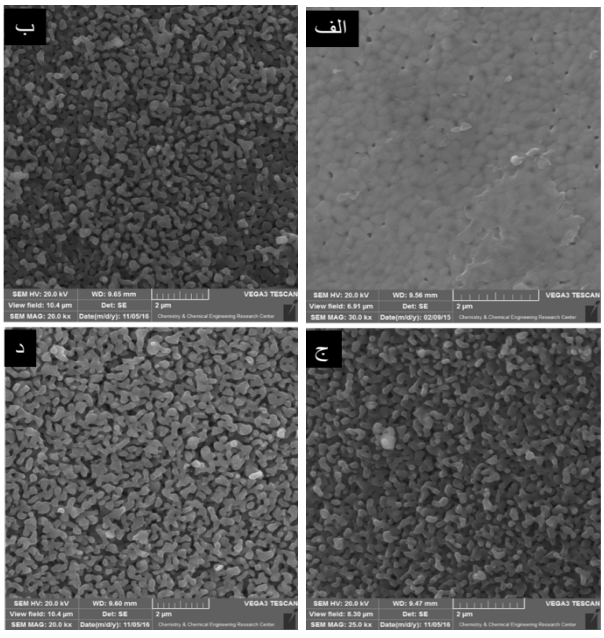
سومین پیک گرماگیر که در ناحیه ۸۵۰ درجه سلسیوس قرار دارد مربوط به تشکیل فاز خالص YAG است. برهمین‌اساس، منحنی TG، کاهش وزن ٤۲ درصد را در محدوده بین ۹۲۰-۵۰۰ درجه سلسیوس طبق واکنش (۳) نشان می‌دهد [١٤].

$$5AIOOH + 3YOOH \rightarrow Y_3AIsO_{12} + yH_2O \quad (۳)$$

شکل ۵، تصاویر SEM مربوط به نمونه‌های سنتزشده YAG را در اثر افزودن سورفکتانت کاتیونی CTAB با غلظت‌های متفاوت صفر درصد وزنی (الف)، ۱۰ درصد وزنی (ب)، ۱۵ درصد وزنی (ج) و ۲۰ درصد وزنی (د) به محلول الکترولیت آب-اتانول (با نسبت مشخص)، نشان می‌دهد. ابتدا کاتیون‌های فلزی موجود در محلول الکترولیت با یون‌های هیدروکسید (OH^-) که در طی واکنش الکتروشیمیایی تولید شده‌اند، در سطح کاتد واکنش داده و به شکل پیش‌ماده

[1] Differential Scanning Calorimetry
[2] Thermogravimetry

هیدروکسیدی روی کاتد رسوب می‌کنند. سورفکتانت‌های کاتیونی افزوده‌شده به محلول الکترولیت نیز می‌توانند با یون‌های هیدروکسید تولیدشده در سطح کاتد واکنش داده و درنتیجه همراه با پیش‌ماده هیدروکسیدی بر سطح کاتد رسوب کنند. فرآورده نهایی، بعد از انجام عملیات حرارتی در ۱۱۰۰ درجه سلسیوس تولید می‌شود که متوسط اندازه ذرات ۱۲۰-۱۰۰ نانومتر است. از مقایسه بین نمونه YAG تهیه‌شده بدون حضور سورفکتانت (شکل ۵-الف) با نمونه‌های YAG تهیه‌شده در حضور سورفکتانت (شکل‌های ۵-ب تا ۵-د) مشاهده می‌شود که فرآورده‌های تولیدشده با حضور سورفکتانت کاتیونی، به‌صورت حفره‌دار، همگن‌تر و با توزیع باریک‌تر اندازه ذرات به‌دست می‌آیند که این امر می‌تواند در نتیجه خارج شدن مولکول‌های سورفکتانتِ جای گرفته بین ذرات، در اثر حرارت در حین عملیات حرارتی باشد. همچنین با بررسی دقیق‌تر تصاویر SEM می‌توان دریافت که با افزایش میزان (درصد وزنی) سورفکتانت در هنگام سنتز نمونه‌های YAG (شکل‌های ۵-ج و ۵-د) افزون بر بزرگ‌تر شدن اندازه حفره‌ها (در اثر خارج شدن سورفکتانت)، اندازه ذرات نیز بزرگ‌تر، متوسط اندازه ذرات ۲۵۰-۱۵۰ نانومتر و توزیع اندازه آن‌ها باریک‌تر (همگن‌تر) می‌شود که این امر به‌خوبی اثر سورفکتانت بر ریخت‌شناسی و کیفیت فرآورده نهایی را نشان می‌دهد [۱۳-۱۲].



شکل ۵. تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) نمونه‌های سنتزشده YAG با غلظت‌های مختلف سورفکتانت CTAB

٤- نتیجه‌گیری

نانو پودرهای خالص گارنت ایتریوم آلومینیوم با موفقیت طی فرایند ترسیب الکتروشیمیایی کاتدی، در حضور سورفکتانت کاتیونی CTAB و به‌دنبال آن عملیات حرارتی تهیه شدند. ساختارهای بلوری و باندهای جذبی توسط آنالیزهای XRD و FTIR شناسایی شدند. پایداری حرارتی پودر نیز توسط آنالیز DSC-TGA مورد بررسی قرار گرفت و نشان داد که فاز خالص YAG در محدوده دمایی ۸۵۰ درجه سلسیوس تشکیل می‌شود. اثر سورفکتانت‌های کاتیونی بر ریخت‌شناسی و اندازه ذرات با آنالیز SEM بررسی شد. نتایج نشان داد که هرچه میزان (درصد وزنی) سورفکتانت در هنگام سنتز الکتروشیمیایی YAG بیشتر باشد، تأثیر آن بر اندازه ذرات، توزیع اندازه آن‌ها و همچنین ریخت‌شناسی سطح، بیشتر خواهد بود.

٥- سپاسگزاری

این طرح تحقیقاتی با استفاده از اعتبارات پژوهشی (پژوهانه شماره ۹۹۱۱۹۴۰) پژوهشگاه مواد و انرژی انجام شده است.

مراجع

1. Ren, Y., Dong, N., Chen. F., Jaque, D., "Swift nitrogen ion irradiated waveguide lasers in Nd: YAG crystal", ***Optics Express***, Vol. 19, No. 6, (2011), 5522-5527. https://doi.org/10.1364/OE.19.005522
2. Vomacka, P., Babushkin, O., "Crystallization of $Y_3Al_5O_{12}$ from an oxynitride glass monitored by high-temperature X-ray diffractometry", ***Journal of the European Ceramic Society***, Vol. 16, No. 11, (1996), 1263-1269. https://doi.org/10.1016/0955-2219(96)00027-1
3. Zhou, S., Fu, Z., Zhang, J., Zhang, S., "Spectral properties of rare-earth ions in nanocrystalline YAG: Re (Re=Ce^{3+}, Pr^{3+}, Tb^{3+})", ***Journal of Luminescence***, Vol. 118, No. 2, (2006), 179-185. https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2005.08.011
4. Ruan, S. K., Zhou, J. G., Zhong, A. M., Duan, J. F., Yang, X. B., Su, M. Z., "Synthesis of $Y_3Al_5O_{12}$: Eu^{3+} phosphor by sol-gel method and its luminescence behavior", ***Journal of Alloys and Compounds***, Vol. 275, (1998), 72-75. https://doi.org/10.1016/S0925-8388(98)00276-X
5. Nassar, E. J., Santos Pereira P. F., de Oliveira Nassor, E. C., Ávila, L. R., Ciuffi, K. J., Calefi, P. S., "Nonhydrolytic sol-gel synthesis and characterization of YAG", ***Journal of Materials Science***, Vol. 42, No. 7, (2007), 2244-2249. https://doi.org/10.1007/s10853-006-0077-9
6. Jiao, H., Ma, Q., He, L., Liu, Z., Wu, Q., "Low temperature synthesis of YAG: Ce phosphors by LiF assisted sol-gel combustion method", ***Powder Technology***, Vol. 198, No. 2, (2010), 229-232. https://doi.org/10.1016/j.powtec.2009.11.011
7. Kutyin, A. M., Rostokina, E. Y., Gavrishchuk, E. M., Drobotenko, V. V., Plekhovich A. D., Yunin, P. A., "Kinetics and

formation mechanism of yttrium aluminum garnet from an amorphous phase prepared by the sol-gel method", ***Ceramics International***, Vol. 41, No. 9, (2015), 10616-10623. https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2015.04.161

8. Xu, M. M., Zhang, Z. J., Zhu, J. J., Zhao J. T., Chen, X. Y., "Solvothermal synthesis and luminescence properties of yttrium aluminum garnet monodispersed crystallites with well-developed faces", ***Journal Physical Chemistry C***, Vol. 118, No. 46, (2014), 27000-27009. https://doi.org/10.1021/jp508507s
9. Laishram, K., Mann, R., Malhan, N., "Single step synthesis of yttrium aluminum garnet ($Y_3Al_5O_{12}$) nanopowders by mixed fuel solution combustion approach", ***Ceramics International***, Vol. 37, No. 8, (2011), 3743-3746. https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2011.05.052
10. Lee, S. H., Koo, H. Y., Lee, S. M., Kang, Y. C., "Characteristics of $Y_3Al_5O_{12:}$ Ce phosphor powders prepared by spray pyrolysis from ethylenediamine tetra acetic acid solution", ***Ceramics International***, Vol. 36, No. 2, (2010), 611-615. https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2009.09.041
11. Ramanujam, P., Vaidhyanathan, B., Binner, J., Anshuman, A., Spacie, C., "A comparative study of the synthesis of nanocrystalline Yttrium Aluminium Garnet using sol-gel and co-precipitation methods", ***Ceramics International***, Vol. 40, No. 3, (2014), 4179-4186. https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2013.08.075
12. Rai, P., Song, M., Song, M. -K., Song, H. -M., Kim, J. -H., Kim, Y. -S., Lee, I. -H., Yu, Y. -T., "Synthesis, growth mechanism and photoluminescence of monodispersed cubic shape Ce doped YAG nanophosphor", ***Ceramics International***, Vol. 38, No. 1, (2012), 235-242. https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2011.06.057
13. Zhang, Y., Yu, H., "Synthesis of YAG powders by the co-precipitation method", ***Ceramics International***, Vol. 35, No. 5, (2009), 2077-2081. https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2008.10.002
14. Hosseinifard, M., Badiei, A., Ahmadi, K., "Synthesis and characterization of yttrium aluminum garnet nanostructures by cathodic electrodeposition method", ***Advanced Powder Technology***, Vol. 28, No. 2, (2017), 411-418. https://doi.org/10.1016/j.apt.2016.10.012
15. Hosseinifard, M., Goldooz, H., Badiei, A., Ahmadi, K., "Synthesis, characterization and luminescence properties of YAG: RE (Ce, Sm and Gd) nanophosphor by cathodic electrodeposition method", ***Russian Journal of Electrochemistry***, Vol. 56, No. 2, (2020), 174-179. https://doi.org/10.1134/S102319352001005X
16. Hosseinifard, M., Badiei, A., Ahmadi, K., "Cathodic electrodeposition and characterization of YAG nanostructure: Effect current density on the morphology", ***Advanced Ceramics Progress***, Vol. 4, No. 2, (2018), 32-36. https://doi.org/10.30501/ACP.2018.91123
17. Hosseinifard, M., Goldooz, H., Badiei, A., Kazemzadeh, A., "Preparation and characterization of $Y_3A_5O_{12}$: Cr^{3+} nanophosphor by electrochemical technique", ***Advanced Ceramics Progress***, Vol. 6, No. 2, (2020), 30-34. https://doi.org/10.30501/ACP.2020.109547
18. Aghazadeh, M., Hosseinifard, M., Peyrovi, M. H., Sabour, B., "Electrochemical preparation and characterization of brain-like nanostructures of Y_2O_3", ***Journal of Rare Earths***, Vol. 31, No. 3, (2013), 281-288. https://doi.org/10.1016/S1002-0721(12)60273-7
19. Lukowiak, A., Wiglusz, R., Maczka, M., Gluchowski, P., Strek, W., "IR and Raman spectroscopy study of YAG nanoceramics", ***Chemical Physics Letters***, Vol. 494, No. 4-6, (2010), 279-283. https://doi.org/10.1016/j.cplett.2010.06.033
20. Khosrowpour, F., Aghazadeh, M., Arhamib, B., "Facile synthesis of vertically aligned one-dimensional (1D) La $(OH)_3$ and La_2O_3 nanorods by pulse current deposition", ***Journal of Electrochemical Society***, Vol. 160, No. 4, (2013), D150-D155. https://iopscience.iop.org/article/10.1149/2.050304jes/meta

فصلنامه مواد و فناوری‌های پیشرفته

Journal Homepage: www.jamt.ir

مقاله کامل پژوهشی

ساخت داربست‌های آپاتیتی نانوساختار به روش ریخته‌گری انجمادی برای مهندسی بافت استخوان

شکوفه برهان [۱*]، جواد اسماعیل‌زاده [۲]

[۱] استادیار، گروه مهندسی مواد، شیمی و پلیمر، دانشگاه بین المللی امام خمینی (ره)-مرکز آموزش عالی فنی و مهندسی بوئین‌زهرا، بوئین‌زهرا، قزوین، ایران

[۲] استادیار، دانشکده مهندسی مواد و شیمی، مجتمع آموزش عالی فنی و مهندسی اسفراین، اسفراین، خراسان شمالی، ایران

تاریخچه مقاله:

ثبت اولیه: ۱۳۹۹/۰۷/۱۹

دریافت نسخهٔ اصلاح‌شده: ۱۳۹۹/۰۹/۰۴

پذیرش قطعی: ۱۴۰۰/۰۶/۱۴

کلیدواژه‌ها:

کلسیم فسفات،

ریخته‌گری انجمادی،

ماکروتخلخل،

نانوساختار

چکیده حضور ماکروتخلخل‌ها در داربست‌ها، علاوه بر افزایش سرعت جذب، باعث فراهم آمدن ساختاری برای رشد سلول‌های استخوانی و ایجاد استخوان جدید با ساختار کامل و یکنواخت می‌شود. در این پژوهش، پودر سیمان کلسیم فسفات، با مخلوطی از تتراکلسیم فسفات و دی‌کلسیم فسفات دوآبه، تهیه شد. برای به‌دست آوردن سوسپانسیون پایدار، پودر سیمان، با نسبت پودر به مایع ۰/۵ گرم بر میلی‌لیتر، با آب یون‌زدایی شده، مخلوط شد و ۳ درصد وزنی دولاپیکس جامد و ٤ درصد وزنی پلی‌وینیل الکل (PVA) جامد به سوسپانسیون اضافه شد. داربست‌ها، به روش ریخته‌گری انجمادی تهیه شدند. متوسط اندازه ذرات پودر سیمان، ۵/٤۵ میکرومتر تخمین زده شد. بررسی میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) نشان داد که ساختار، حاوی تخلخل‌هایی در محدوده ۱۰۰ تا ۳۰۰ میکرومتر است و بعد از قرارگیری داربست‌ها در محلول شبیه به مایعات بدن، آپاتیت نانوساختار، روی دیواره تخلخل‌ها تشکیل شد. استحکام فشاری نمونه‌ها بین ۱/۲ تا ۲/۲ مگاپاسکال اندازه‌گیری شد. تکثیر سلولی نشان داد با گذشت زمان، تعداد سلول‌های شمارش شده روی سطح نمونه‌ها، تقریباً سه برابر شده است.

https://doi.org/10.30501/jamt.2021.251760.1130 URL: https://www.jamt.ir/article_126413.html

Original Research Article

Journal of Advanced Materials and Technologies (JAMT): Vol. 10, No. 2, (Summer 2021), 21-31

Fabrication of Nanostructured Apatite Scaffolds by Freeze-Casting Method for Bone Tissue Engineering

Shokoufeh Borhan [1*], Javad Esmaeilzadeh [2]

[1] *Assisstant Professor, Department of Materials, Chemical and Polymer Engineering, Imam Khomeini International University-Buin Zahra Higher Education Center of Engineering and Technology, Buin Zahra, Qazvin, Iran*

[2] *Assisstant Professor, Department of Material and Chemical Engineering, Esfarayen University of Technology, Esfarayen, North Khorasan, Iran*

Paper History:
Received: 2020-10-10
Revised in revised form: 2020-11-24
Accepted: 2021-09-05

Abstract The presence of macropores in the scaffolds, in addition to increasing the rate of adsorption, provides a structure for the growth of osteoblasts and promote the formation of new bone with a complete and uniform structure. In this study, calcium phosphate powder was prepared by mixing tetra calcium phosphate and dicalcium phosphate dihydrated. To achieve stable suspension cement powder was mixed with deionized

***عهده دار مکاتبات**

نشانی: ایران، قزوین، بوئین‌زهرا، دانشگاه بین المللی امام خمینی (ره)-مرکز آموزش عالی فنی و مهندسی بوئین‌زهرا، گروه مهندسی مواد، شیمی و پلیمر، **تلفن:** ۰۹۱۲۷۸٤۷۱۲٦، **دورنگار:** -

پیام نگار: shkfborhan@bzte.ac.ir

Please cite this article as: Borhan, Sh., Esmaeilzadeh, J., "Fabrication of nanostructured apatite scaffolds by freeze-casting method for bone tissue engineering", ***Journal of Advanced Materials and Technologies (JAMT)***, Vol. 10, No. 2, (2021), 21-31. (https://doi.org/10.30501/jamt.2021.251760.1130).

2783-0829/© 2021 The Author(s). Published by MERC.
This is an open access article under the CC BY license (https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/).

Keywords:
Calcium Phosphate,
Freeze Casting,
Macro Porous,
Nanostructure

water at powder to liquid ratio of 0.5 g/mL and 3 wt % of dispersant factor, dolapix, and 4 wt % of polyvinyl alcohol were added to suspension. Scaffolds were prepared by freeze-casting method. The average particle size of cement powder was estimated to be 5.45 µm. SEM micrographs indicate that created pores in the structure are in the range of 100-300 µm. Nanostructure apatite is formed on the wall of pores after soaking in SBF. Compressive strength of samples was measured between 1.2 to 2.2 MPa. Cell numbers on the surface of the samples are tripled over time.

https://doi.org/10.30501/jamt.2021.251760.1130 URL: https://www.jamt.ir/article_126413.html

۱- مقدمه

هیدروکسی آپاتیت[1] (HA) به دسته‌ای از زی‌سرامیک‌ها[2] برپایه کلسیم فسفات گفته می‌شود که به‌علت تشابه شیمیایی و ساختاری به فاز معدنی استخوان طبیعی، به‌عنوان پیوند استخوان به‌کار می‌رود [۱ و ۲]. ازآنجایی که HA، پیوند شیمیایی قوی‌ای با بافت استخوان میزبان برقرار می‌کند، به‌منزله ماده پیوند استخوانی خوب شناخته شده است. HA، نه‌تنها زیست‌فعال است، بلکه زیست‌سازگار و غیرسمّی و دارای قابلیت هدایت رشد استخوان[3] نیز هست و ساختار بلورشناسی آن، مشابه قسمت کانی استخوان با میزان کربنات مناسب است. درواقع، زیست‌سازگاری از مهم‌ترین خواص هیدروکسی آپاتیت، به‌معنای فقدان آثار سمّی در عملکرد زیستی است که به توپوگرافی سطحی و بیوشیمی ماده بستگی دارد. زیست‌فعالی نیز، به‌معنای توانایی برقراری پیوند شیمیایی مستقیم با سلول‌های بدن است. به عبارتی، این ماده توانایی آن را دارد که وقتی در محیط بدن قرار می‌گیرد، بازسازی بافت استخوان ازدست‌رفته را تسهیل و ترغیب کند [۳ و ٤].

اخیراً هیدروکسی آپاتیت در مقیاس نانو (۱۰ تا ۱۰۰ نانومتر)، نسبت به نمونه متناظر در مقیاس میکرون، کاربرد بیشتری پیدا کرده است، که به‌علت خواص عملکردی برتر آن، به‌ویژه واکنش‌پذیری سطحی و ساختار بسیار ریز، دارای ویژگی بسیار مهم برهم‌کنش پیوند با بافت است. در چند سال گذشته، تلاش‌های پژوهشی ویژه‌ای برای تهیه HA و کامپوزیت‌هایش در مقیاس نانو برای دستیابی به ساختارهای بسیار ریز با خواص فیزیکی، مکانیکی، شیمیایی و زیستی بهتری نسبت به میکرو HA و مشابه با فاز معدنی استخوان انجام شده است. ثابت شده است که HA، در مقیاس نانو، در مقایسه با نوع میکرونی آن، موجب چسبندگی سلول‌های استخوانی[4] (اُستئوبلاست‌ها)، تمایز و تکثیر آن‌ها، رسوب‌دهی کانی‌های حاوی کلسیم و تشکیل بافت استخوان تازه در زمانی کوتاه می‌شود [۵].

رشد بافت استخوانی، در داخل کاشتنی[5] HA متخلخل، باعث تثبیت کاشتنی در محل کاشت می‌شود. پس از این‌که بافت به‌طور کامل در کاشتنی رشد کرد، کاشتنی، شامل ۱۷ درصد استخوان، ٤۳ درصد بافت نرم و ٤۰ درصد HA باقی‌مانده خواهد بود. اگرچه این نوع کاشتنی با سرعت بسیار اندک (حدود ۱ درصد در سال) جذب می‌شود، باید آن را نوعی زیست‌ماده[6] غیرقابل‌جذب دانست [٦]. اگر تخلخل‌هایی با اندازه کمتر از حدود ۵۰ میکرومتر در کاشتنی وجود داشته باشد، بافت نمی‌تواند به داخل آن رشد کند. تخلخل‌هایی با اندازه بین ۱ تا ۵۰ میکرومتر، محل مناسبی برای حضور و رشد باکتری در کاشتنی خواهند بود. از آنجا که اندازه درشت‌خوارها[7]، به‌مراتب، بزرگتر از ۵۰ میکرومتر است، این سلول‌ها، توانایی دفع و پاک‌کردن کاشتنی از باکتری‌های تجمع‌یافته در حفرات کمتر از ۵۰ میکرومتر را ندارند. اما اگر اندازه تخلخل‌ها بیشتر از ۵۰ میکرومتر باشد، بافت می‌تواند داخل کاشتنی رشد کند و درشت‌خوارها نیز توان حضور در آن را خواهند داشت. بنابراین، امکان عفونت در کاشتنی‌های متخلخل با اندازه بیشتر از ۵۰ میکرومتر، کمتر است [۷]. حضور ماکروتخلخل‌هایی با اندازه مناسب (۵۰ تا ۲۵۰ میکرومتر)، به‌منظور تداوم رشد استخـــوان در درون کاشتنی، اهمیت فراوانی دارد [۸]. اندازه تخلخل‌ها، از مهم‌ترین پارامترها در بحث رشد استخوان داخل کاشتنی است. رشد استخوان، زمانی امکان‌پذیر است که اندازه تخلخل‌ها در حد چند صد میکرومتر باشد. چنانچه اندازه تخلخل‌ها بین ۵۰ تا ۱۰۰ میکرومتر باشد، رشد بافت نسبتاً متبلور، با ساختار

[1] Hydroxyapatite
[2] Bioceramics
[3] Osteoconductivity
[4] Osteoblasts
[5] Implant
[6] Biomaterial
[7] Macrophage

استخوانی که کامل نیست، اتفاق می‌افتد. حال آن‌که اگر اندازه تخلخل‌ها کمتر از ۵۰ میکرومتر باشد، فقط بافت نرم در تخلخل‌ها نفوذ می‌کند [۹].

اخیراً تلاش‌هایی برای ایجاد ماکروتخلخل در کلسیم فسفات‌های مختلف، مانند هیدروکسی آپاتیت، بتاتری کلسیم فسفات[1] و سیمان‌های کلسیم فسفاتی، انجام شده است. برای نمونه، سیمان‌های فسفات کلسیم آپاتیتی، به‌منظور افزایش سرعت جذب، از طریق فراهم‌آوردن کانال‌هایی برای گذر سلول‌های استخوانی و نیز بستری برای رشد استخوان داخل کاشتنی، ماکروتخلخل‌هایی را در سیمان به‌وجود می‌آورند. به عبارت دیگر، میکروتخلخل‌ها در ریزساختار سیمان، به فرایند جذب سیمان کمک می‌کند، حال آن‌که ماکروتخلخل‌ها، علاوه بر افزایش نرخ حلالیت سیمان در سازوکار جذب، باعث فراهم‌آمدن ساختاری برای رشد و حرکت سلول‌های استخوانی در کاشتنی و ایجاد استخوان جدید با ساختار کامل و یکنواخت می‌شوند [۹].

البته، ایجاد ماکروتخلخل در سیمان، باعث افت استحکام مکانیکی می‌شود، به‌طوری که اگر استحکام کششی سیمان بدون تخلخل، ۱۰ مگاپاسکال باشد، با ایجاد ۳۸ درصد تخلخل در سیمان، استحکام آن به ۱/۵ مگاپاسکال می‌رسد [۱۰]. اگرچه استحکام داربست‌های سیمان‌های کلسیم فسفاتی ماکرومتخلخل، بسیار اندک است، مشخص شده است که این محدودیت، نمی‌تواند از به‌کارگیری این دسته از داربست‌ها در بازسازی استخوان جلوگیری کند؛ چراکه اگر این داربست‌ها بتوانند ساختار یک لایه از بافت را تا تشکیل عروق جدید و رشد استخوان تحمل کنند، استحکام بلندمدت آن‌ها اهمیت کمتری می‌یابد و ویژگی قابلیت جذبشان، مهم‌تر خواهد بود. پژوهشگران به این نتیجه رسیده‌اند که ایجاد ماکروتخلخل در سیمان فسفات کلسیم، می‌تواند باعث افزایش سرعت جذب سیمان و جایگزینی استخوان جدید در کاشتنی شود. تاکنون روش‌های متعددی با هدف تولید داربست‌های متخلخل برای کاربردهای مختلف مهندسی بافت استخوان بررسی شده‌اند که هرکدام، مزایا و محدودیت‌های خاص خود را دارند. از روش‌های رایج در تولید داربست‌های متخلخل، استفاده از روش ریخته‌گری انجمادی است [۱۵-۱۱]. با این روش، امکان تولید فوم‌هایی شدیداً متخلخل، با تخلخل‌هایی بیش از ۹۰ درصد و توانایی کنترل اندازه حفرات در محدوده ۲۰ تا ۲۰۰ میکرومتر میسر خواهد شد [۱۶]. این فرایند، شامل مراحل متعددی است که اولین مرحله آن، انحلال سرامیک در حلالی مناسب است تا محلول همگن و یکنواختی به‌دست آید. محلول امولسیون به‌دست‌آمده، درون قالب ریخته و توسط نیتروژن مایع، تبرید می‌شود. درنهایت، نمونه‌های آماده‌شده، به درون خشک‌کن انجمادی، انتقال می‌یابند تا حلال باقی‌مانده، از داربست خارج شود. پس از تصعید حلال، داربستی متخلخل از مواد سرامیکی، به‌جای می‌ماند. ریخت‌شناسی[2] تخلخل‌های ایجادشده، به عوامل متعددی، مانند غلظت سوسپانسیون اولیه و سرعت سرمایش، بستگی دارد. به‌منظور کنترل ساختار نهایی داربست، می‌توان از عوامل پراکنده‌ساز استفاده کرد. پایدارسازی دوغاب، باید به‌دقت کنترل شود تا از هرگونه جدایش در مرحله انجماد که باعث شیب چگالی و تخلخل می‌شود، جلوگیری شود. این موضوع، به‌خصوص دربارهٔ دوغاب‌های رقیق، مهم است. حضور چسب، برای استحکام‌بخشی به قطعه خام، بعد از مرحله تصعید نیز، بسیار مهم است [۱۷ و ۱۸].

تاکنون، در کارهای پژوهشی مختلف، تشکیل آپاتیت نانوساختار، روی سیمان‌های کلسیم فسفاتی، بررسی شده است [۲۲-۱۹]، اما ساخت داربست‌هایی از نانوبلورهای هیدروکسی آپاتیت که دارای ماکروتخلخل‌های منظم در ابعاد مناسب برای رشد سلول باشند، تا به حال بررسی نشده است. هدف از انجام این پژوهش، ساخت داربست آپاتیتی نانوساختار ماکرومتخلخل، به روش ریخته‌گری انجمادی، از پودر سیمان کلسیم فسفات و بررسی خواص ساختاری، مکانیکی و زیستی آن‌هاست. در این داربست، تبدیل واکنشگرها به آپاتیت نانوساختار، در محیط شبیه به مایعات بدن، در روزهای مختلف، ارزیابی می‌شد.

۲- روش تحقیق

۲-۱- سنتز پودر سیمان کلسیم فسفات

[1] Beta-Tricalcium Phosphate

[2] Morphology

پودر سیمان کلسیم فسفات، به روش واکنش حالت جامد تهیه شد [۱۵]. برای سنتز تتراکلسیم فسفات[1] (TTCP)، مخلوطی از یک مول کربنات کلسیم (Merck 2069) و یک مول دی‌کلسیم فسفات[2] بدون آب (مونتیت)[3] (Merck 2144)، به‌مدت ۱ ساعت، در آسیاب سیاره‌ای (SV015IG5-1)، با سرعت ۱۸۰ دور در دقیقه، همگن شد. مخلوط حاصل، به‌مدت ٦ ساعت، درون کوره الکتریکی (AZAR FURNACES Co., PA 8, F2L-1500, المنت SiC) با دمای ۱۵۰۰ درجه سلسیوس نگهداری شد. سپس، محصول در دمای محیط، سردایش شد. کلوخه‌های به‌دست‌آمده، با هاون عقیق، خرد و از الک مش ۱۰۰، عبور داده شد. در ادامه، تتراکلسیم فسفات حاصل و دی‌کلسیم فسفات دوآبه (براشیت)[4] (Merck 2146)، به نسبت مولی ۱:۱ و به‌مدت ۱ ساعت در آسیاب ماهواره‌ای با سرعت ۲۰۰ دور در دقیقه مخلوط شدند تا پودر سیمان همگن و نسبتاً ریزی به‌دست آید. محصول، برای ذخیره‌سازی و جلوگیری از نفوذ رطوبت، در محفظه‌ای سربسته، نگهداری شد.

۲-۲- تهیه داربست‌های آپاتیتی ماکروتخلخل نانوساختار

سوسپانسیون استفاده‌شده در روش ریخته‌گری انجمادی باید طی فرایند یخزدن، پایداری کافی داشته باشد و ذرات جامد در آن ته‌نشین نشوند تا داربستی یکنواخت، به‌دست آید. بدین‌منظور، پودر سیمان، با نسبت پودر به مایع ۰/۵ گرم بر میلی‌لیتر، با آب یون‌زدایی‌شده، مخلوط شد و به میزان ۳ درصد وزنی ماده جامد عامل پراکنده‌ساز دولاپیکس[5] P62، اضافه شد. سوسپانسیون حاصل، روی همزن، به‌مدت ۲۰ دقیقه، هم‌زده شد تا یکنواختی لازم به‌دست آید. به‌منظور استحکام‌بخشی اولیه داربست‌ها، ٤ درصد وزنی ماده جامد پلی وینیل الکل[6] (PVA)، به سوسپانسیون در حال هم‌زدن اضافه شد. با استفاده از محلول NaOH یک مولار، pH سوسپانسیون، در مقدار ۱۰، ثابت شد. سپس، با استفاده از دسیکاتور خلأ، سوسپانسیون حاصل، حباب‌زدایی شد.

برای تهیه هر داربست، مقدار ۵ میلی‌لیتر از سوسپانسیون تهیه‌شده، درون قالب استوانه‌ای پلی‌اتیلنی با قطر ۲۰ میلی‌متر ریخته شد. این قالب، در تماس مستقیم با صفحه مسی که قسمت سردکننده دستگاه است و دمای آن با نیتروژن مایع کنترل می‌شود، قرار دارد. سرعت معمول سرمایش بین ۰/۵ تا ۵ درجه سلسیوس بر دقیقه است [۲۳] که برای این سوسپانسیون، سرعت سرمایشی معادل ۲ درجه سلسیوس بر دقیقه انتخاب شد. بعد از انجماد کامل، نمونه‌های ریخته‌گری‌شده، از قالب جدا شدند و داخل خشک‌کن انجمادی[7] (beta 1-2LD plus marin Christ Gmbtt- Germany)، با فشار ۲/۱ پاسکال و دمای ۵۵- درجه سلسیوس، به‌مدت ۷۲ ساعت، قرار داده شدند. آب موجود در نمونه‌ها، تصعید شد و بدنه سرامیکی خام به‌دست آمد.

داربست‌های تهیه‌شده، به‌مدت ۲ روز در حمام آب با دمای ۳۷ درجه سلسیوس و رطوبت ۱۰۰ درصد، قرار داده شدند. سپس، به‌منظور تشکیل آپاتیت نانوساختار، به‌مدت ۱، ۳، ۷ و ١٤ روز، درون محلول شبیه‌سازی‌شده بدن[8] (SBF) غوطه‌ور شده و در اینکوباتور[9] (EHRET KBK 4200) ۳۷ درجه سلسیوس نگهداری شدند. ساخت محلول شبیه به مایعات بدن، طبق روش کوکوبو[10]، انجام شد [٢٤]. SBF هر نمونه، هر ٢٤ ساعت، تعویض شد.

۲-۳- توزیع اندازه ذرات پودر کلسیم فسفات سنتزشده

توزیع اندازه ذرات پودر سیمان آپاتیتی که شامل اجزاء اصلی تتراکلسیم فسفات و دی‌کلسیم فسفات دوآبه بودند، با استفاده از روش تحلیل اندازه ذرات با لیزر[11] (LPSA) و از طریق دستگاه FRITSCH PARTICL SIZE ANALYSER 22، تعیین شد. با توجه به این‌که این مواد در آب دارای حلالیت جزئی هستند، استون، به‌منزله محیط واسطه، برای اندازه‌گیری اندازه ذرات، انتخاب شد.

۲-٤- بررسی مشخصات داربست‌های تهیه‌شده

[1] Tetracalcuim Phosphate
[2] Dicalcium Phosphate
[3] Montieth
[4] Brashit
[5] Dolapix
[6] Polyvinyl Alcohol
[7] Freeze Dryer
[8] Simulated Body Fluid
[9] Incobator
[10] Kokubo
[11] Laser Particle Size Analysis

۲-٤-۱- ترکیب فازی

به‌منظور شناسایی نوع فازهای تشکیل‌شده روی داربست‌های تهیه‌شده، قبل از غوطه‌وری در SBF و بعد از غوطه‌وری به‌مدت ۱، ۳، ۷ و ۱٤ روز، آزمایش پراش پرتو ایکس[1] (XRD) انجام گرفت. الگوی پراش، با استفاده از پراش‌سنج پرتو X مدل Philips PW 3710 با آند Cu و فیلتر Ni و با طول موج ۱/٥٤ انگستروم تابش Cu-K_α، در ولتاژ KV ٤۰ و جریان mA ۳۰ به‌دست آمد. الگوی XRD نمونه‌ها در محدوده زاویه 2θ، ۲۰ تا ٥۰ درجه ثبت شد.

۲-٤-۲- گروه‌های ساختاری

به‌منظور مطالعه پیوندها و گروه‌های شیمیایی موجود در داربست‌های تهیه‌شده، قبل از غوطه‌وری و ۱٤ روز بعد از غوطه‌وری، ۱۰ میلی‌گرم از پودر مورد نظر، با ۸۰۰ میلی‌گرم KBr، مخلوط و به شکل قرص شفاف KBr، پرس شد. طیف فروسرخ با استفاده از طیف‌سنج مادون قرمز BRUKER VECTOR 33، در محدوده cm^{-1} ٤۰۰۰-٤۰۰ با توان تفکیک[2] cm^{-1} ۲، اندازه‌گیری شد.

۲-٤-۳- ریزساختار

ریخت‌شناسی سطح نمونه‌های سیمانی، توسط میکروسکوپ الکترونی روبشی[3] (Stereoscan S360-Cambridge 1990) با ولتاژ شتاب‌دهنده ۲۰ کیلوولت، بررسی شد. در ابتدا، به‌دلیل هدایت الکتریکی ضعیف نمونه‌ها، لایه بسیار نازکی از طلا، به روش کندوپاش، روی نمونه‌ها نشانده شد و سپس، مشاهدات ریزساختاری، در بزرگ‌نمایی‌های مختلف، انجام گرفت. اندازه‌گیری تخلخل‌ها روی تصاویر SEM، توسط نرم‌افزار ImageJ، انجام شد [۲۷-۲٥].

۲-٤-٤- استحکام فشاری

نمونه‌های استوانه‌ای‌شکل با قطر ۱٥ میلی‌متر و ارتفاع ۲۰ میلی‌متر، تهیه شدند. استحکام فشاری نمونه‌ها، قبل از غوطه‌وری و بعد از ۱، ۳، ۷ و ۱٤ روز غوطه‌وری در محلول شبیه به مایعات بدن، با استفاده از دستگاه تعیین خواص مکانیکی (Crop, canton Instron 5565) و با سرعت حرکت فک ۱ میلی‌متر در دقیقه، اندازه‌گیری شد. چهار نمونه، از هر ترکیب سیمان، آزمایش شد.

۲-٤-٥- ریخت‌شناسی سلولی

پس از تثبیت سلول‌های زنده روی سطح نمونه‌ها، ریخت‌شناسی آن‌ها و نیز چگونگی چسبندگی آن‌ها به سطح، پس از ۲ و ۷ روز قرارگیری در محیط کشت، با میکروسکوپ الکترونی روبشی (Stero Scan S360 Cambridge) بررسی شد. برای آماده‌سازی نمونه‌ها، لایه بسیار نازکی از طلا، به‌عنوان پوشش هادی و به روش کندوپاش، روی سطح نمونه‌ها نشانده شد و سپس، سطح نمونه، توسط الکترون‌های ثانویه، مطالعه شد.

۲-٤-٦- تکثیر سلولی

برای بررسی ویژگی‌های زیستی داربست‌ها، سلول‌های استخوانی، از فک نوزاد موش، استخراج شد و در محیط کشت Dulbecco modified Eagle medium, Gibco-) DMEM BRL, Life Technologies, Grand Island, NY) حاوی ۱٥ درصد سرم جنین گاوی و ۱۰۰ واحد بر میلی‌لیتر پنی‌سیلین، در اینکوباتور با اتمسفر ۹٥ درصد هوا و ٥ درصد دی‌اکسید کربن، به‌مدت یک هفته، کشت داده شد. برای بررسی تکثیر سلولی، از روش MTT استفاده شد. به این ترتیب که نمونه‌ها، با استفاده از ۷۰ درصد اتانول، استرلیزه شده و سلول‌های استخوانی، روی سطح آن‌ها، با غلظت 10^4 سلول در سطح، کشت داده شدند. مجموعه نمونه - سلول، ابتدا، درون ظرف کشت ۲٤ خانه‌ای قرار داده شد و سپس، به‌مدت ۳ ساعت، درون اینکوباتور قرار داده شد تا سلول‌ها به نمونه‌ها بچسبند و ۳۰ میلی‌لیتر دیگر محیط کشت به هر خانه، اضافه شد. آن‌گاه، مجموعه نمونه - سلول، در اینکوباتوری با دمای ۳۷ سلسیوس و رطوبت ۱۰۰ درصد و اتمسفر ۹٥ درصد هوا-٥ درصد دی‌اکسید کربن، در فاصله‌های زمانی ۲ و ۷ روز، قرار داده شد. در این مدت، محیط کشت، هر سه روز یک‌بار، تعویض شد. محلول MTT (3-{4,5-dimethylthiazol-2yl}-2,5-diphenyl-2H-tetrazolium bromide)، توسط سلول‌های زنده، جذب

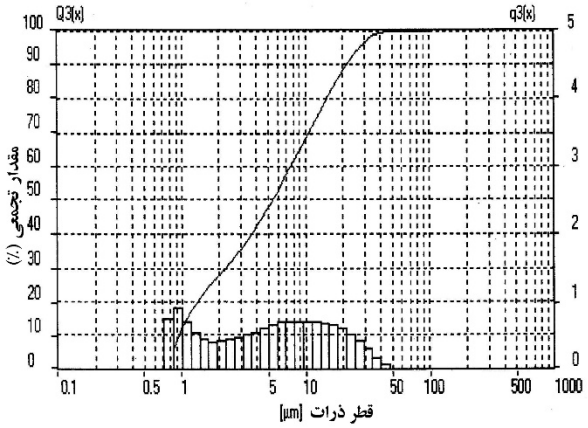
[1] X-Ray Diffraction
[2] Resolution
[3] Scanning Electron Microscopy

شده و باعث رسوب فورمازون توسط سلول‌ها می‌شود. بلورهای فورمازون، در محلول دی‌متیل سولفوکساید، حل شد و دانسیته نوری محلول، توسط طیف‌سنج نوری[1] (BIO-TEK Elx 800, Highland park, USA)، در طول موج ۵۷۰ نانومتر، اندازه‌گیری شد و سپس، با استفاده از منحنی واسنجی[2]، با تعداد سلول‌های مشخص، تعداد سلول‌ها روی سطح نمونه، تعیین شد.

۳- نتایج و بحث

۳-۱- اندازه ذرات پودر سیمان کلسیم فسفات سنتزشده

متوسط اندازه ذرات پودر سیمان، متشکل از دی‌کلسیم فسفات دی‌هیدرات[3] (DCPD) و تتراکلسیم فسفات (TTCP)، ۵/۴۵ میکرومتر تخمین زده شد. همان طوری که در منحنی توزیع اندازه ذرات پودر، در شکل ۱ مشاهده می‌شود، ۹۰ درصد ذرات، اندازه‌ای کمتر از ۲۱ میکرومتر داشتند. به‌منظور جلوگیری از ته‌نشینی فاز جامد حین فرایند ریخته‌گری، پایداری سوسپانسیون باید به‌دقت کنترل شود؛ زیرا عدم‌پایداری سوسپانسیون، موجب گرادیان دانسیته و تخلخل در نمونه می‌شود. وجود چسب برای استحکام‌بخشی به نمونه، بعد از تصعید، لازم است.



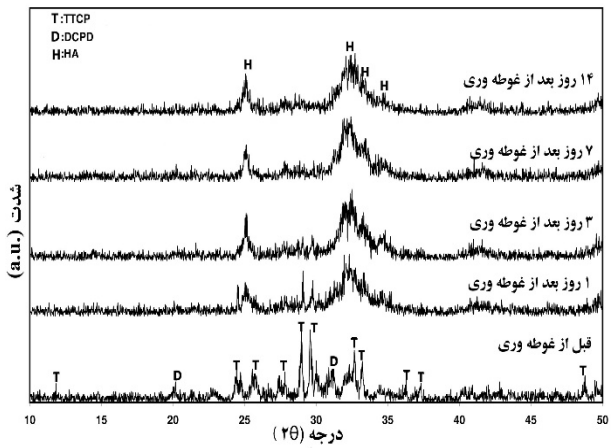
شکل ۱. منحنی توزیع اندازه ذرات پودر سیمان سنتزشده

برای ایجاد ساختار هموژن و پایدار، پودری با اندازه ذرات متوسط، در محدوده زیر میکرون، مناسب است. ضمن این‌که حضور ذرات بزرگ و اگلومره، برای ساختار نهایی، محدودکننده است [۱۶]. پودر سیمان تهیه‌شده، دارای اندازه ذرات زیر میکرون بود و منحنی توزیع اندازه ذرات، مشخص کرد که ذرات اگلومره شده در پودر وجود ندارند. این امر، موجب رسیدن به پایداری مناسب در سوسپانسیون شد.

۳-۲- ترکیب فازی، گروه‌های ساختاری و ریزساختار داربست‌های آپاتیتی ماکرومتخلخل

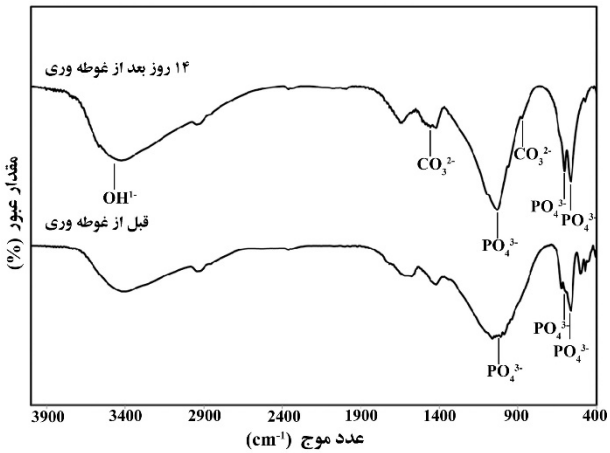
۳-۲-۱- ترکیب فازی

شکل ۲، الگوهای XRD به‌دست‌آمده از داربست‌های تهیه‌شده از پودر سیمان را نشان می‌دهد. در نمونه قبل از غوطه‌وری، تمام پیک‌های مشاهده شده، مربوط به تتراکلسیم فسفات (JCPDS 25-1137) و دی‌کلسیم فسفات دی‌هیدرات (JCPDS 09-0077) است. با توجه به این الگو، هیچ‌گونه فاز ناخالص قابل تشخیصی، با این روش، در پودر سیمان وجود ندارد. بعد از ۱ روز غوطه‌وری در SBF، از مقدار فاز تتراکلسیم فسفات و دی‌کلسیم فسفاتِ بدون آب، کاسته شده است و فاز آپاتیت تشکیل شده است. با افزایش زمان غوطه‌وری، فازهای TTCP و DCPA کاملاً حذف شده‌اند و بر شدت پیک آپاتیت (JCPDS 09-0432)، اضافه شده است. بعد از ۱۴ روز غوطه‌وری، آپاتیت تنها فاز موجود در سیمان است. پیک پهن موجود در الگوهای XRD، نشان‌دهنده بلورینگی کم فاز آپاتیت تشکیل شده و همچنین نانومتری بودن اندازه بلورهای این فاز است.



شکل ۲. الگوی پراش پرتو X داربست تهیه‌شده، قبل از غوطه‌وری و بعد از ۱، ۳، ۷ و ۱۴ روز غوطه‌وری در SBF

[1] Spectrophotometer
[2] Calibration
[3] Dicalcium Phosphate Dihydrate



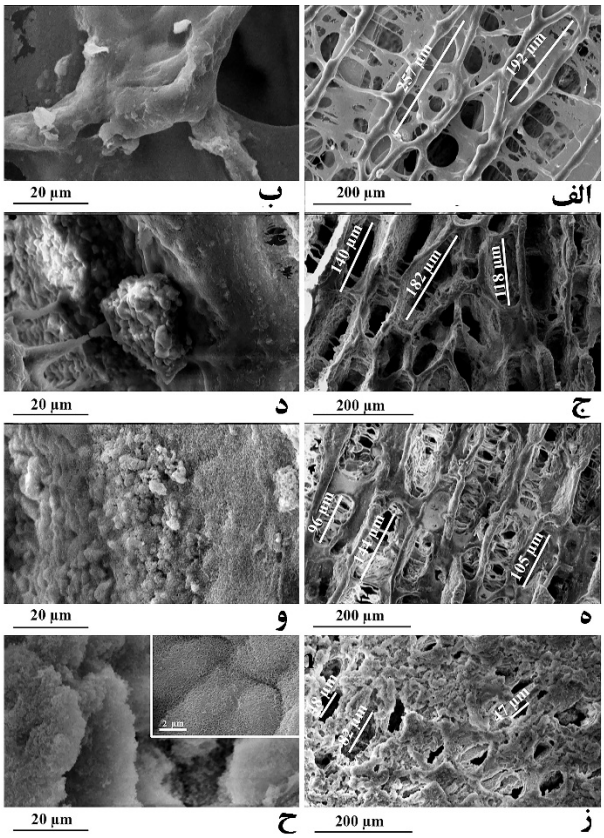
شکل ۳. الگوی FTIR داربست تهیه‌شده، قبل از غوطه‌وری و ۱۴ روز بعد از غوطه‌وری در SBF

۳-۲-۲- گروه‌های ساختاری

شکل ۳، طیف FTIR نمونه‌ها را قبل و بعد از ۱۴ روز غوطه‌وری، نشان می‌دهد. جذب ایجادشده در عدد موج‌های ۵۴۵، ۵۶۵ و cm^{-1} ۱۰۷۰، مربوط به گروه فسفات است که در هر دو نمونه دیده می‌شود. پیک ایجادشده در عدد موج cm^{-1} ۱۴۴۸، به کربنات کلسیم نسبت داده می‌شود که در داربست ساخته‌شده، با شدت زیاد، بعد از ۴۸ ساعت قرارگیری در حمام آبی، دیده می‌شود و ناشی از کربنات دوپ‌شده در شبکه هیدروکسی آپاتیت است. شانه ایجادشده در عدد موج cm^{-1} ۸۷۰، مربوط به کربنات جانشین‌شده در آپاتیت است که مؤید نکته فوق است و کربناتی‌بودن آپاتیت را تأیید می‌کند. ایجاد هیدروکسی آپاتیت، براثر غوطه‌ورکردن نمونه‌ها در SBF، با حضور پیک مربوط به OH موجود در شبکه هیدروکسی آپاتیت، در حوالی cm^{-1} ۳۵۵۰ نیز تأیید می‌شود [۲۸].

۳-۲-۳- ریزساختار

شکل ٤، تصاویر SEM داربست‌های متخلخل را قبل و بعد از غوطه‌وری در SBF، در دو بزرگ‌نمایی مختلف، نشان می‌دهد. تخلخل‌هایی که به‌صورت کانال به‌هم مرتبط هستند در تصاویر دیده می‌شوند. روش ریخته‌گری انجمادی، برای ایجاد ساختاری متخلخل با اندازه تخلخل چند صد میکرومتری، استفاده می‌شود. همان طور که فلش‌های روی تصاویر نیز نشان می‌دهند، اندازه تخلخل‌های به‌دست‌آمده به این روش توسط برنامه ImageJ، بین ۱۰۰ تا ۳۰۰ میکرومتر تخمین زده شد.



شکل ٤. تصاویر SEM داربست‌های نانوساختار ماکرومتخلخل: الف و ب) قبل از غوطه‌وری؛ ج و د) بعد از ۱ روز؛ ه و و) بعد از ۳ روز و ز و ح) بعد از ۱۴ روز غوطه‌وری در بزرگ‌نمایی‌های مختلف

قرارگیری نمونه‌ها در SBF و تشکیل آپاتیت روی سطح آن‌ها، باعث کاهش اندازه تخلخل‌ها شده است، به‌طوری که اندازه تخلخل در نمونه قبل از غوطه‌وری و بعد از ۱۴ روز غوطه‌وری، از حدود ۱۹۲ میکرومتر به ۴۸ میکرومتر رسیده است. در بزرگ‌نمایی بالاتر، ریخت‌شناسی سطح دیواره تخلخل‌های نمونه‌های مختلف در مقایسه با یکدیگر، نشان داده شده است. هیچ رسوب آپاتیتی، روی سطح داربست، قبل از غوطه‌وری در SBF، وجود ندارد. درحالی‌که تشکیل رسوب جزئی در شکل‌های ٤-د، ٤-و و ٤-ح دیده می‌شود که ریخت‌شناسی توپی شکل، گواه تشکیل رسوب آپاتیتی است [۲۹]. سرانجام، پس از ۷ روز غوطه‌وری، این رسوب آپاتیتی کامل می‌شود، به‌طوری که در بزرگ‌نمایی ۱۰۰۰۰ برابر (گوشه بالایی تصویر ٤-ح)، نانوبلورهای سوزنی‌شکل آپاتیت، قابل‌رؤیت هستند.

در همه نمونه‌ها، بعد از غوطه‌وری، ریزساختار توپی‌شکلی، شامل نانوبلورهایی که تنگاتنگ درهم پیچیده

شده‌اند، دیده می‌شود. این ریخت‌شناسی، مربوط به هیدروکسی آپاتیتی است که طی سازوکار حلالیت رسوب، روی سطح سیمان، به‌وجود می‌آید. در مایعات شبیه‌سازی‌شده بدن که ترکیب شیمیایی نمک معدنی مشابه پلاسمای خون انسان را دارد، جوانه‌زنی و رشد هیدروکسی آپاتیت نانومتریِ مشابه استخوان، در شرایط دما و pH فیزیولوژیک، روی می‌دهد. حضور این لایه آپاتیت کربناتی که توسط فرایندهای تقلید زیستی، روی مواد مختلف ایجاد می‌شود، تکثیر سلولی و نیز معدنی‌شدن را افزایش می‌دهد و اتصال قوی‌تری با استخوان پدید می‌آورد [۳۰ و ۳۱].

۳-۳- ویژگی‌های مکانیکی داربست‌های آپاتیتی نانوساختار ماکرومتخلخل

در جدول ۱، میانگین استحکام فشاری داربست‌های مختلف، بین ۱/۲ تا ۲/۲ مگاپاسکال گزارش شده است. مدت زمان غوطه‌وری در SBF، تأثیر معناداری در استحکام فشاری نداشته است؛ زیرا در تعیین استحکام فشاری این داربست‌ها، عوامل متعددی دخیل هستند. استحکام فشاری، به پارامترهای ساختاری زیادی بستگی دارد، از جمله: الف) جنس ماده، نوع و میزان چسب و پراکنده‌ساز استفاده‌شده؛ ب) ابعاد تخلخل‌ها به‌طوری که هرچه کانال‌ها باریک‌تر باشند، استحکام بیشتر است؛ ج) جهت و ریخت‌شناسی تخلخل‌ها و د) یکپارچگی ساختار و ابعاد بلورهای آپاتیت تشکیل‌شده.

استحکام کم این ساختارها می‌تواند به‌علت وجود عیوب ترک‌مانند در ساختار باشد. عیوب، به‌صورت عمود بر جهت انجماد قرار گرفته‌اند و حضور آن‌ها باعث کاهش استحکام می‌شود [۳۱].

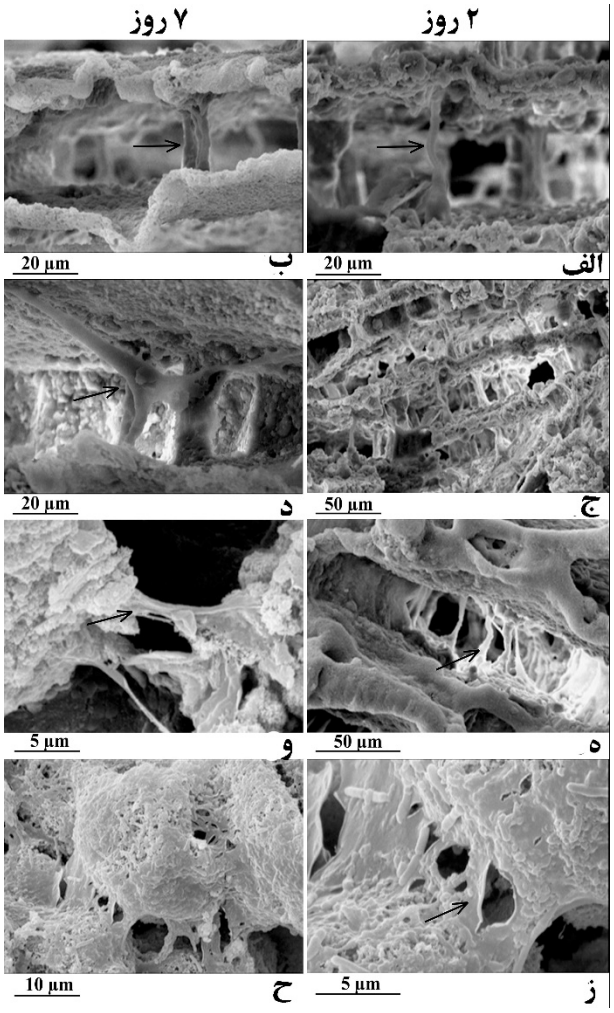
جدول ۱. ویژگی‌های مکانیکی داربست‌های مختلف

نمونه	استحکام فشاری (مگاپاسکال)
قبل از غوطه‌وری	۲/۲۲ ± ۰/۲
بعد از ۱ روز غوطه‌وری	۱/۲ ± ۰/۲
بعد از ۳ روز غوطه‌وری	۱/۱۶ ± ۰/۱
بعد از ۷ روز غوطه‌وری	۱/۴۱ ± ۰/۰۵
بعد از ۱۴ روز غوطه‌وری	۱/۳۳ ± ۰/۱

۴-۳- ویژگی‌های زیستی داربست‌های آپاتیتی نانوساختار ماکرومتخلخل

۱-۴-۳- ریخت‌شناسی سلولی

شکل ۵، تصاویر SEM سطح داربست‌های حاوی سلول، بعد از ۲ و ۷ روز از کشت را نشان می‌دهد. در این تصاویر، ریخت‌شناسی سلول‌های استخوانی، روی سطح نمونه دیده می‌شود. این سلول‌ها، به‌صورت دوکی‌شکل که با یک غشای سیتوپلاسمی پهن شده و بین دیواره‌های تخلخل‌ها پل زده‌اند، رؤیت می‌شوند [۲۸]. پژوهش‌ها نشان می‌دهد که این نوع ریخت‌شناسی، به‌سبب برهم‌کنش مناسب داربست و سلول، ایجاد می‌شود [۳۲].



شکل ۵. تصاویر SEM داربست‌های مختلف، بعد از ۲ و ۷ روز کشت سلول: الف و ب) نمونه قبل از غوطه‌وری؛ ج و د) نمونه بعد از ۱ روز غوطه‌وری؛ ه و و) نمونه بعد از ۳ روز غوطه‌وری و ز و ح) نمونه بعد از ۱۴ روز غوطه‌وری

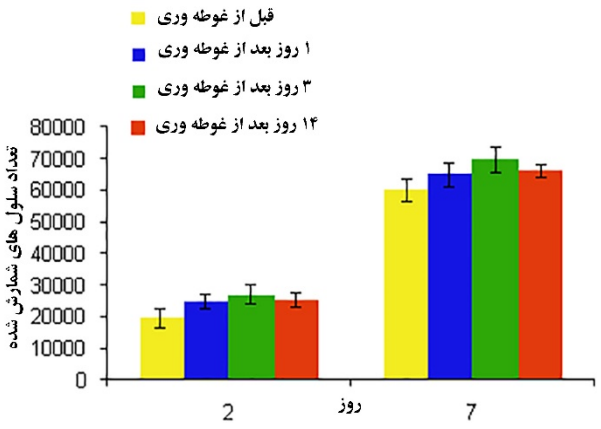
به‌نظر می‌رسد چسبندگی سلول، به‌دلیل ریخت‌شناسی خشن سطح و درگیرشدن زائده‌های سلول روی آن‌ها، پدید آمده باشد و حالت کشیده‌شدن سلول روی دیواره‌ها، حاکی از تمایل آن به سطح است که زیست‌سازگاری نمونه‌ها را نشان می‌دهد. این نتایج، حاکی از مناسب‌بودن نمونه‌ها از لحاظ سطحی و ترکیبی، برای رشد سلول‌هاست. سلول‌های پل‌زده بین دیواره‌های تخلخل‌ها، با فلش، نشان داده شده است.

در داربست‌هایی که آپاتیت نانوساختار روی دیواره‌های آن‌ها تشکیل شده است، ریخت‌شناسی توپی‌شکل و بلورهای سوزنی‌شکل آپاتیت، باعث چسبندگی بهتر سلولی در این نواحی شده است. دیواره‌های تخلخل‌ها، در داربست‌هایی که ۷ روز در محیط کشت قرار داده شده‌اند، تحت تأثیر رسوبات محیط کشت قرار گرفته و تغییر شکل داده‌اند. با گذشت زمان، هیدروکسی آپاتیت، روی غشاهای سلولی، تشکیل شده است. پدیده رسوب بلورهای آپاتیت طی فرایندهای هیدرولیز، در شکل‌گیری سلول‌ها و ریخت‌شناسی آن‌ها دخالت می‌کند. درواقع، طی ۷ روز نگهداری نمونه‌های حاوی سلول در محیط کشت، همزمان با رشد سلولی و تکثیر آن‌ها، رسوب‌دهی بلورهای آپاتیتی نیز رخ داده است و گویی سلول‌ها در زیر لایه‌های آپاتیتی قرار گرفته‌اند (شکل ۵-ح).

ساختار سرامیک‌های متخلخل به‌دست‌آمده از روش ریخته‌گری انجمادی، بسیار شبیه به زیست‌ماده‌ای مانند استخوان است. درنتیجه، از این زیست‌ماده، در مهندسی بافت، بسیار استفاده می‌شود. مشکلات ایجادشده در کاشتنی‌ها، معمولاً، به‌دلیل پیوند ضعیف آن‌ها با استخوان است. برای تثبیت کاشتنی‌های ارتوپدی و دندانی در محل استخوان و کاهش صدمات ناشی از حرکت کاشتنی‌ها و همچنین افزایش بازدهی کاشتنی‌ها، هم‌بندی مطلوب با استخوان، مورد نیاز است. نبودن پیوند مناسب بین استخوان و کاشتنی، می‌تواند ناشی از خواص سطحی ماده باشد که رشد استخوان را ترویج نمی‌کند. به همین دلیل، طراحی و ساخت زیست‌ماده‌ای که سطح آن، باعث ترویج رشد استخوان شود از اهداف نسل آینده کاشتنی‌های ارتوپدی و دندانی است. در مقایسه با زی‌سرامیک‌های سنتی، هیدروکسی آپاتیت نانومتری، چسبندگی سلول‌های استخوان‌ساز را افزایش می‌دهد. البته، چسبندگی سلول‌های استخوان‌ساز به سطح مواد، به‌تنهایی، برای دستیابی به هم‌بندی بلندمدت و مناسب با استخوان کافی نیست و عملکرد بعدی این سلول‌ها نیز اهمیت بسیاری دارد. نتایج پژوهش‌ها، افزایش تکثیر سلول‌های استخوان‌ساز، سنتز فسفات‌های قلیایی و تغلیظ مواد حاوی کلسیم روی آلومینا تیتانیا و هیدروکسی آپاتیت نانومتری را در مقایسه با انواع میکروساختار این مواد، نشان می‌دهد [۳۳].

۲-٤-۳- تکثیر سلولی

شکل ٦، نشان‌دهنده تعداد سلول‌های شمارش‌شده روی سطح نمونه‌ها، پس از ۲ و ۷ روز کشت است. همان طور که ملاحظه می‌شود در تمام نمونه‌ها، با گذشت زمان، تعداد سلول‌های روی سطح، افزایش می‌یابد، به‌طوری که در پایان روز هفتم، این مقدار، تقریباً سه برابر تعداد سلول‌های کشت‌شده در روز دوم است. این امر، نشان می‌دهد که ترکیب ماده مورد نظر، سمّیت ندارد. بین تعداد سلول‌های کشت‌شده قبل و بعد از غوطه‌وری، تفاوت معناداری مشاهده نمی‌شود.



شکل ٦. تعداد سلول‌های شمارش‌شده روی سطح داربست‌ها، پس از روزهای مختلف کشت

٤- نتیجه‌گیری

روش ریخته‌گری انجمادی، روشی مناسب برای تولید داربست‌های ماکرومتخلخل است. از آنجایی که این فرایند برپایه واکنش‌های فیزیکی، نه شیمیایی است، می‌تواند برای کاربردهای زیست‌مواد، از جمله کلسیم فسفات‌ها، توسعه داده شود. در این پژوهش، بلورهای نانومتری فاز آپاتیت، روی سطح نمونه‌های کلسیم فسفاتی، بعد از قرارگیری در محیط فیزیولوژیک، تشکیل شد. کنترل اندازه تخلخل‌ها و ناصافی

سطح دیواره‌ها، به چسبندگی سلولی کمک کرد. اگر کنترل مناسبی بر فرایند انجام شود، حتی استحکام فشاری مواد ذاتاً ضعیفی مانند کلسیم فسفات‌ها نیز، نسبتاً، بهبود خواهد یافت. استفاده از ذراتی با اندازه دانه زیر میکرون، پراکنده‌ساز و چسب PVA، باعث ایجاد سوسپانسیونی پایدار از پودر سیمان کلسیم فسفات شد. سطح آپاتیتی دیواره‌های تخلخل‌ها، چسبندگی سلولی را بهبود بخشید. وجود تخلخل‌هایی در مقیاس چند صد میکرومتر و نانوبلورهای سوزنی آپاتیت، تشکیل داربست نانوساختار ماکرومتخلخل آپاتیتی را تأیید کرد. نتایج آزمون‌های بیولوژیکی، حاکی از مناسب‌بودن نمونه‌ها، از لحاظ سطحی (نقشه‌برداری[1] سطح برای چسبندگی سلول) و ترکیبی (سمّی نبودن)، برای رشد سلول‌ها بود.

۵- سپاسگزاری

نگارندگان بر خود لازم می‌دانند از مسئولان آزمایشگاه زیست‌مواد پژوهشگاه مواد و انرژی، به‌دلیل فراهم آوردن تجهیزات لازم برای انجام این پژوهش، تشکر کنند.

مراجع

1. Jarcho, M., "Calcium phosphates ceramics as hard tissue prosthetics", ***Classic Papers in Orthopaedics***, Vol. 157, (1981), 259-278. https://doi.org/10.1097/00003086-198106000-00037
2. De Groot, K., Ducheyne, P., "In vivo surface activity of a hydroxyapatite alveolar bone substitute", ***Journal of Biomedical Materials Research***, Vol. 15, No. 3, (1981), 441-445. https://doi.org/10.1002/jbm.820150315
3. Teixeira, S., Queiroz, A. C., Monteiro, F. J., Ferraz, M. P., Vilar, R., Eugenio, S., "Osteoblast proliferation and morphology analysis on laser modified hydroxyapatite surfaces: Preliminary results", ***Key Engineering Materials***, Vol. 309-311, (2006), 105-108. https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/KEM.309-311.105
4. Santos, E. A., Farina, M., Soares, G. A., "Specific proliferation rates of human osteoblasts on calcium phosphate surfaces with variable concentrations of α-TCP", ***Materials Science and Engineering C***, Vol. 27, No. 1, (2007), 61-66. https://doi.org/10.1016/j.msec.2006.02.003
5. Webster, T. J., Siegel, R. W., Bizios, R., "Enhanced functions of osteoblasts on nanophase ceramics", ***Biomaterials***, Vol. 21, No. 17, (2000), 1803-1810. https://doi.org/10.1016/S0142-9612(00)00075-2
6. Salyer, K. E., Hall, C. D., "Porous hydroxyapatite as an onlay bone graft substitute for maxillofacial surgery", ***Plastic and Reconstructive Surgery***, Vol. 84, No. 2, (1989), 236-244. https://doi.org/10.1097/00006534-198908000-00008
7. Merritt, K., Shafer, J. W., Brown, S. A., "Implant site infection rate with porous and dense materials", ***Journal of Biomedical Material Research***, Vol. 13, No. 1, (1979), 101-108. https://doi.org/10.1002/jbm.820130111
8. De Groot, K., "Effect of porosity and physicochemical properties on the stability, resorption and strength of calcium phosphate ceramics", ***Annals of the New Acadamy of Sciences***, Vol. 523, No. 1, (1988), 227-233. https://doi.org/10.1111/j.1749-6632.1988.tb38515.x
9. Xu, H. H., Quinn, J. B., Takagi, S., Chow, L. C., Eichmiller, F. C., "Strong and macroporous calcium phosphate cement: Effects of porosity and fiber reinforcement on mechanical properties", ***Journal of Biomedical Materials Research***, Vol. 57, No. 3, (2001), 457-466. https://doi.org/10.1002/1097-4636(20011205)57:3<457::AID-JBM1189>3.0.CO;2-X
10. Takagi, S., Chow, L. C., "Formation of macropores in calcium phosphate cement implant", ***Journal of material Science Material Medicine***, Vol. 12, No. 2, (2001), 135-139. https://doi.org/10.1023/A:1008917910468
11. Landi, E., Valentini, F., Tampieri, A., "Porous hydroxyapatite/gelatine scaffolds with ice-designed channel-like porosity for biomedical applications", ***Acta Biomaterialia***, Vol. 4, No. 6, (2008), 1620-1626. https://doi.org/10.1016/j.actbio.2008.05.023
12. Munch, E., Franco, J., Deville, S., Hunger, P., Saiz, E., Tomsia, A. P., "Porous ceramic scaffolds with complex architectures", ***The Journal of The Minerals, Metals & Materials Society***, Vol. 60, No. 6, (2008), 54-58. https://doi.org/10.1007/s11837-008-0072-5
13. Waschkies, T., Oberacker, R., Hoffmann, M. J., "Investigation of structure formation during freeze-casting from very slow to very fast solidification velocities", ***Acta Materialia***, Vol. 59, No. 13, (2011), 5135-5145. https://doi.org/10.1016/j.actamat.2011.04.046
14. Araki, K., Halloran, J. W., "Room-temperature freeze casting for ceramics with nonaqueous sublimable vehicles in the naphthalene–camphor eutectic system", ***Journal of American Ceramic Society***, Vol. 87, No. 11, (2004), 2014-2019. https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.2004.tb06353.x
15. Hesaraki, S., Zamanian, A., Moztarzadeh, F., "Effect of adding sodium hexametaphosphate liquefier on basic properties of calcium phosphate cements", ***Journal of Biomedical Materials Research Part A***, Vol. 88, No. 2, (2009), 314-321. https://doi.org/10.1002/jbm.a.31836
16. Deville, S., "Freeze-casting of porous ceramics: A review of current achievements and issues", ***Advanced Engineering Materials***, Vol. 10, No. 3, (2008), 155-169. https://doi.org/10.1002/adem.200700270
17. Farhangdoust, S., Zamanian, A., Yasaei, M., Khorami, M., "The effect of processing parameters and solid concentration on the mechanical and microstructural properties of freeze-casted macroporous hydroxyapatite scaffolds", ***Materials Science and Engineering C***, Vol. 33, No. 1, (2013), 453-460. https://doi.org/10.1016/j.msec.2012.09.013
18. Liu, R., Xu, T., Wang, C., "A review of fabrication strategies and applications of porous ceramics prepared by freeze-casting method", ***Ceramics International***, Vol. 42, No. 2, (2016), 2907-2925. https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2015.10.148
19. Ginebra, M. P., Espanol, M., Montufar, E. B., Perez, R. A., Mestres, G. "New processing approaches in calcium phosphate cements and their applications in regenerative medicine", ***Acta Biomaterial***, Vol. 6, No. 8, (2010), 2863-2873. https://doi.org/10.1016/j.actbio.2010.01.036
20. Sariibrahimoglu, K., Wolke, J. G., Leeuwenburgh, S. C., Yubao, L., Jansen, J. A., "Injectable biphasic calcium phosphate cements as a potential bone substitute", ***Journal of Biomedical Material Research B Applied Biomaterial***, Vol. 102, No. 3, (2014), 415-422. https://doi.org/10.1002/jbm.b.33018
21. Grover, L. M., Wright, A. J., Gbureck, U., "The effect of amorphous pyrophosphate on calcium phosphate cement resorption and bone generation", ***Biomaterials***, Vol. 34, No. 28, (2013), 6631-6637. https://doi.org/10.1016/j.biomaterials.2013.05.001
22. Zhang, J., Liu, W., Schnitzler, V., Tancret, F., Bouler, J. M., "Calcium phosphate cements for bone substitution: Chemistry, handling and mechanical properties", ***Acta Biomaterial***, Vol. 10, No. 3, (2014), 1035-1049. https://doi.org/10.1016/j.actbio.2013.11.001
23. Deville, S., Saiz, E., Tomsia, A. P., "Freeze casting of hydroxyapatite scaffolds for bone tissue engineering",

[1] Topography

of Biomedical Material Research Part B: Applied Biomaterial, Vol. 102, No. 1, (2014), 108-118. https://doi.org/10.1002/jbm.b.32987

29. Borhan, S., Hesaraki, S., Behnamghader, A. A., Ghasemi, E., "Rheological evaluations and in vitro studies of injectable bioactive glass–polycaprolactone–sodium alginate composites", ***Journal of Materials Science: Materials in Medicine***, Vol. 27, No. 9, (2016), 1-15. https://doi.org/10.1007/s10856-016-5745-y
30. Abdollahi, E., Bakhsheshi-Rad, H., "Evaluation of mechanical properties and apatite formation of synthesized fluorapatite-hardystonite nanocomposite scaffolds", ***Advanced Ceramic Progress***, Vol. 4, No. 3-4, (2018), 8-15. https://doi.org/10.30501/acp.2018.92930
31. Akbarpour, S., Karbasi, S., "Evaluation of physical and mechanical properties of hydroxyapatite/titanium dioxide composite scaffold for tissue engineering applications", ***Journal of Advanced Materials and Technologies (JAMT)***, Vol. 3, No. 3, (1393), 17-26. https://doi.org/10.30501/jamt.2635.70268
32. Nezafati, N., Farokhi, M., Heydari, M., Hesaraki, S., Ahmadi Nasab, N., "In vitro bioactivity and cytocompatablity of an injectable calcium phosphate cement/silanated gelatin microsphere composite bone cement", ***Composites Part B: Engineering***, Vol. 175, (2019), 107146. https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2019.107146
33. Deville, S., "Freeze-casting of porous biomaterials: Structure, properties and opportunities", ***Materials***, Vol. 3, No. 3, (2010), 1913-1927. https://doi.org/10.3390/ma3031913

Biomaterials, Vol. 27, No. 32, (2006), 5480-5489. https://doi.org/10.1016/j.biomaterials.2006.06.028

24. Kokubo, T., Kushitani, H., Sakka, S., Kitsugi, T., Yamamuro, T., "Solutions able to reproduce in vivo surface-structure changes in bioactive glass-ceramic A-W", ***Journal of Biomedical Materials Research***, Vol. 24, No. 6, (1990), 721-734. https://doi.org/10.1002/jbm.820240607
25. Tondaturo, C., Gentile, P., Saracino, S., Chiono, V., Nandagiri, V. K., Muzio, G., Canuto, R. A., Ciardelli, G., "Comparative analysis of gelatin scaffolds crosslinked by genipin and silane coupling agent", ***International Journal of Biological Macromolecules***, Vol. 49, No. 4, (2011), 700-706. https://doi.org/10.1016/j.ijbiomac.2011.07.002
26. Nadeem, D., Kiamehr, M., Yang, X., Su, B., "Fabrication and in vitro evaluation of a spongelike bioactive-glass/gelatin composite scaffold for bone tissue engineering", ***Materials Science and Engineering: C***, Vol. 33, No. 5, (2013), 2669-2678. https://doi.org/10.1016/j.msec.2013.02.021
27. Barabadi, Z., Azami, M., Sharifi, E., Karimi, R., Lotfibakhshaiesh, N., Roozafzoon, R., Joghataei, M. T., Ai, J., "Fabrication of hydrogel based nanocomposite scaffold containing bioactive glass nanoparticles for myocardial tissue engineering", ***Materials Science and Engineering: C***, Vol. 69, (2016), 1137-1146. https://doi.org/10.1016/j.msec.2016.08.012
28. Hesaraki, S., Nazarian, H., Pourbaghi-Masouleh, M., Borhan, S., "Comparative study of mesenchymal stem cells osteogenic differentiation on low-temperature biomineralized nanocrystalline carbonated hydroxyapatite and sintered hydroxyapatite", ***Journal***

فصلنامه مواد و فناوری‌های پیشرفته

Journal Homepage: www.jamt.ir

مقاله کامل پژوهشی

اثر روش آماده‌سازی سطح زیرلایه فولاد زنگ‌نزن ۳۰۴ بر فرایند پوشش‌دهی پلیمرهای رسانای پلی‌پیرول/پلی‌آنیلین و بهبود مقاومت به خوردگی

نیوشا پناهی [۱]، محمدرضا افشارمقدم زنجانی [۲*]، هادی عادل‌خانی [۳]

[۱] کارشناسی ارشد خوردگی و حفاظت مواد، گروه مهندسی مواد، دانشکده فنی و مهندسی، واحد علوم و تحقیقات، دانشگاه آزاد اسلامی، تهران، تهران، ایران

[۲] استادیار، گروه مهندسی مواد، دانشکده فنی و مهندسی، واحد علوم و تحقیقات، دانشگاه آزاد اسلامی، تهران، تهران، ایران

[۳] دانشیار، پژوهشکده چرخه سوخت هسته‌ای، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، تهران، تهران، ایران

تاریخچه مقاله:

ثبت اولیه: ۱۳۹۹/۰۶/۱۱

دریافت نسخهٔ اصلاح‌شده: ۱۳۹۹/۰۸/۰۳

پذیرش قطعی: ۱۴۰۰/۰۶/۱۶

کلیدواژه‌ها:

پوشش پلیمری،

پلیمر رسانا،

پلی‌پیرول،

پلی‌آنیلین،

فولاد زنگ‌نزن ۳۰۴

چکیده در این پژوهش، تأثیر آماده‌سازی سطح زیرلایه فولاد زنگ‌نزن ۳۰۴، بر فرایند پوشش‌دهی پلیمرهای رسانای پلی‌پیرول/پلی‌آنیلین و نیز مقاومت به خوردگی در حضور پوشش، بررسی شد. آماده‌سازی سطح زیرلایه فولاد زنگ‌نزن ۳۰۴ به روش‌های الکتروپولیش، سنباده دستی و سندبلاست انجام شد. از میکروسکوپ نیروی اتمی (AFM)، میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) و دستگاه زبری‌سنجی (Roughness Tester) برای بررسی ریخت‌شناسی سطح نمونه‌ها استفاده شد. فرایند پوشش‌دهی پلیمرهای رسانای دولایه‌ای پلی‌پیرول/پلی‌آنیلین به‌مدت ۹۰۰ ثانیه با تکنیک پتانسیواستات در ولتاژ ۹۰۰+ میلی‌ولت انجام شد. مطالعات خوردگی، با استفاده از آزمون‌های امپدانس الکتروشیمیایی و پلاریزاسیون پتانسیودینامیکی، در محلول ۳/۵ درصد وزنی سدیم کلرید انجام شد. بر اساس نتایج آزمون پول-آف (pull-off)، با آماده‌سازی سطح به روش سنباده دستی، حداکثر چسبندگی پوشش به زیرلایه، با مقدار تنش کششی ۰/۶۷ مگاپاسکال، حاصل شد. زیرلایه آماده‌شده به این روش، با مشخصات مقاومت پلاریزاسیون ۱۸۴۲۸ اهم سانتی‌متر مربع، چگالی جریان خوردگی $۱/۷۸ \times ۱۰^{-۷}$ آمپر بر سانتی‌متر مربع و پتانسیل ۰/۰۸۰- ولت نسبت به الکترود استاندارد کالومل، بهترین رفتار خوردگی را نشان داد.

https://doi.org/10.30501/jamt.2021.244156.1117 URL: https://www.jamt.ir/article_126418.html

Original Research Article

Journal of Advanced Materials and Technologies (JAMT): Vol. 10, No. 2, (Summer 2021), 33-44

The Effect of 304 Stainless Steel Substrate Surface Preparation Method on Coating Process of Polypyrrole/Polyaniline Conductive Polymers and Corrosion Resistance Improvement

Niyoosha Panahi [1], M.Reza Afshar [2*], Hadi Adelkhani [3]

[1] *M. Sc. of Corrosion and Protection of Materials, Department of Materials Engineering, Faculty of Engineering, Science and Research Branch, Islamic Azad University, Tehran, Tehran, Iran*

[2] *Assistant Professor, Department of Materials Engineering, Faculty of Engineering, Science and Research Branch, Islamic Azad University, Tehran, Tehran, Iran*

***عهده دار مکاتبات**

نشانی: ایران، تهران، تهران، دانشگاه آزاد اسلامی، واحد علوم و تحقیقات، دانشکده فنی و مهندسی، گروه مهندسی مواد، **تلفن:** ۰۲۱-۴۴۸۶۸۴۰۳، **دورنگار:** ۰۲۱-۴۴۸۶۸۴۰۵

پیام نگار: mafshar@srbiau.ac.ir

Please cite this article as: Panahi, N., Afshar, M. R., Adelkhani, H., "The effect of 304 stainless steel substrate surface preparation method on coating process of polypyrrole/polyaniline conductive polymers and corrosion resistance improvement", ***Journal of Advanced Materials and Technologies (JAMT)***, Vol. 10, No. 2, (2021), 33-44. (https://doi.org/10.30501/jamt.2021.244156.1117).

2783-0829/© 2021 The Author(s). Published by MERC.

This is an open access article under the CC BY license (https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/).

[3] *Associate Professor, Nuclear Fuel and Materials Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute (NSTRI), Tehran, Tehran, Iran*

Paper History:
Received: 2020-09-01
Revised in revised form: 2020-10-24
Accepted: 2021-09-07

Keywords:
Polymer Coating,
Conductive Polymer,
Polypyrrole,
Polyaniline,
304 Stainless Steel

Abstract In this study, the effect of substrate surface preparation on the polypyrrole/polyaniline conductive polymers coating process and corrosion resistance in the presence of coating has been investigated. The preparation of the 304 stainless steel substarate was done by electropolishing, manual grinding, and sandblasting. Atomic force microscopy (AFM), scanning electron microscopy (SEM), and roughness tester have been used to investigate the surface morphology. The coating process for polypyrrole/polyaniline conductive polymers were carried out over a period of 900 seconds with potentiostat technique at a voltage of +900 mV. Based on pull-off test results, the most adherent coating belonged to manual grinded sample with 0.67 MPa tensile stress. According to the results of electrochemical impedance test and polarization of potentiodynamics after one hour immersion in a solution of 3.5 wt % sodium chloride, the substrate prepared by manual grinding had the highest polarization resistance of 18428 $\Omega.cm^2$, the least corrosion current density of 1.76×10^{-7} A/cm^2, and the highest potential of -0.080 V vs. SCE.

https://doi.org/10.30501/jamt.2021.244156.1117 URL: https://www.jamt.ir/article_126418.html

۱- مقدمه

از دهه هشتاد میلادی تا امروز، پلیمرهای رسانا، به‌دلیل دارا بودن ویژگی‌هایی نظیر هدایت الکتریکی و سهولت سنتز شیمیایی، همواره یکی از پرطرفدارترین مواد مقاوم به خوردگی شناخته شده‌اند. گونه‌های مختلف این پلیمرها به‌صورت تجاری عرضه شده‌اند که از جمله آن‌ها می‌توان به پلی‌آنیلین[1]، پلی‌پیرول[2]، پلی‌تیوفن[3] و پلی‌کربازول[4] اشاره کرد. نخستین‌بار، پوششی از پلی‌آنیلین و مشتقات آن در سطوح فولادی ایجاد شده است و امروزه، امکان قراردادن این پلیمرها به‌صورت پوشش روی سطح فلزات مختلف وجود دارد. در خصوص به‌کارگیری پلیمرهای رسانا به‌منزله پوشش‌های مقاوم در برابر خوردگی، مطالعات زیادی انجام شده است و اغلب تأکید بر بهبود مقاومت به خوردگی داشته‌اند. برای مثال، ایجاد پوشش پلی‌آنیلین در سطح فولاد زنگ‌نزن ٤۰۰ در محلول سولفوریک اسید، باعث باقی‌ماندن پتانسیل سطح فولاد در منطقه روئین شده و به‌دلیل پایداری مناسب این پوشش، زیرلایه حفاظت می‌شود و مقاومت به خوردگی افزایش می‌یابد [٦-۱]. پلیمرهای رسانا را می‌توان، به‌منزله پوشش آستری[5]، به‌تنهایی یا همراه یک لایه فوقانی اصلی به‌کار برد. همچنین، پلیمرهای رسانا، به‌منزله جزء بهبوددهنده مقاومت به خوردگی، به پوشش‌های دیگر اضافه می‌شوند [۷ و ۸]. مطالعات نشان داده است که عملکرد مقاومت به خوردگی پوشش‌های پلیمرهای رسانا، در محیط‌های خورنده، مشابه پوشش‌های مرسوم ساخته‌شده از کروم شش ظرفیتی (Cr^{6+}) است، با این تفاوت که پوشش‌های پلیمری، خطرات زیست‌محیطی ناشی از Cr^{6+} را ندارند [۹].

نتایج قراردادن پوششی از پلی‌آنیلین در محیط نیتریک اسید روی فولاد زنگ نزن ٤۳۰ نشان داد که هم‌زمان با ایجاد پوشش پلیمری، لایه اکسیدی متراکمی در فصل مشترک پلیمر با فلز، در زمان لایه‌نشانی، به‌وجود می‌آید که باعث بهبود مقاومت به خوردگی زیرلایه فولادی می‌شود [۱۰]. پلی‌آنیلین را به‌منزله محافظت‌کننده از خوردگی میلگردهای فولادی موجود در بتن مسلح نیز استفاده می‌کنند [۱۱].

قراردادن پوشش پلی‌پیرول روی فولاد زنگ‌نزن ۳۱٦L، به‌منظور جلوگیری از خوردگی در دو محلول اسیدی و خنثی کلریدی، بر قابلیت پلی‌پیرول (به‌منزله پلیمر رسانا)، در جلوگیری از خوردگی زیرلایه‌های فلزی به‌ویژه فولادها، تأکید دارد [۱۲]. همچنین، ایجاد پوششی از پلی‌پیرول در سطح فولاد نرم، به روش الکتروشیمیایی، باعث بهبود مقاومت به خوردگی می‌شود. در پوشش پلی‌پیرول، علاوه بر این‌که پوشش به‌صورت مانعی فیزیکی در مقابل عوامل خورنده و آنیون‌های مهاجم عمل می‌کند، پلی‌پیرول، قابلیت انتقال پتانسیل فلز به محدوده‌هایی را دارد که نرخ خوردگی فلز در آن کمتر است [۹ و ۱۳].

مقایسه دو پوشش پلیمری پلی‌آنیلین و پلی‌پیرول نشان می‌دهد که پلی‌پیرول چسبندگی بهتری با زیرلایه فولادی دارد و پلی‌آنیلین مقاومت به خوردگی بالاتری را نشان می‌دهد [۱٤]. بنابراین، به استفاده از پوشش‌های دولایه متشکل از این دو پلیمر (برای استفاده از مزایای هر دو پلیمر) توجه شده است. مقایسه مقاومت به خوردگی پوشش دولایه متشکل از پلی‌آنیلین و پلی‌پیرول و پوشش تک‌لایه هریک این پلیمرها نشان می‌دهد که پوشش دولایه، مقاومت بیشتری در برابر

[1] Polyaniline (PANI)
[2] Polypyrrole (PPy)
[3] Polythiophene (PTh)
[4] Polycarbazole
[5] Primer

آنیون‌های مهاجم (مخصوصاً یون کلر) دارد. بررسی عملکرد پوشش دولایه پلی‌پیرول/پلی‌آنیلین قرارگرفته در سطح فولاد ۳۰٤ مشخص کرده است که این پوشش، باعث افزایش ۵۰۰ میلی‌ولت پتانسیل خوردگی و پتانسیل حفره‌دارشدن می‌شود. همچنین، این پوشش سبب افزایش پتانسیل خوردگی زیرلایه مسی، تا ۲۵۰ میلی‌ولت می‌شود [۱۵].

هنگام پوشش‌دهی پلیمرهای رسانا، همانند سایر فرایندهای پوشش‌دهی، عملیات آماده‌سازی سطح زیرلایه، قبل از پوشش‌دهی، اهمیت بسیاری در چسبندگی و کارآمدی پوشش دارد. این عملیات برای از بین‌بردن آلودگی‌های سطحی و ایجاد سطوحی یکنواخت و مشابه انجام می‌شود. فرایندهای آماده‌سازی شامل روش‌های فیزیکی (سنباده‌زنی و سندبلاست) و شیمیایی (اچ‌کردن، پولیش شیمیایی و الکتروپولیش) است [۱ و ۹]. در این پژوهش، پوشش دولایه متشکل از پلیمرهای رسانای پلی‌پیرول و پلی‌آنیلین، روی سطح فولاد زنگ نزن ۳۰٤، با هدف بررسی تأثیر آماده‌سازی سطح زیرلایه قبل از پوشش‌دهی، بر میزان مقاومت به خوردگی و چسبندگی آن به زیرلایه، نشانده شده است و پس از انجام آزمون‌های پلاریزاسیون و امپدانس الکتروشیمیایی و همچنین آزمون چسبندگی (pull-off)، مقادیر مهمی، نظیر جریان خوردگی و پتانسیل مربوط به آن و تنش کششی لازم برای جدایش پوشش، گزارش شده‌اند.

۲- روش تحقیق

در این پژوهش، ورق فولاد زنگ‌نزن ۳۰٤، به ضخامت ۱ میلی‌متر در ابعاد ۳۰ × ۳۰ میلی‌متر، به‌منزله زیرلایه انتخاب شد. آماده‌سازی سطح زیرلایه با سه روش الکتروپولیش، سنباده دستی و سندبلاست انجام شد. الکتروپولیش در محلولی حاوی سولفوریک اسید ۹۸ درصد و ارتوفسفریک اسید ۸۵ درصد، با نسبت برابر، در دمای ۷۵ درجه سلسیوس به‌مدت ٤ دقیقه و با اعمال چگالی جریان ۰/۹ آمپر بر سانتی‌متر مربع توسط یکسوکننده مگاتک[1] (مدل Mp3003)، در حضور کاتد مسی، انجام شد و نمونه‌ها با عنوان EP نام‌گذاری شدند [۱٦]. در روش سنباده دستی، به‌ترتیب، از سنباده‌های با زبره[2] ٤۰۰، ٦۰۰، ۸۰۰، ۱۰۰۰ و ۱۲۰۰ برای آماده‌سازی سطح استفاده شد و نمونه‌ها با عنوان G نام‌گذاری شدند. سندبلاست نمونه‌ها، به کمک سندبلاستر[3] (مدل Pars Medical) در حضور ذرات آلومینا با قطر ۲۵۰ میکرومتر با فشار ۵ بار و مدت زمان ۳ دقیقه، انجام شد و نمونه‌ها با نام SB نام‌گذاری شدند. آزمون زبری‌سنجی سطح با استفاده از مدل T1000 از شرکت Hommel Etamic انجام و نتایج اندازه‌گیری، بر اساس استاندارد ISO 4287، گزارش شد [۱۷]. برای بررسی ریخت‌شناسی سطوح نیز از میکروسکوپ نیروی اتمی AFM مدل Park Scientific Instruments- Cp Auto probe، در حالت[4] کاری تماسی[5]، استفاده شد. شایان ذکر است که ابعاد سطح روبش‌شده در هر تصویر، برای هر نمونه، ۱ × ۱ میکرون بوده است. همه نمونه‌ها قبل از پوشش‌دهی، در حمام فراصوت[6] حاوی استون و اتانول در دمای ۲۵ درجه سلسیوس، به‌مدت ۲۰ دقیقه، چربی‌زدایی، شست‌وشو و سپس خشک شدند. در پوشش‌دهی پلی‌پیرول، به‌منزله لایه اول، از محلولی حاوی اگزالیک اسید ۰/۳ مولار و پیرول ۰/۱ مولار و روش الکتروپلیمریزاسیون استفاده شد. در این روش، پیل الکتروشیمیایی، از یک الکترود پلاتینی در نقش کاتد، نمونه فولادی در نقش آند و یک الکترود مرجع کالومل اشباع[7] (SCE) تشکیل شده است. الکتروپلیمریزاسیون به روش پتانسیواستات و به کمک دستگاه پتانسیواستات مدل EG&G273A، در پتانسیل ۰/۹ ولت نسبت به الکترود کالومل، برای پوشش‌دهی در مدت زمان ۱۵ دقیقه انجام شد. در پایان، پوششی به رنگ قهوه‌ای تیره روی نمونه‌های فولادی ظاهر شد و پوشش‌های مذکور، به‌منظور خشک‌شدن کامل، به‌مدت ۵ روز در مجاورت هوای آزاد قرار داده شدند. ایجاد پوشش پلی‌آنیلین، به‌منزله لایه دوم، کاملاً مشابه روند ذکرشده در لایه اول است. پلی‌آنیلین نیز در محلول متشکل از اگزالیک اسید ۰/۳ مولار و پیرول ۰/۱ مولار، با استفاده از تکنیک پتانسیواستات در پتانسیل مثبت ۰/۹ ولت و مدت زمان ۱۵ دقیقه، روی لایه اول، ایجاد شد و درنهایت، لایه‌ای به رنگ

[1] Megatec
[2] Grit
[3] Sand Blaster
[4] Mode
[5] Contact
[6] Ultrasonic
[7] Saturated Calomel Electrode

سبز بسیار تیره مایل به سیاه، روی لایه اول تشکیل شد. به‌منظور بررسی ریخت‌شناسی و تعیین ضخامت پوشش‌ها، از میکروسکوپ الکترونی روبشی[1] (SEM) Cambridge مدل S-360 استفاده شد. بررسی میزان چسبندگی پوشش‌های اعمال شده روی نمونه‌ها، به روش Pull-Off و با دستگاه مدل PosiTest AT-Automatic، مطابق استاندارد ASTM D4541، انجام شد [۱۸]. میزان مقاومت به خوردگی نمونه‌های دارای پوشش‌های دولایه پلیمری که آماده‌سازی سطح آن‌ها به روش‌های الکتروپولیش، سنباده دستی و سندبلاست انجام شده، با آزمون پلاریزاسیون و امپدانس الکتروشیمیایی و به‌وسیله دستگاه پتانسیواستات مدل EG&G273A تعیین شد. این آزمون، پس از یک ساعت غوطه‌وری نمونه‌ها در محلول ۳/۵ درصد سدیم کلرید، انجام شد. آزمون امپدانس الکتروشیمیایی، در محدوده فرکانس ۱۰ میلی‌هرتز تا ۱۰۰ کیلوهرتز و با دامنه موج ولتاژ جریان متناوب (AC) برابر با ۱۰ میلی‌ولت انجام شد. آزمون پلاریزاسیون به کمک الکترود SCE و الکترود پلاتینی، در محدوده ولتاژ ۰/۵- ولت تا ۰/۵+ ولت با نرخ روبش ۱ میلی‌ولت در ثانیه انجام شد.

۳- نتایج و بحث

۳-۱- بررسی زبری سطح

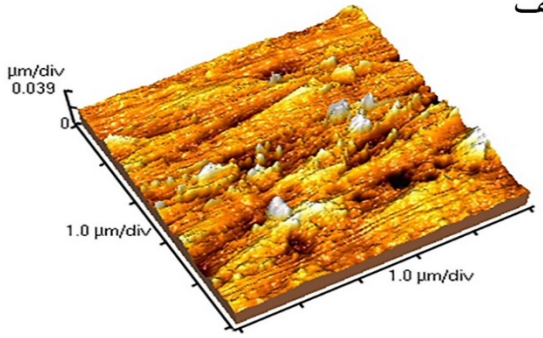
نتایج حاصل از آزمون زبری‌سنجی سطح نمونه‌های آماده‌شده به روش‌های الکتروپولیش (EP)، سنباده دستی (G) و سندبلاست (SB) در جدول ۱ ارائه شده است. زبری سطح (R_a) بیانگر میانگین اختلاف ارتفاع قله‌ها از فرورفتگی‌های سطح است. مقایسه نتایج زبری‌سنجی نمونه‌های سنباده‌زده‌شده، الکتروپولیش‌شده و سندبلاست نشان می‌دهد که بیشترین زبری، به سطح سندبلاست شده با R_a = ۰/۹۳ و کمترین زبری، به نمونه سنباده‌زده شده با مقدار R_a = ۰/۰٤ تعلق دارد. علت بیشتربودن زبری نمونه SB را می‌توان برخورد تصادفی و نامنظم ذرات آلومینا با سطح نمونه سندبلاست شده به‌هنگام آماده‌سازی و درنتیجه ایجاد فرورفتگی‌های نسبتاً عمیق در سطح آن دانست. بدیهی است که عمیق‌تر بودن فرورفتگی‌های ایجاد شده در نمونه مذکور، باعث افزایش R_a می‌شود. در مقابل، نمونه الکتروپولیش شده، دارای قله‌های بسیار کوتاه‌تر و سطح نرم‌تری است؛ چراکه سطح آن به‌هنگام آماده‌سازی، به‌صورت شیمیایی توسط سولفوریک اسید و ارتوفسفریک اسید خورده شده است. در این میان، نمونه آماده‌شده به روش سنباده دستی، به‌دلیل سایش فراوان و دقیق سطح آن با سنباده‌هایی که مرحله به مرحله با نظمی خاص، نرم‌تر می‌شدند، کوتاه‌ترین قله‌ها را داراست.

جدول ۱. زبری سطح (R_a) نمونه‌های الکتروپولیش شده (EP)، سندبلاست شده (SB) و سنباده‌زده شده (G)

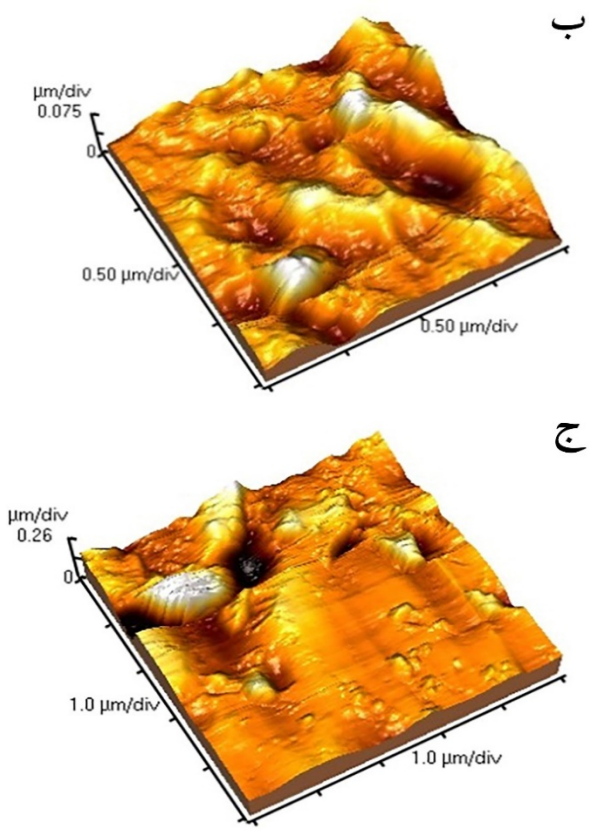
کد نمونه	EP	SB	G
R_a (میکرومتر)	۰/۱۷	۰/۹۳	۰/۰٤

شکل ۱، تصاویر AFM سطح نمونه‌های سنباده‌زده شده، الکتروپولیش شده و سندبلاست شده را در مقیاس نانومتری، نشان می‌دهد. همان‌طور که مشاهده می‌شود، آماده‌سازی سطح، به روش سنباده دستی، باعث ایجاد ناهمواری‌های منظم‌تری، در مقایسه با سایر نمونه‌ها، در طول سطح شده است. همچنین، قله‌هایی بسیار کوتاه و پراکنده در سطح این نمونه قابل ملاحظه هستند. در مقابل، سطح نمونه الکتروپولیش شده دارای حفرات مشهود، عمیق و البته قله‌هایی نرم و نسبتاً یکنواخت است. در تصویر مربوط به سطح نمونه سندبلاست شده، ناهمواری‌های ناهماهنگ ایجاد شده روی نمونه، بر اثر اصابت ذرات آلومینا، مشاهده می‌شود که سبب ایجاد سطحی ناهموار شده است. این عدم پیوستگی ناهمواری‌های موجود روی سطح نمونه یادشده را می‌توان ناشی از برخورد تصادفی و بی‌نظم ذرات آلومینا دانست، به‌طوری که در برخی مناطق، فرورفتگی‌های بسیار عمیق و در مناطقی دیگر، حفرات بسیار کم‌ارتفاع‌تر را می‌توان مشاهده کرد.

الف



[1] Scanning Electron Microscope

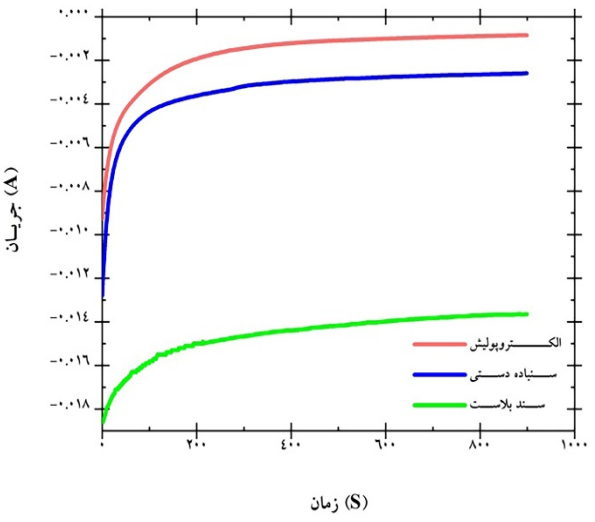


شکل ۱. تصاویر AFM نمونه با آماده‌سازی سطح به روش الف) سنباده دستی، ب) الکتروپولیش و ج) سندبلاست

با بررسی نتایج زبری‌سنجی ارائه‌شده در جدول ۱ و تصاویر AFM، مشخص می‌شود که بیشترین زبری، متعلق به نمونه سندبلاست‌شده و کمترین زبری، مربوط به نمونه سنباده‌زده شده است.

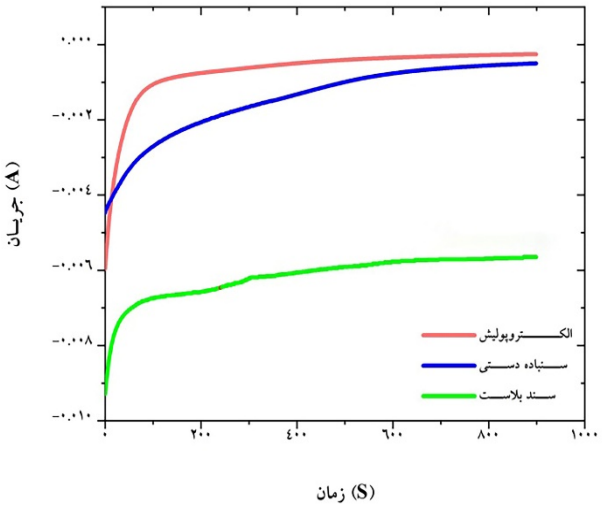
۳-۲- پوشش پلیمری دولایه پلی‌پیرول و پلی‌آنیلین

شکل ۲، منحنی‌های تغییر جریان را نسبت به زمان فرایند پلیمریزاسیون پیرول یا همان لایه اول پوشش، روی هر سه زیرلایه نشان می‌دهد. جریان شروع این فرایند برای سه نمونه الکتروپولیش شده، سنباده‌زده شده و سندبلاست شده، به‌ترتیب، برابر با ۰/۰۰۹۲-، ۰/۰۱۲۷- و ۰/۰۱۸۶- آمپر بوده است. با توجه به شیب نمودارها در شکل مذکور، در هر سه نمونه، نرخ تغییرات جریان، از زمان شروع فرایند تا مدت ۲۰۰ ثانیه، افزایش شدیدی داشته و از آن پس، به‌دلیل تشکیل لایه نازک اولیه پلی‌پیرولی روی سطح زیرلایه فولادی و درنتیجه، کندترشدن جریان انتقالی الکترون‌ها از زیرلایه به مونومرهای محلول برای پلیمریزاسیون، روند آرام‌تری را در پیش گرفته است. از زمان ۶۰۰ ثانیه تا ۹۰۰ ثانیه، فرایند پوشش‌دهی با نرخی بسیار آهسته‌تر انجام می‌شود، به‌طوری که شیب هر سه نمودار نزدیک به صفر است؛ چراکه سطح زیرلایه فولادی، توسط پلی‌پیرول، کاملاً پوشانده شده و درنتیجه، روند الکترون‌رسانی به مونومرها برای پلیمریزاسیون، بسیار دشوارتر شده است و ضخامت پوشش تغییر محسوسی نکرده است. همان‌طور که در شکل ۲ ملاحظه می‌شود، میزان جریان لازم برای تشکیل پلی‌پیرول، روی هرکدام از زیرلایه‌ها متفاوت است. دلیل این تفاوت را می‌توان روش‌های آماده‌سازی متفاوت هرکدام از زیرلایه‌ها دانست. مشاهده می‌شود که جریان پلیمریزاسیون، برای نمونه الکتروپولیش شده، از جریان مورد نیاز سایر نمونه‌ها کمتر است. علت این امر را می‌توان خوردگی‌سطح نمونه مذکور در محلول الکتروپولیش و متعاقباً، تشکیل لایه اکسیدی محافظ روی آن و افزایش پتانسیل سطح زیرلایه دانست؛ چراکه هنگام تشکیل پوشش پلیمری، سطح زیرلایه اکسید می‌شود تا الکترون‌های مورد نیاز برای تشکیل پلیمر تأمین شوند. ازاین‌رو، سطحی که خود پیش‌تر اکسید شده باشد، تأمین الکترون، برای تشکیل پوشش پلیمری و فرایند پلیمریزاسیون را به‌سختی میسر می‌سازد. در مقابل، نمونه سندبلاست شده، به‌دلیل وجود تمرکز تنش ناشی از برخورد ذرات آلومینا به‌هنگام آماده‌سازی و درنتیجه دارابودن مناطق پرانرژی و مستعد خوردگی، جریان پلیمریزاسیون بسیار بیشتری دارد.



شکل ۲. تغییر جریان با زمان در فرایند پلیمریزاسیون پیرول (لایه اول پوشش) روی سه نمونه

شکل ۳، منحنی‌های تغییر جریان نسبت به زمان فرایند پلیمریزاسیون پلی‌آنیلین، به‌منزله لایه دوم پوشش را نمایش می‌دهد. با توجه به تفاوت جریان شروع پلیمریزاسیون برای لایه دوم پوشش در مقایسه با لایه اول، ملاحظه می‌شود که تشکیل پلی‌آنیلین روی لایه قبلی با میزان توانایی هدایت الکتریکی و میسرساختن جریان انتقال الکترون‌ها به مونومرهای آنیلین توسط پلی‌پیرول نسبت مستقیم دارد؛ چراکه سطح زیر لایه فولادی به‌طور کامل با پلیمر پلی‌پیرول پوشیده شده است و این بار، وظیفه تأمین الکترون‌های مورد نیاز برای تشکیل پلی‌آنیلین، به عهده پلی‌پیرول است.



شکل ۳. تغییر جریان با زمان در فرایند پلیمریزاسیون آنیلین (لایه دوم پوشش) روی سه نمونه

بنابراین، با توجه به مطالب گفته‌شده در قسمت قبل، در این مرحله، پلی‌پیرول تا حدی اکسید می‌شود و درنتیجه الکترون‌ها و آنیون‌های موجود در شبکه خود را تا حد نیاز، برای پلیمریزاسیون مونومرهای آنیلین موجود در حمام پوشش‌دهی، آزاد می‌کند. بدین‌ترتیب، همانند پلی‌پیرول تشکیل شده در مرحله آغازین، لایه پلی‌آنیلین منسجم و دوپ‌شده با آنیون‌های اگزالات، روی لایه اول پوشش می‌نشیند.

میزان جریان لازم برای شروع پلیمریزاسیون آنیلین برای سه نمونه الکتروپولیش‌شده، سنباده‌زده شده و سندبلاست شده، به‌ترتیب، ۰/۰۰۵۹-، ۰/۰۰٤٤- و ۰/۰۰۹۲- آمپر بوده است. تفاوت این مقادیر با جریان‌های لازم برای شروع فرایند پلیمریزاسیون پلی‌پیرول را می‌توان ناشی از تفاوت در میزان رسانایی و توانایی تأمین الکترون زیرلایه فولادی در مقایسه با لایه پلی‌پیرول دانست. بدین‌ترتیب، علت بیشتر بودن مقادیر جریان‌های مورد نیاز برای تشکیل لایه اول در مقایسه با لایه دوم، می‌تواند رسانایی الکتریکی بالاتر سطح فولادی در قیاس با پلی‌پیرول باشد. گرچه از این پلیمرها به‌منزله پلیمر رسانا یاد می‌شود، توانایی هدایت الکتریکی آن‌ها از فلزات به‌مراتب، کمتر است. به همین دلیل، فرایند اکسایش سطح پلی‌پیرول و متعاقباً، شکل‌گیری پلی‌آنیلین روی آن نیز، دارای جریان کمتری است. البته، تأثیر ضخامت لایه اول پوشش در شکل‌گیری لایه دوم را نیز نمی‌توان نادیده گرفت. در خصوص پوشش‌های پلیمری چندلایه، به‌طور کلی، لایه ضخیم‌تر می‌تواند آنیون‌های تقویت‌کننده بیشتری را آزاد کند و درنتیجه، توانایی بالاتری برای احیای مونومرهای پلیمر لایه فوقانی داشته باشد. بنابراین، باید تأثیر ریخت‌شناسی و میزان تخلخل لایه اول را نیز در تشکیل لایه دوم در نظر گرفت.

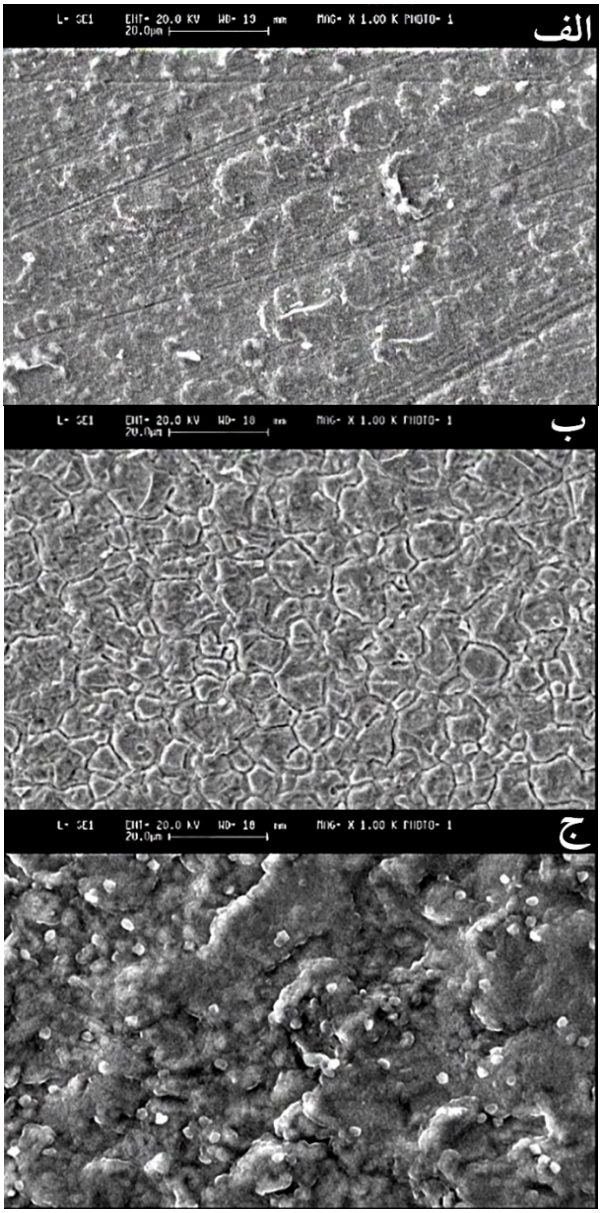
۳-۳- بررسی ریخت‌شناسی پوشش پلیمری دولایه پلی‌پیرول و پلی‌آنیلین

در شکل ٤، تصاویر SEM پوشش دولایه پلی‌پیرول و پلی‌آنیلین اعمال شده روی نمونه سنباده‌زده شده، الکتروپولیش شده و سندبلاست شده نشان داده شده است. پوشش تشکیل شده روی زیرلایه سنباده‌زده شده (شکل ٤-الف) نسبتاً یکنواخت است و با تراکم جزئی توده‌های پلیمری، در برخی نقاط، همراه است. علت تجمع این توده‌ها در برخی نواحی را می‌توان تفاوت در پتانسیل سطحی لایه زیرین در آن نقاط و متعاقباً، تمایل بیشتر آن‌ها برای انتقال الکترون و کمک به پلیمریزاسیون لایه فوقانی دانست. استفاده از اگزالیک اسید ۰/۳ مولار و مونومر آنیلین ۰/۱ مولار در حمام پوشش‌دهی، موجب تشکیل پوششی منسجم و چسبنده روی سطح زیرلایه فولادی شده است [۱۹].

شکل ٤-ب، ریخت‌شناسی پوشش پلیمری تشکیل شده روی نمونه آماده‌سازی شده به روش الکتروپولیش را نشان می‌دهد. عدم توانایی زیرلایه الکتروپولیش شده در تأمین الکترون‌های مورد نیاز برای احیای مونومرها و درنتیجه، تشکیل پوششی همگن، مشهود است. همان‌طور که ملاحظه می‌شود، پوشش اعمال شده روی این زیرلایه، به‌صورت تکه‌تکه و غیرمنسجم شکل گرفته است؛ چراکه لایه اکسیدی ایجاد شده

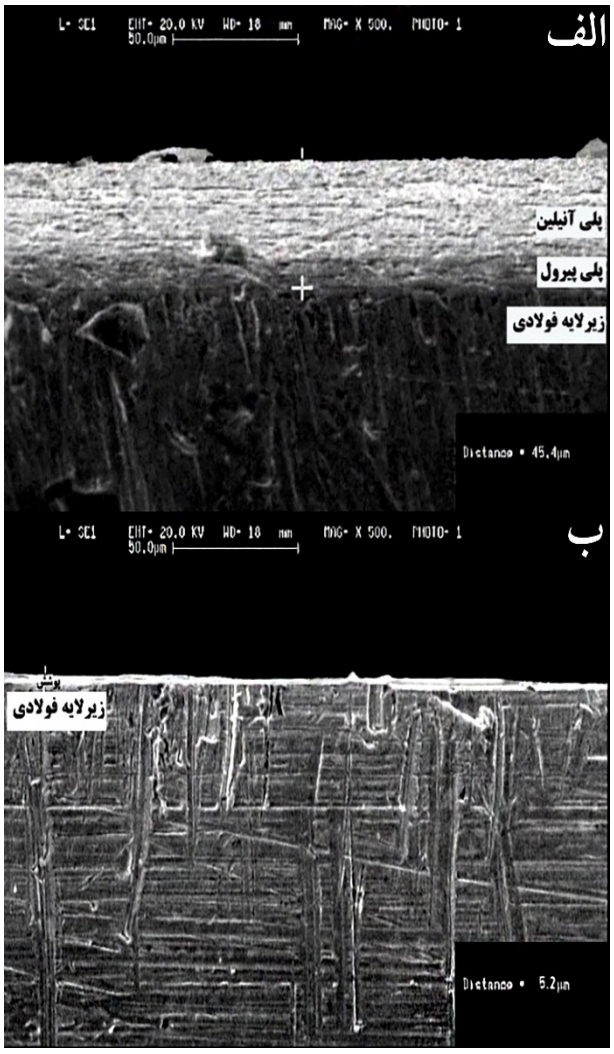
روی سطح فولادی، به‌هنگام الکتروپولیش در محلول اسیدی قوی، اجازه انتقال الکترون از سطح فولاد به درون حمام پوشش‌دهی را نمی‌دهد و درنتیجه، پلیمریزاسیون کامل انجام نمی‌شود.

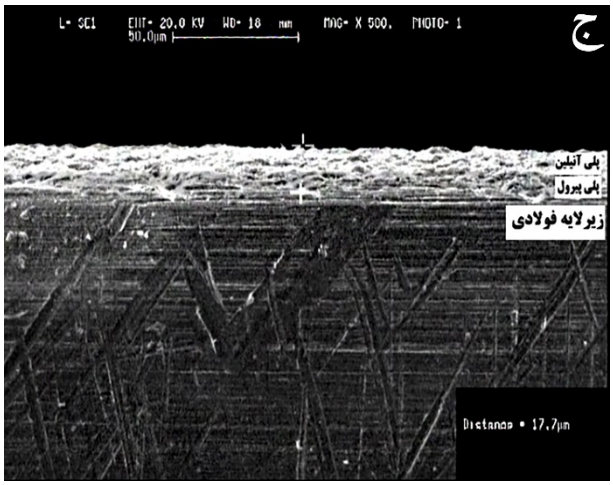
شکل ٤-ج، تصویر میکروسکوپی پوشش پلیمری روی زیرلایه سندبلاست شده را نشان می‌دهد. سطح این زیرلایه، به‌علت تمرکز تنش موجود در آن، بسیار مستعد خوردگی و درنتیجه تأمین الکترون‌های مورد نیاز برای پلیمریزاسیون است؛ از این‌رو، پوششی بسیارمنسجم‌تر روی آن شکل گرفته است و توده‌های پلیمری نسبتاً مشابه شده‌اند.



شکل ٤. تصاویر SEM سطح پوشش اعمال شده روی نمونه‌های آماده‌سازی شده به روش الف) سنباده دستی، ب) الکتروپولیش و ج) سندبلاست

در شکل ۵، تصاویر مقطع پوشش دولایه پلیمری اعمال شده روی سطح نمونه‌های فولادی سنباده‌زده شده، الکتروپولیش شده و سندبلاست شده ارائه شده است. مقادیر ضخامت لایه‌های مختلف که از تصاویر SEM استخراج شده است، در جدول ۲، ارائه شده است. به‌دلیل قرارگرفتن نمونه الکتروپولیش شده در محلول اسیدهای قوی در هنگام آماده‌سازی و در نتیجه، خوردگی مرزدانه‌ها، پوشش بسیار نازک و ضعیفی روی آن تشکیل شده است. لذا، تشخیص دقیق و اندازه‌گیری ضخامت لایه اول پوشش میسر نبوده و فقط امکان اندازه‌گیری ضخامت کل پوشش وجود داشت. پوشش اعمال شده روی سطح آماده‌سازی شده به روش سنباده دستی، با ضخامت ٤۵/٤ میکرون، ضخیم‌ترین پوشش شناخته شده و در مقابل، زیرلایه الکتروپولیش شده، با داشتن پوششی به ضخامت ۵/۲ میکرون، نازک‌ترین پوشش در میان سایر نمونه‌ها شناسایی شد.





شکل ۵. تصاویر SEM مقطع پوشش اعمال شده روی نمونه آماده‌سازی شده به روش الف) سنباده دستی، ب) الکتروپولیش و ج) سندبلاست

بر اساس نتایج به‌دست‌آمده، انتظار می‌رفت زیرلایه سندبلاست شده که دارای کمترین میزان جریان پلیمریزاسیون و سطحی مستعد برای تشکیل پوشش بود، بیشترین ضخامت را داشته باشد. اما چنین نتیجه‌ای مشاهده نشد و علت آن را هم می‌توان به صیقلی‌تر بودن سطح سنباده‌زده شده، در مقایسه با سطح نمونه سندبلاست شده، نسبت داد.

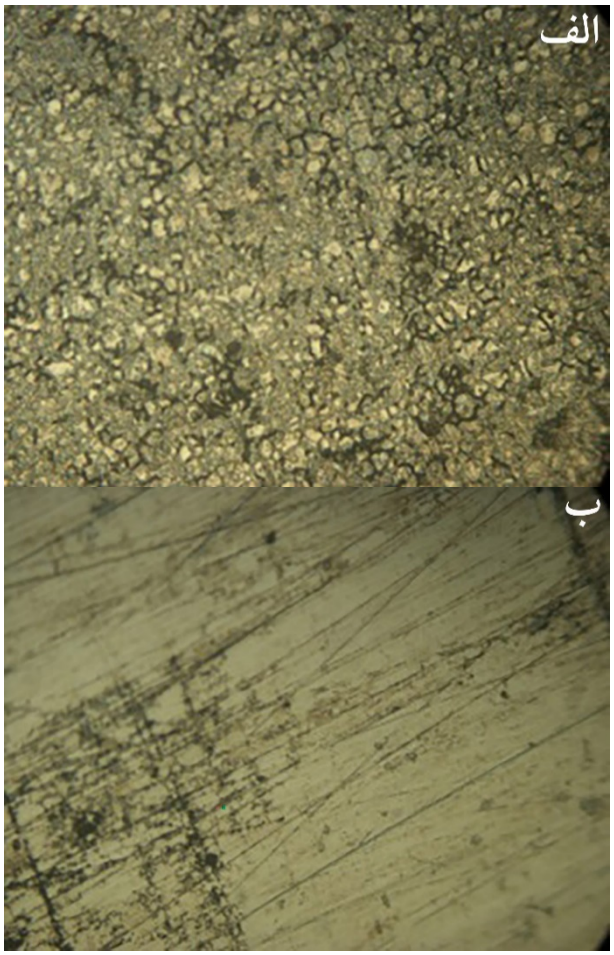
جدول ۲. ضخامت پوشش ایجاد شده روی نمونه‌ها

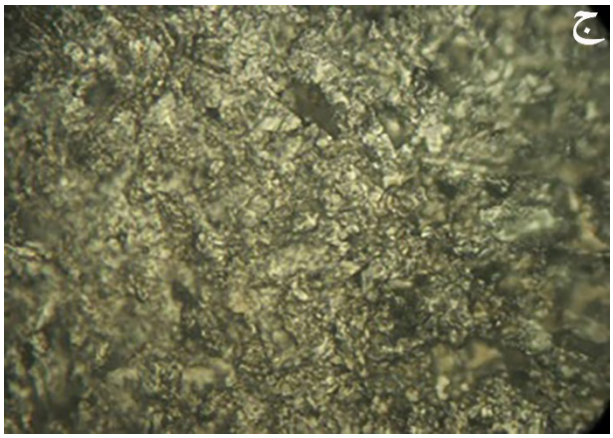
نمونه	ضخامت لایه اول (پلی‌پیرول) (میکرومتر)	ضخامت کل پوشش (میکرومتر)
آماده‌سازی شده به روش سنباده دستی	۱۲/۷	٤٥/٤
آماده‌سازی شده به روش الکتروپولیش	–	٥/۲
آماده‌سازی شده به روش سندبلاست	۷/٥٤	۱۷/۷

فراهم بودن بستر مناسب‌تر برای رشد و انباشت یکنواخت پلیمر روی سطح آماده شده به روش سنباده دستی، دلیل ضخامت بیشتر پوشش نشانده شده روی نمونه، در مقایسه با سایر نمونه‌ها، به‌ویژه زیرلایه سندبلاست شده است. برخورد ذرات سندبلاست به سطح زیرلایه به‌هنگام آماده‌سازی، سطحی بسیار ناهموار همراه با فرورفتگی‌های فراوان ایجاد می‌کند. اگرچه وجود همین عوامل می‌تواند باعث تسریع فرایند پوشش‌دهی از منظر سینتیکی باشد، تشکیل توده‌های پلیمری روی چنین سطح ناهمواری از نظر ریخت‌شناسی، شکل‌گیری پوشش را با عدم یکنواختی مواجه می‌سازد.

۳-٤- چسبندگی پوشش

برای بررسی میزان چسبندگی پوشش روی زیرلایه فولادی، از آزمون pull-off استفاده شد. در شکل ٦، تصاویر میکروسکوپ نوری از سطوحی که پوشش آن‌ها کنده شده، نمایش داده شده است. مقادیر به‌دست آمده از آزمون فوق برای هر نمونه، در جدول ۳، ارائه شده است. نتایج نشان می‌دهد که چسبنده‌ترین پوشش، به نمونه سنباده‌زده شده تعلق دارد. آماده‌سازی سطح به روش سنباده دستی، در مقایسه با سایر نمونه‌ها، به سطحی با ناهمواری‌های منظم به‌همراه قله‌هایی بسیار کوتاه، تیز و پراکنده منجر شده است. در این شرایط، اتصال مکانیکی بین پوشش و زیرلایه بیشتر خواهد شد.





شکل ٦. تصاویر میکروسکوپ نوری با بزرگ‌نمایی ٤٠ برابر، از سطوح تحت آزمون چسبندگی الف) نمونه الکتروپولیش شده، ب) نمونه سنباده‌زده شده و ج) نمونه سندبلاست شده

جدول ۳. نتایج آزمون چسبندگی پوشش‌ها

نمونه	تنش کششی لازم برای جدایش پوشش (مگاپاسکال)
آماده‌سازی شده به روش سنباده دستی	۰/٦٧
آماده‌سازی شده به روش الکتروپولیش	۰/۳۱
آماده‌سازی شده به روش سندبلاست	۰/٤٥

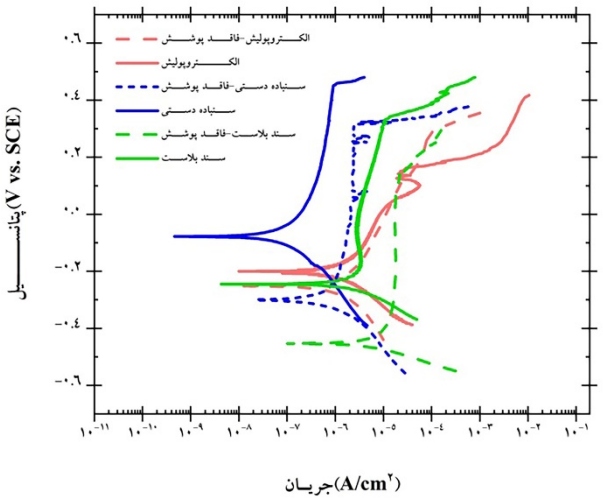
۳-۵- آزمون‌های خوردگی

۳-۵-۱- آزمون پلاریزاسیون پتانسیودینامیک

منحنی‌های پلاریزاسیون پتانسیودینامیکیِ همه نمونه‌ها، بعد از یک ساعت غوطه‌وری در محلول ۳/۵ درصد سدیم کلرید، در دو حالت فاقد پوشش و دارای پوشش، در شکل ۷، نشان داده شده‌اند. چنین استنتاج می‌شود که پوشش پلیمری دولایه پلی‌پیرول/پلی‌آنیلین، در هر سه حالت آماده‌سازی سطحی، باعث بهبود مقاومت به خوردگی زیرلایه فولادی شده است. اما در این میان، بهترین نتایج، مربوط به نمونه‌های آماده‌سازی شده به روش سنباده دستی است.

همان‌طور که پیش‌تر نیز اشاره شد، آنیون‌های اگزالات، در شبکه پلیمری پوشش دولایه پلی‌پیرول/پلی‌آنیلین حضور دارند. این موضوع، باعث بهبود مقاومت به خوردگی پوشش می‌شود؛ چراکه آنیون‌های اگزالات، به‌هنگام ایجاد هرگونه ترک و شیار در سطح پوشش، با کاتیون‌های آهن آزادشده ناشی از خوردگی، واکنش داده و لایه مقاوم آهن-اگزالات ایجاد می‌شود. این لایه، مانند مانعی قوی در برابر نفوذ یون‌های مهاجم و عوامل خورنده عمل می‌کند. به بیان دیگر، پوشش پلی‌پیرول/پلی‌آنیلین، در حضور اگزالات، رفتار یک پوشش خودترمیم‌شونده را نشان می‌دهد [٤].

در جدول ٤، پارامترهای به‌دست آمده از آزمون پلاریزاسیونِ نمونه‌های مورد بررسی گزارش شده است. بدیهی است که در نمودارهای پلاریزاسیون، هرچه پتانسیل خوردگی مثبت‌تر و دانسیته جریان خوردگی کمتر باشد، خواص حفاظتی پوشش نیز مطلوب‌تر خواهد بود. بر اساس داده‌های جدول ٤، مقادیر جریان خوردگی و پتانسیل خوردگی برای نمونه سنباده‌زده‌شده، به‌ترتیب، $۱/۷۸ \times ۱۰^{-۷}$ آمپر بر سانتی‌متر مربع و ۰/۰۸۰- ولت نسبت به الکترود استاندارد کالومل است که در مقایسه با سایر نمونه‌ها، بهترین رفتار خوردگی را نشان می‌دهد. یکی دیگر از دلایل رفتار خوردگی این نمونه را می‌توان تأثیر میزان چسبندگی پوشش‌ها به سطح زیرلایه دانست. بر اساس نتایج حاصل از آزمون چسبندگی، نمونه سنباده‌زده شده، بیشترین میزان چسبندگی را در مقایسه با دو نمونه دیگر داشت. از سوی دیگر، مطالعات نشان می‌دهد پلیمرهای هادی و لایه اکسید محافظتی سطح فلز، موجب انتقال پتانسیل فلز به مقادیر مثبت می‌شود. در جدول ٤ نیز مشاهده می‌شود نمونه دارای پوشش پلی‌پیرول/پلی‌آنیلین که آماده‌سازی سطح زیرلایه آن به روش سنباده‌زنی دستی انجام شده، بزرگ‌ترین پتانسیل خوردگی را دارد.



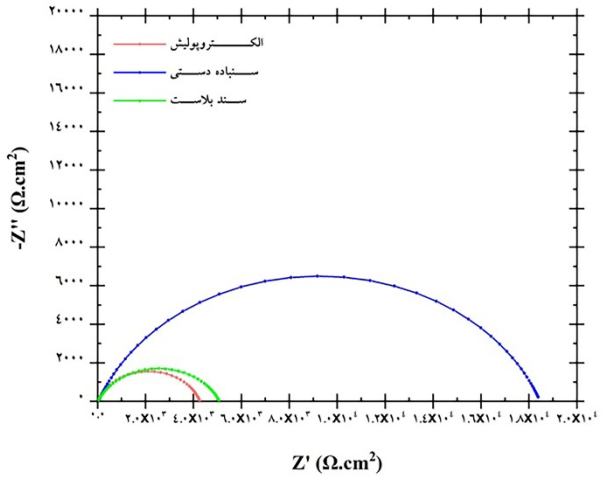
شکل ۷. منحنی‌های پلاریزاسیون تمامی نمونه‌ها در دو حالت فاقد پوشش و دارای پوشش پلیمری دولایه پلی‌پیرول/پلی‌آنیلین

جدول ٤. پارامترهای به‌دست‌آمده از منحنی‌های پلاریزاسیون نمونه‌ها

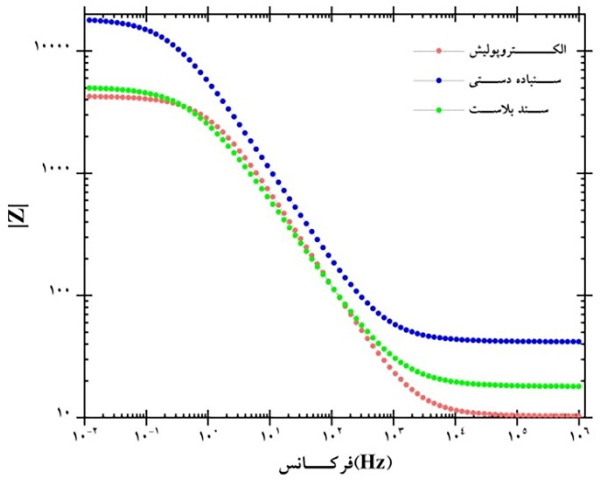
نمونه	چگالی جریان خوردگی (آمپر بر سانتی‌متر مربع)	پتانسیل خوردگی (ولتاژ نسبت به الکترود استاندارد کالومل)
سندبلاست-دارای پوشش	$۱/۲۳ \times ۱۰^{-۶}$	-۰/۱۹۸
سندبلاست-فاقد پوشش	$٤/۲۲ \times ۱۰^{-۵}$	-۰/٤۵۱
الکتروپولیش-دارای پوشش	$۱/۵٦ \times ۱۰^{-۶}$	-۰/۲٤۳
الکتروپولیش-فاقد پوشش	$۱/۵۰ \times ۱۰^{-۶}$	-۰/۲۵۲
سنباده دستی-دارای پوشش	$۱/۷۸ \times ۱۰^{-۷}$	-۰/۰۸۰
سنباده دستی-فاقد پوشش	$۱/۳٦ \times ۱۰^{-۶}$	-۰/۳۰۰

۳-۵-۲- آزمون طیف‌سنجی امپدانس الکتروشیمیایی (EIS)

به‌منظور بررسی رفتار خوردگی پوشش پلیمری مورد نظر، آزمون امپدانس الکتروشیمیایی، در دامنه فرکانس ۱۰ میلی‌هرتز تا ۱۰۰ کیلوهرتز با دامنه موج ولتاژ AC برابر با ۱۰ میلی‌ولت، در محلول ۳/۵ درصد سدیم کلرید انجام شد. شکل‌های ۸ تا ۱۰، به‌ترتیب، نمودارهای نایکوئیست[1]، بُد[2] و فاز[3] نمونه‌های آماده‌سازی شده به روش سنباده دستی، سندبلاست و الکتروپولیش را نشان می‌دهند. مؤلفه‌های حقیقی و موهومی امپدانس در نمودار نایکوئیست، لگاریتم بزرگی امپدانس در نمودار بد و اختلاف فاز بین پاسخ جریان متناوب و محرک ولتاژ متناوب در نمودار فاز، مشاهده و محاسبه شدند. به کمک نرم‌افزار ZView، مدار معادل برای رفتار امپدانسِ هرکدام از نمونه‌ها تهیه و در شکل ۱۱، ارائه شده است. نکته قابل توجه این است که به‌دلیل شباهت ساختار پوشش‌های اعمالی روی هر سه نمونه، مدار معادل آن‌ها، مشابه با یکدیگر به‌دست آمده است. در جدول ۵، اجزای مدار معادل، شامل مقاومت جبران نشده محلول (R_s)، مقاومت پوشش(R_p)، عنصر فاز ثابت[4] (CPE) یا خازن غیرایده‌آل و توان خازن غیرایده‌آل (n)، برای هر سه نمونه، ارائه شده است. N، نشان‌دهنده یکنواختی سطح است. برای معادل‌سازی رفتار الکتریکی پوشش‌ها، عنصر فاز ثابت، به‌جای خازن غیرایده‌آل، در نظر گرفته شده است تا با درنظرگرفتن عامل ناهمگنی سطح، نتایج به‌دست‌آمده از معادل‌سازی طیف‌های امپدانس با مدار معادل آن‌ها، مطابقت بیشتری داشته باشد. در شکل ۱۱، سعی شده است مفهوم فیزیکی و جایگاه واقعی هرکدام از اجزای مدار معادل یادشده در سلول الکتروشیمیایی تحت آزمون نیز ترسیم شود.

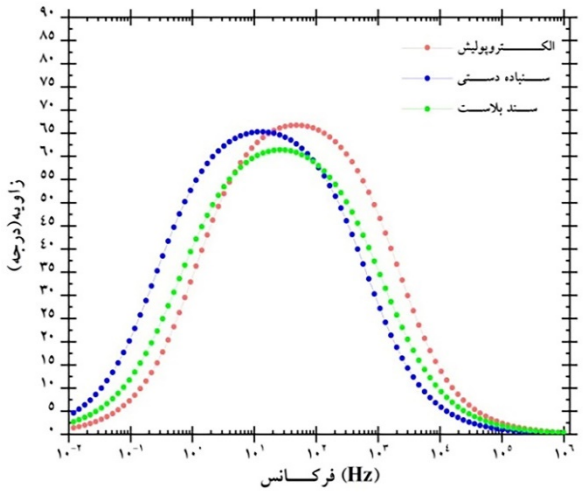


شکل ۸. نمودارهای نایکوئیست پوشش پلیمری اعمال شده روی نمونه‌ها

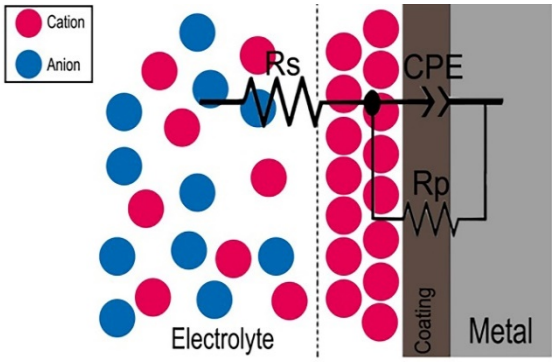


شکل ۹. نمودارهای بُد پوشش پلیمری اعمال شده روی نمونه‌ها

[1] Nyquist
[2] Bode
[3] Phase
[4] Constant Phase Element



شکل ۱۰. نمودارهای فاز پوشش پلیمری اعمال‌شده روی نمونه‌ها



شکل ۱۱. مفهوم فیزیکی اجزای مدار معادل در سلول الکتروشیمیایی تحت آزمون

در واقع CPE، ظرفیت خازنی پوشش خارجی (ظرفیت حفرات و تخلخل‌ها) در فصل مشترک پوشش متخلخل/الکترولیت است و مقدار آن، بیانگر رفتار لایه دی‌الکتریک در فصل مشترک پوشش/الکترولیت است. ازاین‌رو، هرچه مقدار CPE بیشتر باشد، پوشش دارای ضخامت کمتر، تخلخل و غیریکنواختی بیشتر و درنتیجه، چسبندگی کمتری در سطح خود خواهد بود. بر اساس جدول ۵، نمونه الکتروپولیش شده، بیشترین CPE را در مقایسه با سایر نمونه‌ها داراست و این امر می‌تواند وجود تخلخل‌ها و حفرات بیشتر در پوشش اعمالی روی این نمونه و همچنین ضخامت و چسبندگی کمتر این پوشش را نشان دهد. در مقابل، کمترین CPE، مربوط به نمونه سنباده دستی است که این امر خود بیانگر وجود حفرات کمتر و انسجام و یکنواختی پوشش این نمونه و ضخامت و چسبندگی بیشتر آن است. در منحنی‌های نایکوئیست، شعاع نیمه‌دایره، معیاری از مقاومت انتقال بار است. به این صورت که شعاع کمتر، نشان‌دهنده مقاومت انتقال بار کمتر در سطح زیرلایه مورد مطالعه و درنتیجه، سرعت خوردگی بیشتر است. بر این اساس، مشاهده می‌شود که نمونه الکتروپولیش شده، دارای کوچک‌ترین شعاع و درنتیجه، کمترین مقاومت انتقال بار و نمونه سنباده‌زده شده، دارای بزرگ‌ترین شعاع و درنتیجه، بالاترین مقاومت انتقال بار است. به بیان دیگر، نمونه سنباده‌زده شده، در مقایسه با سایر نمونه‌ها، سرعت خوردگی کمتری دارد. این نتیجه، منطبق با داده‌های حاصل از منحنی پلاریزاسیون (شکل ۷ و جدول ٤) است. بیشترین مقاومت الکتریکی، به پوشش نمونه سنباده‌زده شده (۱۸٤۲۸ اهم سانتی‌متر مربع) و کمترین مقاومت، به پوشش نمونه الکتروپولیش شده (٤۲٦۵ اهم سانتی‌متر مربع) تعلق دارد.

جدول ۵. نتایج معادل‌سازی منحنی‌های طیف‌سنجی امپدانس الکتروشیمیایی

نمونه	R_s ($\Omega.Cm^2$)	R_p ($\Omega.Cm^2$)	CPE-T ($\mu\Omega^{-1}cm^{-2}s^n$)	n
سنباده دستی (G)	٤۱/۸	۱۸٤۲۸	۳٦/٤	۰/۷۸
سندبلاست (SB)	۱۷/۹۸	۵۰۷۰	۷۱/۳	۰/۷۵
الکتروپولیش (EP)	۱۰/۲۸	٤۲٦۵	٤۹/۳	۰/۸۰

٤- نتیجه‌گیری

نتایج حاصل از آزمون زبری‌سنجی نشان داد که کمترین زبری سطح، مربوط به نمونه سنباده‌زده شده است. آماده‌سازی سطح زیرلایه، بر جریان پلیمریزاسیون الکتروشیمیایی مونومر پیرول (لایه اول)، تأثیر مستقیم دارد. بیشترین جریان پلیمریزاسیون، مربوط به نمونه الکتروپولیش شده و کمترین جریان پلیمریزاسیون، متعلق به نمونه سندبلاست شده است. در پلیمریزاسیون الکتروشیمیایی پلی‌آنیلین (لایه دوم) نیز، مشاهده شد که بیشترین جریان، برای نمونه الکتروپولیش شده و کمترین جریان، برای نمونه سندبلاست شده است. نتایج آزمون pull-off نشان داد که حداکثر چسبندگی پوشش، متعلق به نمونه سنباده‌زده شده است. از بررسی سطوح نمونه‌ها پس از جداشدن پوشش‌ها، چنین استنباط شد که اتصال پوشش‌ها به

زیرلایه‌ها، کاملاً فیزیکی بوده است. بیشترین پتانسیل خوردگی و کمترین جریان خوردگی، متعلق به پوشش نمونه سنباده‌زده شده و کمترین پتانسیل خوردگی و بیشترین جریان خوردگی، به پوشش نمونه الکتروپولیش شده تعلق دارد. نتایج حاصل از آزمون امپدانس الکتروشیمیایی نشان داد که بیشترین مقاومت الکتریکی، متعلق به پوشش نمونه سنباده‌زده شده و کمترین مقاومت الکتریکی، به پوشش نمونه الکتروپولیش شده است.

۵- سپاسگزاری

نویسندگان مقاله از همکاری آزمایشگاه مهندسی سطح و خوردگی، دانشکده فنی و مهندسی، واحد علوم و تحقیقات، دانشگاه آزاد اسلامی تشکر و قدردانی می‌کنند.

مراجع

1. Tallman, D. E., Spinks, G., Dominis, A., Wallace, G. G., "Electroactive conducting polymers for corrosion control", ***Journal of Solid State Electrochemistry***, Vol. 6, No. 2, (2002), 73-84. https://doi.org/10.1007/s100080100211
2. Dudukcu, M., Udum, Y. A., Ergun, Y., Koleli, F., "Electrode position of poly(4-methyl carbazole-3-carboxylic acid) on steel surfaces and corrosion protection of steel", ***Journal of Applied Polymer Science***, Vol. 111, No. 3, (2009), 1496-1500. https://doi.org/10.1002/app.29151
3. Camalet, J. L., Lacroix, J. C., Aeiyach, S., Ching, K. C., Lacaze, P. C., "Electrodeposition of protective polyaniline films on mild steel", ***Journal of Electroanalytical Chemistry***, Vol. 416, No. 1-2, (1996), 179-182. https://doi.org/10.1016/S0022-0728(96)01012-1
4. Camalet, J. L., Lacroix, J. C., Aeiyach, S., Lacaze, P. C., "Characterization of polyaniline films electrodeposited on mild steel in aqueous p-toluenesulfonic acid solution", ***Journal of Electroanalytical Chemistry***, Vol. 445, No. 1-2, (1998), 117-124. https://doi.org/10.1016/S0022-0728(97)00526-3
5. Bernard, M. C., Joiret, S., Hugot-Le Goff, A., Viet Phong, P., "Protection of iron against corrosion using a polyaniline layer: I. Polyaniline electrodeposit", ***Journal of The Electrochemical Society***, Vol. 148, No. 1, (2001), B12-B16. https://doi.org/10.1149/1.1344527
6. DeBerry, D. W., "Modification of the electrochemical and corrosion behavior of stainless steels with an ectroactive coating", ***Journal of The Electrochemistry Society***, Vol. 132, No. 5, (1985), 1022-1026. https://doi.org/10.1149/1.2114008
7. Wessling, B., "Passivation of metals by coating with polyaniline: Corrosion potential shift and morphological changes", ***Advanced Materials***, Vol. 6, No. 3, (1994), 226-228. https://doi.org/10.1002/adma.19940060309
8. Armelin, E., Pla, R., Liesa, F. O., Ramis, X. R., Iribarren, J. I., Aleman, C., "Corrosion protection with polyaniline and polypyrrole as anticorrosive additives for epoxy paint", ***Corrosion Science***, Vol. 50, No. 3, (2008), 721-728. https://doi.org/10.1016/j.corsci.2007.10.006
9. Deshpande, P. P., Jadhav, N. G., Gelling, V. J., Sazou, D., "Conducting polymers for corrosion protection: A review", ***Journal of Coating Technology and Research***, Vol. 11, No. 4, (2014), 473-494. https://doi.org/10.1007/s11998-014-9586-7
10. Lu, H., Zhou, Y., Vongehr, S., Hu, K., Meng, X., "Electropolymerization of PANI coating in nitric acid for corrosion protection of 430 SS", ***Synthetic Metals***, Vol. 161, No. 13-14, (2011), 1368-1376. https://doi.org/10.1016/j.synthmet.2011.05.003
11. Saravanan, K., Sathiyanarayanan, S., Muralidharan, S., Syed Azim, S., Venkatachari, G., "Performance evaluation of polyaniline pigmented epoxy coating for corrosion protection of steel in concrete environment", ***Progress in Organic Coatings***, Vol. 59, No. 2, (2007), 160-167, https://doi.org/10.1016/j.porgcoat.2007.03.002
12. González, M. B., Saidman, S. B., "Electrodeposition of bilayered polypyrrole on 316 L stainless steel for corrosion prevention", ***Progress in Organic Coatings***, Vol. 78, (2015), 21-27. https://doi.org/10.1016/j.porgcoat.2014.10.012
13. Ren, Y. L., Zeng, C. L., "Effect of conducting composite polypyrrole/polyaniline coatings on the corrosion resistance of type 304 stainless steel for bipolar plates of proton-exchange membrane fuel cells", ***Journal of Power Sources***, Vol. 182, No. 2, (2008), 524-530. https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2008.04.056
14. Hasanov, R., Bilgic, S., "Monolayer and bilayer conducting polymer coatings for corrosion protection of steel in 1 M H_2SO_4 solution", ***Progress in Organic Coatings***, Vol. 64, No. 4, (2009), 435-445. https://doi.org/10.1016/j.porgcoat.2008.08.004
15. Pan, T. J., Zuo, X. W., Wang, T., Hu, J., Chen, Z .D., Ren, Y. J., "Electrodeposited conductive polypyrrole/polyaniline composite film for the corrosion protection of copper bipolar plates in proton exchange membrane fuel cells", ***Journal of Power Sources***, Vol. 302, (2016), 180-188. https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2015.10.027
16. "Standard specification for passivation of stainless steels using electropolishing", ***ASTM B912***, (2008). https://www.astm.org/DATABASE.CART/HISTORICAL/B912-02R08E1.htm
17. "Geometrical product specifications (GPS)–Surface texture: Profile method–Terms, definitions and surface texture parameters", Amendment 2: Parameters Xsm and Xc, ***MEN-EN-ISO 4287***, (1997). https://standards.globalspec.com/std/10295410/nen-en-iso-4287
18. "Standard test method for pull-off strength of coatings using portable sdhesion testers", ***ASTM D4541***, (2002). https://www.astm.org/DATABASE.CART/HISTORICAL/D4541-02.htm
19. Nautiyal, A., Parida, S., "Comparison of polyaniline electrodeposition on carbon steel from oxalic acid and salicylate medium", ***Progress in Organic Coatings***, Vol. 94, (2016), 28-33. https://doi.org/10.1016/j.porgcoat.2016.01.014

فصلنامه مواد و فناوری‌های پیشرفته

Journal Homepage: www.jamt.ir

مقاله کامل پژوهشی

بررسی ریزساختار و خواص کششی نانوکامپوزیت‌های Al5083-TiB_2 تولیدشده به روش ریخته‌گری گردابی

علی علیزاده [۱*]، مهدی عبدالهی آذغان [۲]

[۱] استادیار، مجتمع دانشگاهی مواد و فناوری‌های ساخت، دانشگاه صنعتی مالک اشتر، تهران، تهران، ایران

[۲] دانشجوی دکتری، مجتمع دانشگاهی مواد و فناوری‌های ساخت، دانشگاه صنعتی مالک اشتر، تهران، تهران، ایران

تاریخچه مقاله:

ثبت اولیه: ۱۳۹۹/۰۷/۲۸

دریافت نسخهٔ اصلاح‌شده: ۱۳۹۹/۰۹/۱۰

پذیرش قطعی: ۱۴۰۰/۰۶/۲۸

کلیدواژه‌ها:

آلومینیوم ۵۰۸۳،

دی‌بورید تیتانیم،

ریخته‌گری گردابی،

اکستروژن گرم

چکیده در پژوهش حاضر، تأثیر افزودن نانوذرات دی‌بورید تیتانیم (TiB_2) بر ریزساختار و خواص کششی کامپوزیت زمینه آلومینیوم ۵۰۸۳ مطالعه و بررسی شد. کامپوزیت‌های Al5083-TiB_2 (با ۵ و ۱۰ درصد وزنی تقویت‌کننده)، همراه با افزودنی‌های زیرکونیم (Zr) و اکسید سریم (CeO_2)، با درصدهای مختلف وزنی و به روش ریخته‌گری گردابی، در دمای ۱۰۰۰ درجه سلسیوس، تحت فرایند درجا تولید شدند. سپس نمونه‌ها، به‌منظور توزیع یکنواخت تقویت‌کننده‌ها در زمینه، تحت فرایند اکستروژن گرم قرار گرفتند. نانوذرات TiB_2 مورد استفاده در این پژوهش، با روش درجا، به‌وسیله پیش‌ماده‌های کریولیت (Na_3AlF_6)، اکسید تیتانیم (TiO_2) و پتاسیم تترافلورو بوراید (KBF_4)، در مذاب آلومینیوم فراوری شد. به‌منظور بررسی ریزساختار، سطوح و سازوکار شکست نمونه‌ها، از آنالیز پراش پرتو ایکس (XRD)، میکروسکوپ نوری (OM) و میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) استفاده شد. نتایج آزمون کشش نشان داد که افزودن ۱۰ درصد وزنی ذرات TiB_2، در مقایسه با نمونه بدون تقویت‌کننده، باعث افزایش ۱۷/۷ درصدی استحکام کششی نهایی و کاهش ۱۹/۲ درصدی کرنش می‌شود. همچنین، افزودن Zr و CeO_2، به‌علت حذف ترکیب بین‌فلزی Al_3Ti و سازوکار عدم‌تطابق (ضرایب) انبساط حرارتی با زمینه، در مقایسه با نمونه بدون تقویت‌کننده، باعث افزایش ۳۵/۸ درصد استحکام و ۷۸ درصد کرنش نمونه حاوی ۱۰ درصد تقویت‌کننده شد. همچنین، آنیل‌کردن، بعد از مرحله اکستروژن، در نمونه حاوی ۱۰ درصد وزنی TiB_2، باعث کاهش استحکام کششی شد.

https://doi.org/10.30501/jamt.2021.251930.1131 URL: https://www.jamt.ir/article_126412.html

Original Research Article

Journal of Advanced Materials and Technologies (JAMT): Vol. 10, No. 2, (Summer 2021), 45-57

Investigation on the Microstructure and Tensile Properties of Al5083-TiB_2 Nanocomposites Produced by Stir Casting Method

Ali Alizadeh [1*], Mehdi Abdollahi Azghan [2]

[1] *Assistant Professor, University Complex of Materials and Manufacturing Technologies, Malek Ashtar University of Technology (MUT), Tehran, Tehran, Iran*

***عهده دار مکاتبات**

نشانی: ایران، تهران، تهران، دانشگاه صنعتی مالک اشتر، مجتمع دانشگاهی مواد و فناوری‌های ساخت، تلفن: ۰۲۱-۲۲۹۸۶۵۷۵، **دورنگار:** -

پیام نگار: a_alizadeh@mut.ac.ir

Please cite this article as: Alizadeh, A., Abdollahi Azghan, M., "Investigation on the microstructure and tensile properties of Al5083-TiB_2 nanocomposites produced by stir casting method", ***Journal of Advanced Materials and Technologies (JAMT)***, Vol. 10, No. 2, (2021), 45-57. (https://doi.org/10.30501/jamt.2021.251930.1131).

2783-0829/© 2021 The Author(s). Published by MERC.
This is an open access article under the CC BY license (https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/).

[2] *Ph. D. Student, University Complex of Materials and Manufacturing Technologies, Malek Ashtar University of Technology (MUT), Tehran, Tehran, Iran*

Paper History:
Received: 2020-10-19
Revised in revised form: 2020-11-30
Accepted: 2021-09-19

Keywords:
Al5083 Alloy,
Titanium Diboride,
Stir Casting,
Hot Extrusion

Abstract This study was conducted to investigate the effect of adding titanium diboride (TiB_2) nanoparticles on the microstructure and tensile properties of the Al5083 matrix composite. Al5083/TiB_2 metal matrix composites (with 5 and 10 wt % reinforcement) along with zirconium (Zr) and cerium oxide (CeO_2) additives with different wt % were fabricated by in situ-stir casting at 1000 °C. The samples were then subjected to hot extrusion for uniform distribution of reinforcements in the matrix. TiB_2 nanoparticles were in-situ processed in molten aluminum using the precursors such as cryolite (Na_3AlF_6), titanium oxide (TiO_2), and potassium tetrafluoroborate (KBF_4). The microstructure, surfaces, and failure mechanism of the samples were investigated using X-ray diffraction (XRD), optical microscopy (OM), and scanning electron microscopy (SEM). Tensile test results showed that the addition of 10 wt % TiB_2 particles increased the ultimate tensile strength by 17.7 % and decreased the strain by 19.2 % compared to the sample without reinforcement. Besides, the addition of Zr and CeO_2 increased the strength by 35.8 % and the strain of the sample containing 78 % by 10 % reinforcement compared to the sample without reinforcement due to the removal of intermetallic compound Al_3Ti and the incompatibility between coefficients of thermal expansion (CTE) with the matrix. Also, post-extrusion annealing in the sample with 10 wt % TiB_2 reduced the tensile strength.

https://doi.org/10.30501/jamt.2021.251930.1131 URL: https://www.jamt.ir/article_126412.html

۱- مقدمه

چقرمگی[1] بالای زمینه‌های فلزی، از یک سو و استحکام و مقاومت به سایش عالی تقویت‌کننده‌های سرامیکی، از سوی دیگر، باعث تولید کامپوزیت زمینه‌فلزی[2] (MMC) شده که در بسیاری از صنایع، مانند هوافضا، خودروسازی و صنایع نظامی، مورد توجه قرار گرفته است. این کامپوزیت‌ها در سالهای اخیر، در ساخت بسیاری از قطعات خودرو، مانند پیستون ترمز، خطوط سیلندر و دیسک ترمز استفاده شده‌اند. اما به‌علت قیمت بالای فرایند تولید این نوع کامپوزیت‌ها، استفاده از آن‌ها، بیشتر به صنایع نظامی و هوافضا محدود شده است [۱].

آلومینیوم‌های آلیاژی، در مقایسه با سایر آلیاژهای فلزی، خواص مکانیکی خوبی، از قبیل چقرمگی شکست بالا، استحکام خوب و قیمت پایین از خود نشان می‌دهند که موجب شده بیشتر از سایر آلیاژهای مورد استفاده در انواع MMC، به‌کار گرفته شوند [۲].

کامپوزیت‌های زمینه‌فلزی، بیشتر حاوی تقویت‌کننده‌های غیرفلزی هستند که در حالت کلی، به دو دسته تقویت‌کننده‌های پیوسته (الیاف بلند و صفحه‌ای)، شامل گرافیت، بور و آلومینا (Al_2O_3) و تقویت‌کننده‌های ناپیوسته (الیاف کوتاه و ذرات)، شامل سیلسیم کاربید (SiC)، Al_2O_3، دی‌بوراید تیتانیم (TiB_2) و کاربید بور (B_4C)، تقسیم می‌شوند. TiB_2، گزینه‌ای بسیار مناسب برای مواد تقویت‌کننده در کامپوزیت‌های زمینه‌آلومینیومی است.

سختی و دمای ذوب بالای TiB_2، از پیوند قوی بین اتم‌های تیتانیم و بور ناشی می‌شود. سختی این ماده، حدود ۲۵۰۰ ویکرز است که در کاربردهای با مقاومت به سایش بالا، به‌عنوان تقویت‌کننده استفاده می‌شود. استحکام بالای TiB_2 باعث شده است، در مواقع نیاز به استحکام بسیار بالا و وزن پایین، کامپوزیت‌های آلومینیومی تقویت‌شده با TiB_2، به‌عنوان یکی از بهترین گزینه‌ها مطرح باشند. علاوه بر این، دمای کاری این ماده در اتمسفر محیط، حدود ۱۵۰۰ درجه سلسیوس است و در مقابل اکسایش، مقاومت بالایی دارد. همچنین، مقاومت TiB_2 در مقابل خوردگی و واکنش‌های شیمیایی نیز بسیار بالاست. البته، در تماس با مواد قلیایی بسیار قوی، مانند اسید نیتریک و اسید سولفوریک، وارد واکنش می‌شود [۳].

انواع MMC، به دو روش اصلی، حالت جامد و حالت مایع، تولید می‌شوند. روش حالت مایع، در مقایسه با فرایندهای حالت جامد، مانند اکستروژن یا اتصال‌دهی نفوذی، دارای مزایای فراوانی، از جمله مقرون به‌صرفه بودن فرایند، سهولت و سرعت بالای تولید است. در روش ریخته‌گری گردابی، هزینه‌های تولید کامپوزیت‌های زمینه‌فلزی، در مقایسه با سایر روش‌های تولید کامپوزیت‌های زمینه‌فلزی، حدود ۳۰ تا ۵۰ درصد کمتر است [٤] و از مهم‌ترین ویژگی‌های آن می‌توان به محدودیت‌نداشتن آن در تولید قطعات بزرگ و پیچیده اشاره کرد. بااین‌حال، توزیع غیریکنواخت ذرات تقویت‌کننده، کلوخه‌شدن[3] ذرات و وجود تخلخل زیاد، از جمله معایب این روش هستند. البته، می‌توان از روش‌های فراوری ثانویه، مانند اکستروژن[4]، استفاده کرد. این روش، با خردشدن کلوخه‌های

[1] Toughness
[2] Metal Matrix Composites (MMC)

[3] Agglomerate
[4] Extrusion

مواد تقویت‌کننده، توزیع یکنواخت ذرات و کاهش چگالی تخلخل‌ها همراه است. به‌طور کلی، اکستروژن برای تولید میله‌های استوانه‌ای یا لوله‌های توخالی به‌کار می‌رود، ولی مقاطعی با شکل نامنظم را می‌توان از فلزاتی که آسان‌تر اکسترود می‌شوند، مثل بیشتر آلیاژهای غیرآهنی (آلومینیوم و منیزیم)، تولید کرد [۵].

وجود افزودنی‌های دیگر در MMC، به‌جز زمینه و تقویت‌کننده، باعث بهبود خواص فیزیکی و مکانیکی می‌شود. برای مثال، افزودن منیزیم به‌عنوان عنصر فعال، باعث افزایش ترشوندگی TiB_2 توسط زمینه آلومینیومی می‌شود. در پژوهش‌های جداگانه ژو [۶]، لی و همکارانشان [۷]، تأثیر افزودن اکسید سریم (CeO_2) و Zr بر ریزساختار و خواص مکانیکی کامپوزیت Al-TiB_2 مطالعه شد. آن‌ها مشاهده کردند افزودن CeO_2 و Zr، از تجمع نانوذرات TiB_2 ، جلوگیری می‌کند و باعث توزیع یکسان آن در زمینه می‌شود که درنتیجه، افزایش خواص کششی را به‌دنبال دارد [۱ و ۲]. افزودن Zr و CeO_2 به کامپوزیت Al5083-TiB_2، با استفاده از چند سازوکار مختلف، موجب بهبود خواص کششی نمونه‌های کامپوزیتی می‌شود. حضور Zr، به‌منزله اولین عامل، باعث حل ترکیب بین‌فلزی Al_3Ti و تبدیل آن به TiB_2 می‌شود [۸]. دومین سازوکار، تشکیل فاز Al_3Zr در زمینه است که مانند سدی در برابر حرکت نابجایی‌ها عمل می‌کند و درنتیجه، کارسختی و افزایش استحکام کششی نهایی را به‌دنبال دارد. سومین سازوکار، عدم‌تطابق ضریب انبساط حرارتی بین زمینه، تقویت‌کننده و افزودنی‌هاست که تفاوت در ضریب انبساط حرارتی بین زمینه و CeO_2، تأثیر بسزایی در سازوکار استحکام‌دهی دارد [۹].

هنگامی‌که عناصر فعالی مانند منیزیم، کلسیم، تیتانیم یا زیرکونیم، با هدف افزایش ترشوندگی، به مذاب اضافه می‌شوند، در اثر کاهش کشش سطحی مذاب، کاهش انرژی فصل مشترک جامد - مایع در مذاب یا به‌وسیله واکنش شیمیایی، ترشوندگی افزایش می‌یابد. مشخص شده است که در کامپوزیت‌های زمینه‌آلومینیومی، منیزیم، در مقایسه با سایر عناصری نظیر سدیم، لانتانیم، زیرکونیم و تیتانیم، بیسموت، سرب، روی و مس، تأثیر بیشتری در دربرگیری ذرات تقویت‌کننده در مذاب و توزیع آن‌ها دارد. همچنین، آشکار شده است که افزودن منیزیم به مذاب آلومینیوم، ترشوندگی TiB_2 را افزایش می‌دهد. درحقیقت، افزودن منیزیم به آلومینیوم، با بیشتر تقویت‌کننده‌ها، همخوانی دارد.

ترشوندگی خوب بین فاز سرامیکی جامد و زمینه‌فلزی مایع، شرط لازم برای برقراری پیوند مطلوب بین این دو، حین ریخته‌گری است [۱۰]. اصولی که بر طبق آن، ترشوندگی بهبود می‌یابد بر پایه افزایش انرژی سطحی جامد، کاهش کشش سطحی آلیاژ مایع یا کاهش انرژی فصل مشترک جامد - مایع در فصل مشترک ذره و زمینه، استوار است. از بین روش‌های بهبود ترشوندگی می‌توان به افزودن عناصر آلیاژی فعال (مانند منیزیم، زیرکونیم و تیتانیم)، اکسایش ذرات تقویت‌کننده، پوشش‌دهی ذرات (به روش آبکاری، رسوب شیمیایی بخار)، ایجاد محیط خلأ در زمان اختلاط دو فاز زمینه و تقویت‌کننده و مخلوط کردن فاز زمینه و تقویت‌کننده به‌کمک ابزارهای مکانیکی اشاره کرد [۱۱]. اخلاقی و همکاران [۱۲]، به این نتیجه رسیدند که با افزودن ۳ درصد وزنی لانتانیم به کامپوزیت درجای Al-15 % Mg_2Si، اندازه متوسط ذرات اولیه MgS_2، از ۱۷ به ۱۰ میکرون، کاهش و استحکام کششی، از ۲۱۷ به ۲۲۳ مگاپاسکال، افزایش می‌یابد.

عالمی اردکانی و همکاران [۱۳]، خواص فیزیکی و مکانیکی کامپوزیت Al-Mn+Al_2O_3 ساخته‌شده به روش درجا را از طریق ریخته‌گری گردابی، مطالعه کردند. آن‌ها از پیش‌ماده‌های Al و MnO_2 (با نسبت وزنی $\frac{MnO_2}{Al} = ۷$)، به‌منظور تولید فاز تقویت‌کننده، به روش درجا و از ۵ درصد وزنی منیزیم، برای افزایش ترشوندگی بین ذرات تقویت‌کننده و زمینه، استفاده کردند. آن‌ها مشاهده کردند افزایش پودر تزریقی MnO_2، از ۱ تا ۷ درصد وزنی، ابتدا باعث افزایش خواص مکانیکی (استحکام خمشی، چقرمگی و سختی) و سپس کاهش آن می‌شود و مقدار بهینه MnO_2، ۳ درصد وزنی بود. همچنین دریافتند با افزایش مقدار MnO_2، میزان چگالی نسبی، کاهش و درصد تخلخل نمونه، افزایش می‌یابد.

علی‌پور و همکاران [۱۴]، ریزساختار و سختی نانوکامپوزیت زمینه Al7068 تقویت‌شده با نانوذرات SiC را که به روش ریخته‌گری گردابی ساخته شده بود مطالعه کردند. مطالعات ریزساختاری آن‌ها نشان داد که حضور نانوذرات SiC، باعث کاهش اندازه دانه می‌شود؛ اما در درصدهای بالای

نانوذرات SiC (۵ درصد وزنی)، کاهش محسوسی در اندازه دانه ایجاد نمی‌شود. همچنین، حضور نانوذرات و کاهش اندازه دانه، سختی نانوکامپوزیت را به‌شدت افزایش داد. البته، در درصدهای بالای نانوذرات SiC (۵ درصد وزنی)، این ذرات در مرزدانه‌ها کلوخه و باعث کاهش سختی کامپوزیت شد.

هدایتیان و همکاران [۱۵]، تأثیر افزودن نانوصفحات اکسید گرافن بر خواص بالستیکی و جذب انرژی کامپوزیت زمینه Al6061 تولیدشده به روش ریخته‌گری گردابی و عملیات ثانویه نورد گرم را بررسی کردند. آن‌ها دریافتند که با افزودن نانوصفحات اکسید گرافن، سرعت حد بالستیک نمونه‌های کامپوزیتی، در مقایسه با آلیاژ پایه، تا ۲۴ درصد بهبود می‌یابد. همچنین، میزان جذب انرژی نمونه‌های کامپوزیتی در بارگذاری شبه‌استاتیکی و ضربه‌ای، به‌ترتیب، ۱۱۶ و ۱۰۷ درصد، در مقایسه با آلیاژ Al6061، افزایش داشت. این مشاهدات، تأثیر بسیار خوب نانوصفحات اکسید گرافن بر جذب انرژی آلیاژ آلومینیومی را نشان داد.

فنج و همکاران [۱۶]، تأثیر افزودن عناصر مختلف بر توزیع ذرات TiB_2 (که با استفاده از واکنش نمک‌های K_2TiF_6 و KBF_4 تشکیل شد) را بررسی کردند. آنان دریافتند که افزودن Si، علاوه بر افزایش گران‌رَوی یا ویسکوزیته[1] مذاب، توزیع ذرات TiB_2 را نیز بهبود می‌بخشد. همچنین افزودن عنصر Sb به کامپوزیت Al-TiB_2 باعث کاهش کلوخه‌های TiB_2 و ریزدانه‌شدن ساختار می‌شود.

ساخت کامپوزیت‌های زمینه آلومینیومی تقویت شده با TiB_2 موجب تشکیل ترکیب بین‌فلزی Al_3Ti می‌شود که کاهش شدید خواص مکانیکی کامپوزیت را درپی دارد. وانگ و همکاران [۱۷] خواص مکانیکی کامپوزیتِ زمینه Al356 تقویت‌شده با TiB_2 را بررسی کردند. در نتایج به‌دست‌آمده از XRD، اثری از ترکیب بین‌فلزی Al_3Ti دیده نشد. آن‌ها مشاهده کردند نمونه‌هایی که تحت عملیات ثانویه حرارتی قرار گرفتند استحکام و مدول کشسانی بالا و کرنش کمتری، در مقایسه با نمونه‌های ریخته‌گری شده (بدون عملیات حرارتی)، داشتند. همچنین دریافتند که افزودن نانوذرات TiB_2، تا ۸ درصد، در زمینه‌فلز باعث افزایش ۱۷ درصدی مدول و ۹ درصدی استحکام کششی، در مقایسه با نمونه بدون نانوذرات، می‌شود.

در پژوهش حاضر، تأثیر ۵ و ۱۰ درصد وزنی نانوذرات TiB_2 و افزودنی‌های Zr و CeO_2 بر ریزساختار و خواص کششی کامپوزیت زمینه آلومینیوم ۵۰۸۳ (Al5083) مطالعه شد. تاکنون پژوهش‌های بسیار کمی در خصوص تأثیر ذرات TiB_2 بر ریزساختار و خواص مکانیکی آلیاژهای آلومینیوم انجام شده است. مزیت پژوهش حاضر، در مقایسه با پژوهش‌های پیشین، تعیین خواص فیزیکی قبل و بعد از فرایند ثانویه اکستروژن گرم است. همچنین تأثیر عناصر افزودنی در روش توزیع و شکل‌گیری نانوذرات تقویت‌کننده TiB_2 و تأثیر آن بر خواص مکانیکی نیز مطالعه شد. علاوه بر این، شناسایی سازوکارهای تأثیرگذار در رفتار کششی کامپوزیت‌های Al5083 تقویت‌شده با TiB_2، یکی دیگر از مزیت‌های پژوهش حاضر است.

۲- روش تحقیق

۲-۱- مواد

در پژوهش حاضر، آلیاژ Al5083، به‌دلیل خواص مناسب مانند استحکام کششی و چقرمگی بالا، شکل‌پذیری مناسب و مقاومت به خوردگی عالی [۱۸]، به‌عنوان زمینه کامپوزیت، انتخاب شد. به‌منظور تولید ذرات TiB_2، از پیش‌ماده‌های سدیم هگزا فلورو آلومینات (Na_3AlF_6)، دی‌اکسید تیتانیم (TiO_2) (خریداری‌شده از Sachtleben، آلمان) و پتاسیم تترافلورو بورات (KBF_4) (خریداری‌شده از Sigma-Aldrich، امریکا) استفاده شد. همچنین از افزودنی‌های CeO_2 (خریداری‌شده از Sigma-Aldrich، امریکا) و زیرکونیم (Zr) استفاده شد.

۲-۲- ساخت نمونه‌ها

برای دستیابی به مخلوط یکنواخت از پودرهای Na_3AlF_6، TiO_2 و KBF_4، با نسبت استوکیومتری ۱:۱:۲ و افزودنی‌های CeO_2 و Zr با درصدهای مختلف، از آسیاب گلوله‌ای، با سرعت ۸۰ دور در دقیقه، درون محفظه پلیمری استفاده شد. سپس، پودر حاصل، به مذاب فاز زمینه در دمای ۱۰۰۰ درجه سلسیوس اضافه شد. به‌منظور توزیع یکسان پودر، مذاب به‌مدت ۱۰ دقیقه، توسط همزن مکانیکی مخلوط و

[1] Viscosity

به‌مدت ۴۰ دقیقه، برای انجام واکنش پیش‌ماده‌ها، در دمای ۱۰۰۰ درجه سلسیوس، نگه‌داری شد [۱۹ و ۲۰]. به‌منظور جلوگیری از تشکیل اکسید آلومینیوم، در تمامی مراحل فرایند تولید اعم از ذوب و ریخته‌گری، از گاز آرگون استفاده شد.

نمونه‌های ریختگی، به طول تقریبی ۴۵ میلی‌متر، بریده شد و تحت عملیات اکستروژن گرم، در یک قالب اکستروژن با نسبت ۱:۹ از فولاد ابزار گرم‌کار W360 ساخته‌شده توسط شرکت بوهلر، با دمای ۵۰۰ درجه سلسیوس قرار گرفت که با اعمال فشار ۷۰۰ بار، طول نمونه به حدود ۲۷۰ میلی‌متر رسید. به‌منظور جلوگیری از اصطکاک بین قالب و نمونه کامپوزیتی، از روان‌ساز گرافیتی مولیکوت (خریداری‌شده از شرکت داوکورنینگ - مولیکوت کشور آلمان) استفاده شد. در جدول ۱، کد نمونه، نوع عملیات، درصد وزنی تقویت‌کننده و سایر افزودنی‌های کامپوزیت‌های تهیه‌شده، فهرست شده است.

جدول ۱. کد نمونه، عملیات و درصد وزنی افزودنی‌ها

کد نمونه	عملیات	درصد وزنی افزودنی‌ها		
		TiB_2	Zr	CeO_2
T0-C	ریخته‌گری	۰	۰	۰
T0-E	اکستروژن	۰	۰	۰
T1-C	ریخته‌گری	۵	۰	۰
T1-E	اکستروژن	۵	۰	۰
T2-C	ریخته‌گری	۵	۰/۲۵	۰/۲۵
T2-E	اکستروژن	۵	۰/۲۵	۰/۲۵
T3-C	ریخته‌گری	۵	۱	۱
T3-E	اکستروژن	۵	۱	۱
T4-C	ریخته‌گری	۱۰	۰	۰
T4-E	اکستروژن	۱۰	۰	۰
T5-C	ریخته‌گری	۱۰	۰/۲۵	۰/۵
T5-E	اکستروژن	۱۰	۰/۲۵	۰/۵
T6-E	اکستروژن - آنیل	۱۰	۰/۲۵	۰/۵

۲-۳- بررسی میکروسکوپی و مشخصه‌یابی نمونه‌ها

به‌منظور بررسی تغییرات ریزساختاری کامپوزیت‌ها، از میکروسکوپ نوری اولایمپوس[1] مجهز به دوربین دیجیتال BX61 استفاده شد. نمونه‌های تولیدشده قبل و بعد از فرایند اکستروژن، آماده‌سازی سطحی شدند.

شناسایی تقویت‌کننده‌ها در MMC، به‌وسیله میکروسکوپ الکترونی نشر میدانی[2] (FE-SEM) مدل MIRA3TESCAN انجام شد. همچنین، به‌منظور بررسی تغییرات ریزساختاری و توزیع ذرات تقویت‌کننده نمونه‌ها، میکروسکوپ الکترونی روبشی[3] (SEM) مدل XL30 شرکت ست‌اسکن هلند استفاده شد.

در این پژوهش، به‌منظور شناسایی فاز تقویت‌کننده، از دستگاه پراش پرتو ایکس[4] (XRD) ساخت شرکت فیلیپس مدل D6792 کشور هلند استفاده شد. نمونه‌ها، در مرحله آماده‌سازی نمونه، برای تشخیص فازهای تشکیل‌شده در حین فرایند درجا، در هیدروکلریک اسید[5] قرار داده شدند تا پس از حذف Al5083، فازهای تشکیل‌شده، آنالیز شوند.

۲-۴- اندازه‌گیری چگالی

به‌منظور تعیین چگالی کامپوزیت‌های تولیدشده پس از فرایند ریخته‌گری و اکستروژن، از دستگاه میتلر[6] کشور سوئیس استفاده شد.

۲-۵- محاسبه تخلخل

به‌منظور اندازه‌گیری میزان تخلخل در نمونه‌های ریخته‌گری‌شده و همچنین اثر افزوده شدن ذرات تقویت‌کننده بر چگالی نمونه‌ها، از دو روش سنجش چگالی تئوری و چگالی ارشمیدسی که در روابط (۱) و (۲) آمده است، استفاده شد.

$$\rho_{th} = X_{reinf} \times \rho_{reinf} + X_M \times \rho_M \quad (۱)$$

$$\% \text{ Porosity} = (\rho_{th} - \rho_a) / \rho_{th} \times 100 \quad (۲)$$

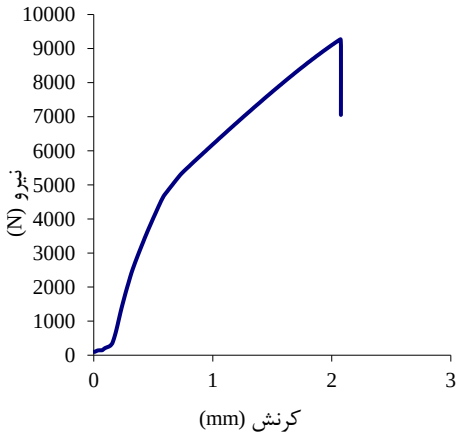
در رابطه (۱) و (۲)، ρ_M، چگالی زمینه، ρ_{reinf}، چگالی تقویت‌کننده، X_M، کسر حجمی زمینه، X_{reinf}، کسر حجمی تقویت‌کننده، ρ_{th}، چگالی تئوری و ρ_a، چگالی اندازه‌گیری‌شده به روش ارشمیدسی است.

[1] Olympus

[2] Field Emission-Scanning Electron Microscope (FE-SEM)
[3] Scanning Electron Microscope (SEM)
[4] X-Ray Diffraction (XRD)
[5] Hydrochloric Acid (HCl)
[6] Mettler

۲-۶- آزمون کششی

برای تعیین خواص کششی نمونه‌های کامپوزیتی، از دستگاه کشش ساخت شرکت ایرانی سنتام[1] مدل STM-50 و استاندارد ASTM E8M [۲۱] استفاده شد. حداقل تکرار انجام آزمون کشش برای هر گروه از نمونه‌ها، سه بار بود که داده‌های گزارش‌شده، میانگین آزمون‌های انجام‌شده را نشان می‌دهد. شکل ۱، نمودار نیرو - جابه‌جایی حاصل از آزمون کشش را برای نمونه T0-E نشان می‌دهد.



شکل ۱. نمودار نیرو- -جابه‌جایی برای نمونه T0-E

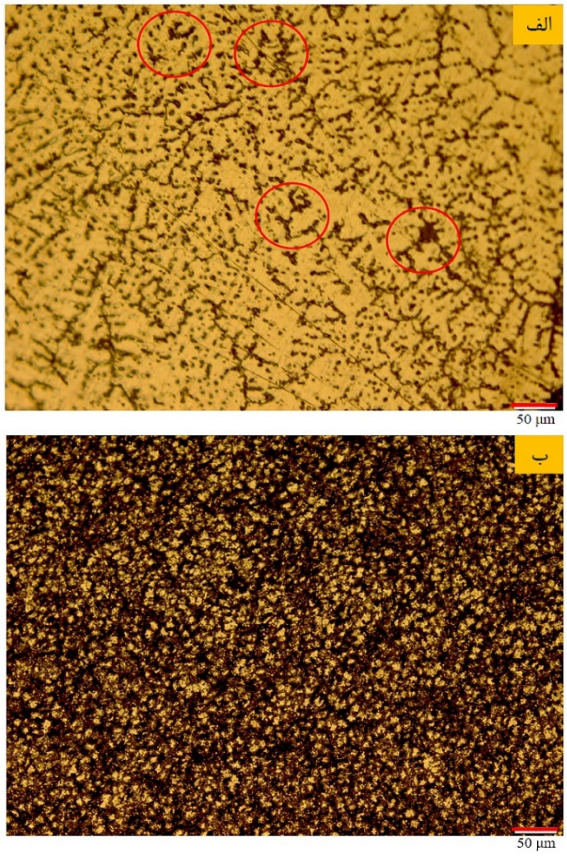
۳- نتایج و بحث

۳-۱- تخلخل و چگالی کامپوزیت‌ها

جدول ۲، تخلخل و چگالی کامپوزیت‌ها را قبل و بعد از اکستروژن، نشان می‌دهد. در تمامی نمونه‌های بعد از مرحله اکستروژن، میزان تخلخل، در مقایسه با مرحله قبل (ریخته‌گری)، کاهش یافته است. به‌عنوان مثال، در نمونه فاقد تقویت‌کننده و افزودنی، میزان تخلخل، در مرحله اکستروژن، ۰/۳۷ درصد است که در مقایسه با نمونه ریخته‌گری، ۰/۱۸ درصد کاهش یافته است. شکل ۲، میزان تخلخل در نمونه‌های T0-C و T0-E را نشان می‌دهد. در نمونه ریخته‌گری‌شده T0-C، وجود تخلخل، به‌وضوح قابل‌رؤیت است که در برخی مناطق (دایره‌های قرمز)، میزان این تخلخل بیشتر بوده و یکسان توزیع نشده است. ولی همان‌طور که در شکل ۲-ب مشاهده می‌شود، با انجام فرایند اکستروژن گرم، درصد تخلخل‌ها، در اثر اعمال فشار، کاهش می‌یابد و توزیع تخلخل یکسان می‌شود، اما کاملاً ازبین نمی‌رود. در نمونه حاوی ۱۰ درصد وزنی TiB_2 نیز میزان تخلخل بعد از مرحله اکستروژن، در مقایسه با مرحله ریخته‌گری، کاهش می‌یابد، ولی کامل حذف نمی‌شود (شکل ۳).

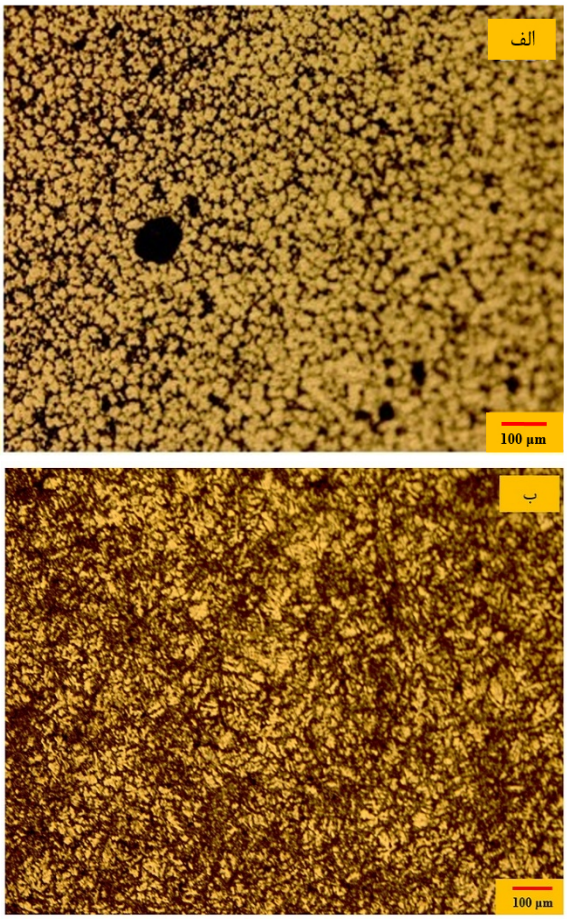
جدول۲. تخلخل و چگالی کامپوزیت‌ها

کد نمونه	تخلخل (٪)	چگالی (گرم بر سانتی‌مترمکعب)
T0-C	۰/۵۵	۲/۵۵
T0-E	۰/۳۷	۲/۶
T1-C	۰/۴۳	۲/۶۷
T1-E	۰/۳۵	۲/۶۹
T2-C	۰/۳۲	۲/۷۰
T2-E	۰/۲۵	۲/۷۲
T3-C	۰/۳۹	۲/۶۸
T3-E	۰/۳۵	۲/۶۹
T4-C	۱/۱۰	۲/۵۶
T4-E	۱/۰۰	۲/۵۹
T5-C	۱/۰۴	۲/۵۸
T5-E	۰/۸۶	۲/۶۳



شکل ۲. تصویر میکروسکوپ نوری نمونه الف) T0-C و ب) T0-E

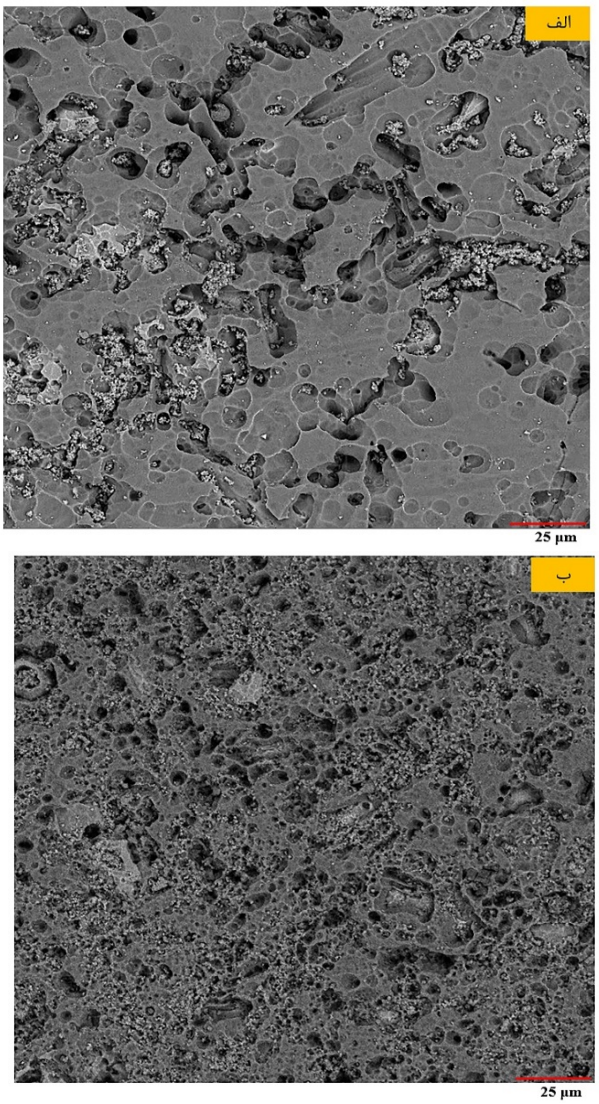
[1] Santam



شکل ۳. تصویر میکروسکوپ نوری نمونه الف) T4-C و ب) T4-E

در مرحله ریخته‌گری، به‌دلیل انرژی سطحی، ذرات تقویت‌کننده مایل‌اند به‌صورت تجمعی در کنار یکدیگر قرار گیرند که این امر می‌تواند منشأ تمرکز تنش شده و باعث شکست زودرس نمونه شود. انجام اکستروژن باعث شکستن کلوخه‌ها و توزیع یکنواخت تقویت‌کننده می‌شود. شکل ٤ توزیع نانوذرات در مرحله ریخته‌گری و اکستروژن را برای نمونه حاوی ۱۰ درصد وزنی TiB_2 نشان می‌دهد. همان‌طور که مشخص است، توزیع در نمونه اکستروژن‌شده، یکنواخت‌تر است.

با توجه به جدول ۲، افزودن ۵ درصد وزنی TiB_2 به زمینه، در مقایسه با نمونه بدون تقویت‌کننده، افزایش چگالی را به‌دنبال دارد که علت آن، چگالی بالای تقویت‌کننده در مقایسه با زمینه است. درحالی‌که چگالی نمونه‌های با ۱۰ درصد وزنی TiB_2 در مقایسه با نمونه‌های با ۵ درصد وزنی TiB_2، کاهش یافته است. افزایش ذرات تقویت‌کننده تا ۱۰ درصد وزنی، باعث کاهش گران‌روی مذاب شده و این کاهش گران‌روی، افزایش حجم گازهای محبوس‌شده در مذاب و سخت‌شدن شرایط فرار گازها از داخل مذاب را به‌دنبال دارد و درنتیجه، چگالی کاهش می‌یابد. مقایسه بین نمونه‌های قبل و بعد از اکستروژن نشان می‌دهد که باانجام فرایند تکمیلی اکستروژن گرم، فضاهای خالی و تخلخل‌هایی که حین ریخته‌گری به‌وجود آمدند، تحت فشار اعمالی، کاهش و درنتیجه، چگالی نمونه‌ها، افزایش می‌یابد. به‌عنوان مثال، مقایسه بین دو نمونه T5-C (۲/۵۸ گرم بر سانتی‌مترمکعب) و T5-E (۲/۶۳ گرم بر سانتی‌مترمکعب) نشان می‌دهد که اعمال عملیات اکستروژن باعث افزایش دو درصدی چگالی می‌شود.



شکل ٤. تصویر SEM از نمونه‌های الف) T4-C و ب) T4-E

۳-۲- بررسی نتایج پراش پرتو ایکس

واکنش‌های (۱) تا (٦)، نحوه تشکیل فاز TiB_2 را طبق رابطه استوکیومتری، در دمای ۱۰۰۰ درجه سلسیوس، نشان می‌دهند.

$$4Al + 3TiO_2 \rightarrow 3Ti + 2Al_2O_3 \quad (۱)$$

$$KBF_4 \rightarrow KF + BF_3 \quad (۲)$$

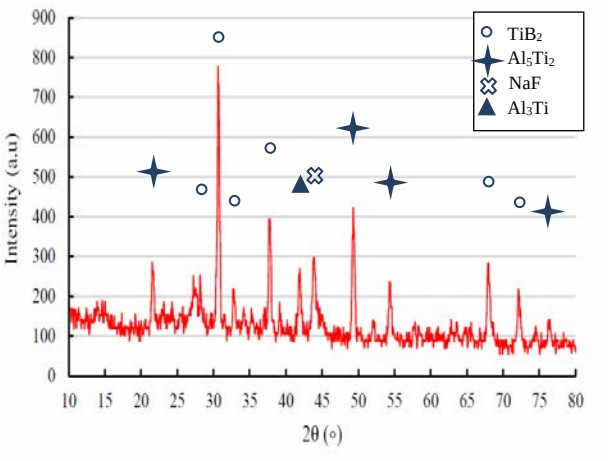
$$2Al + 2BF_3 + Ti \rightarrow TiB_2 + 2AlF_3 \quad (۳)$$

$$2Na_3AlF_6 + 2TiO_2 \rightarrow 2Na_2TiF_6 + Na_2O + Al_2O_3 \quad (۴)$$

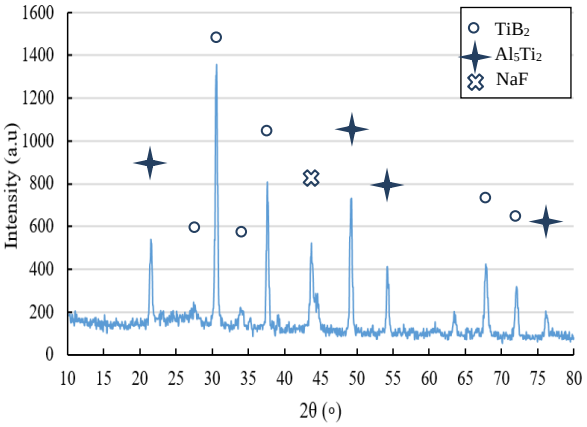
$$Na_2TiF_6 + 2KBF_4 \rightarrow TiB_2 + 2NaF + 2KF + 5F_2 \quad (۵)$$

$$Al_2O_3 + 2Na_3AlF_6 \rightarrow 3Na_2O + 4Al + 6F_2 \quad (۶)$$

به‌منظور بررسی فازهای تشکیل‌شده در حین واکنش، نمونه‌های کامپوزیتی، در هیدروکلریک اسید (HCl) قرار داده شدند. پس از حذف Al5083، ذرات تقویت‌کننده به‌جامانده، تحت آنالیز پراش پرتو ایکس گرفت. شکل‌های ۵ و ۶، به‌ترتیب، آنالیز XRD از نمونه‌های T1-E و T5-E را نشان می‌دهد. با توجه به آنالیز پراش پرتو ایکس نمونه T1-E (شکل ۵)، علاوه بر فاز TiB_2، فازهای دیگری نیز تشکیل شده‌اند. در این نمونه، با شکسته‌شدن پیوند بین TiO_2، تیتانیوم آزاد می‌شود و با بور آزادشده از KBF_4 واکنش می‌دهد و TiB_2 تشکیل می‌شود. همچنین، علاوه بر فاز تقویت‌کننده TiB_2، ترکیب بین‌فلزی Al_3Ti نیز دیده می‌شود. می‌توان نتیجه گرفت که فاز Al_3Ti، برای تشکیل TiB_2، به‌طور کامل، وارد واکنش نشده است. در نمونه T5-E (شکل ۶) که حاوی ۰/۲۵ درصد وزنی Zr و ۰/۵ درصد وزنی CeO_2 است، آثاری از ترکیب بین‌فلزی Al_3Ti دیده نمی‌شود.



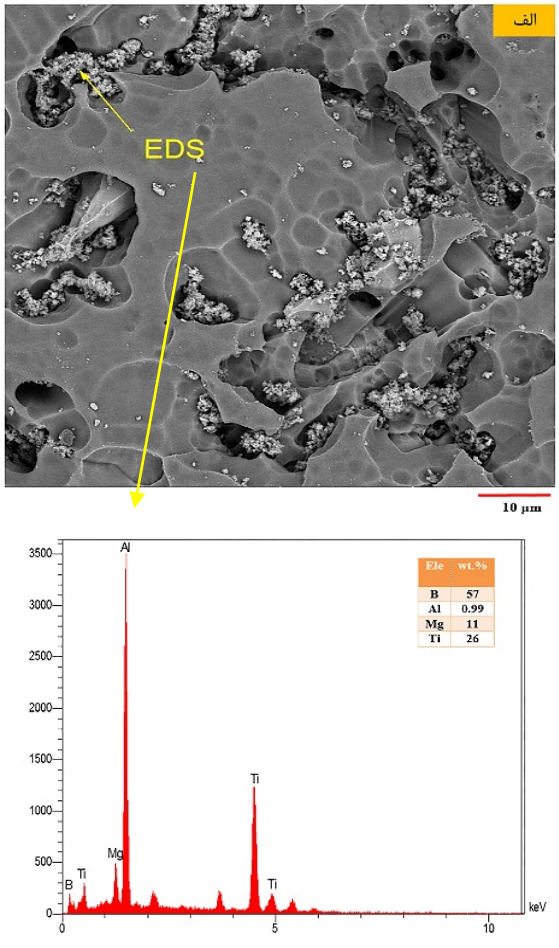
شکل ۵. الگوی پراش پرتو X نمونه T1-E

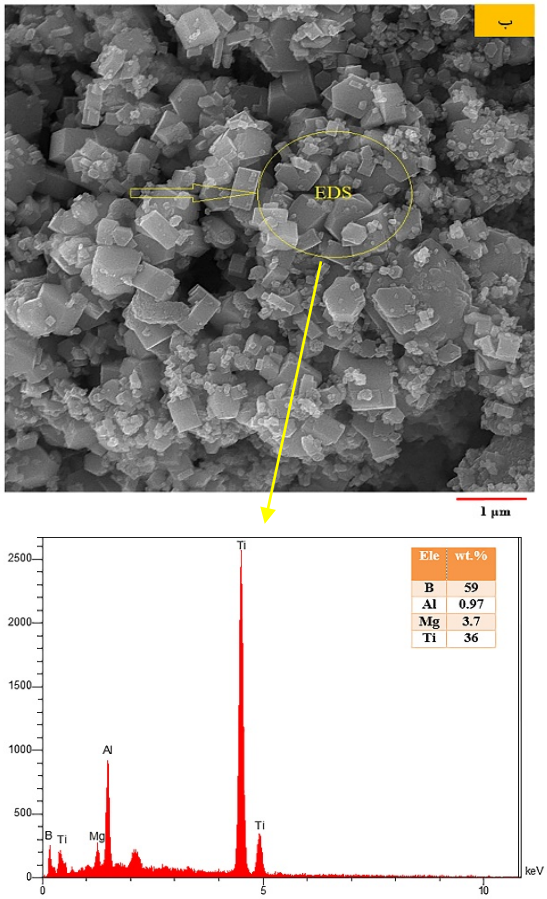


شکل ۶. الگوی پراش پرتو X نمونه T5-E

۳-۳- بررسی نتایج EDS ذرات تقویت‌کننده TiB_2

شکل ۷، نتایج حاصل از EDS را برای دو نمونه T1-C و T2-C نشان می‌دهد که درصد اتمی موجود برای B و Ti، به روابط استوکیومتری، نزدیک است. همان‌طور که در شکل ۶، نشان داده شده است، در نمونه T2-C، به‌علت وجود مواد افزودنی Zr و CeO_2، درصد وزنی Ti تشکیل‌شده، در مقایسه با نمونه T1-C، بیشتر است.





شکل ۷. آنالیز EDS برای کامپوزیت‌های الف) T1-C و ب) T2-C

۳-۴- خواص کششی کامپوزیت‌ها

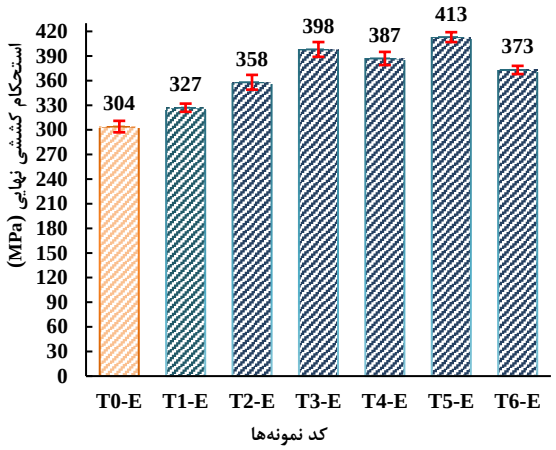
شکل‌های ۸ و ۹، استحکام و کرنش کششی کامپوزیت‌های زمینه Al5083 تقویت‌شده با نانوذرات TiB_2 را نشان می‌دهند. افزودن تقویت‌کننده، استحکام کششی را افزایش می‌دهد، به‌طوری که افزودن ۵ درصد وزنی TiB_2 (در نمونه T1-E)، باعث افزایش ۷/۵ درصدی استحکام، در مقایسه با نمونه بدون تقویت‌کننده (T0-E) شده است. همچنین، افزایش تقویت‌کننده تا ۱۰ درصد وزنی (T4-E)، افزایش ۱۷/۷ درصدی استحکام، در مقایسه با نمونه بدون تقویت‌کننده را به‌دنبال دارد.

خواص الاستیک نانوذرات تقویت‌کننده TiB_2 و ممانعت از تغییر شکل پلاستیک زمینه، افزایش کارسختی را به‌دنبال دارد که باعث افزایش استحکام کششی کامپوزیت می‌شود. از طرف دیگر، اعمال تنش‌های برشی ناشی از عملیات اکستروژن بین زمینه و ذرات تقویت‌کننده، به افزایش چسبندگی بین زمینه و ذرات تقویت‌کننده منجر شده و انتقال بار از فاز زمینه به تقویت‌کننده، راحت‌تر انجام شده و باعث افزایش استحکام کششی کامپوزیت می‌شود [۲۰].

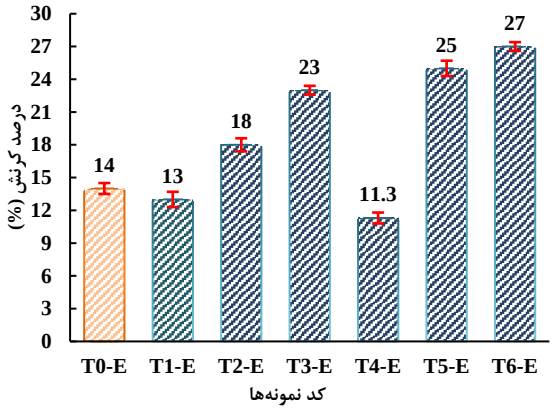
در مطالعه‌ای مشابه، احسانی و همکاران، تأثیر افزودن مستقیم TiB_2 بر خواص کششی زمینه Al356 را بررسی کردند. آن‌ها دریافتند افزودن ذرات تقویت‌کننده و در نتیجه افزایش کارسختی، باعث بهبود استحکام و مدول کششی کامپوزیت زمینه‌آلومینیومی می‌شود [۲۲].

نمونه‌های T1-E و T4-E، در مقایسه با نمونه بدون تقویت‌کننده، به‌ترتیب، کاهش ۷ و ۱۹/۳ درصدی کرنش را نشان دادند. علت این کاهش کرنش، وجود ترکیب بین‌فلزی Al_3Ti (شکل ۵) در اثر افزودن ذرات TiB_2 است.

در بررسی تی و همکاران روی موضوع تأثیر افزودن ذرات TiB_2 در زمینه Al1100 بر خواص کششی، مشاهده کردند که افزایش ذرات تقویت‌کننده، باعث افزایش مدول و استحکام کششی کامپوزیت می‌شود، اما به‌دلیل حضور ترکیب بین‌فلزی Al_3Ti، کرنش کاهش می‌یابد [۲۳].



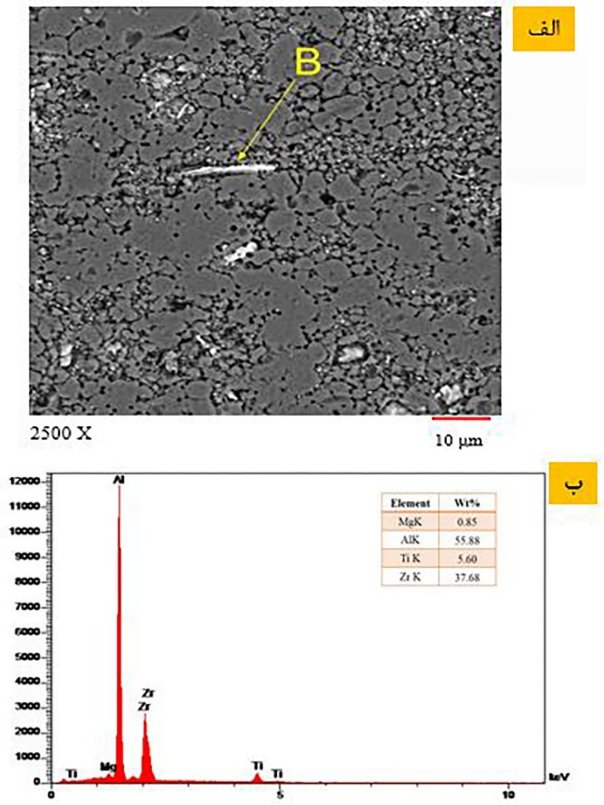
شکل ۸. استحکام کششی نهایی کامپوزیت‌های Al5083-TiB_2



شکل ۹. کرنش کششی کامپوزیت‌های Al5083-TiB_2

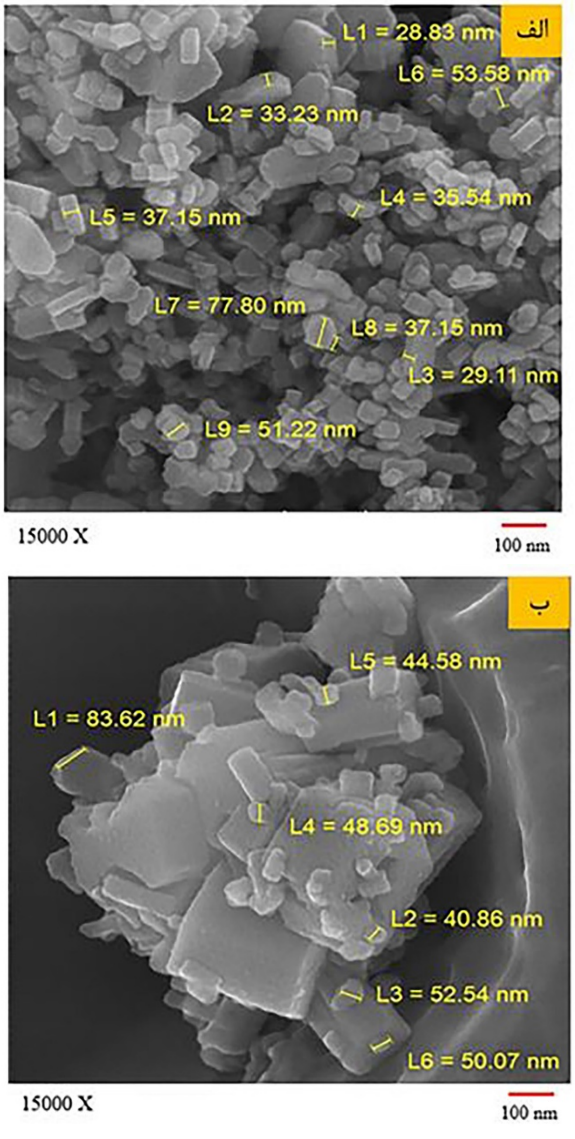
همان طور که در شکل‌های ۸ و ۹ دیده می شود، ثابت نگه‌داشتن درصد تقویت‌کننده و افزودن Zr و CeO_2 در کامپوزیت‌ها، افزایش استحکام نهایی و کرنش را به‌دنبال دارد. در نمونه با ۵ درصد وزنی تقویت‌کننده، افزودن ۰/۲۵ درصد وزنی Zr و ۰/۵ درصد وزنی CeO_2، (T2-E)، بهبود استحکام کششی و کرنش تا اندازه ۳۵۸ مگاپاسکال و ۱۸ درصد را نشان می‌دهد که در مقایسه با نمونه بدون افزودنی (T1-E)، به‌ترتیب، ۹/۵ و ۳۸/۵ درصد، بیشتر است. همچنین، افزودن ۱ درصد وزنی Zr و CeO_2، (T3-E)، افزایش ۲۲ درصدی استحکام کششی و ۷٦/۹ درصدی کرنش را در مقایسه با نمونه T1-E نشان می‌دهد. در حالت مشابه، در نمونه با ۱۰ درصد وزنی TiB_2، افزودن ۰/۲۵ درصد وزنی Zr و ۰/۵ درصد وزنی CeO_2، (T5-E)، استحکام کششی و کرنش، در مقایسه با نمونه بدون افزودنی (T4-E)، به‌ترتیب ۷ و ٥٤/۸ درصد، بیشتر است.

شکل ۱۰، شکل‌گیری فاز Al_3Zr در زمینه را نشان می‌دهد. نتایج حاصل از EDS برای نقطه B، نشان می‌دهد که درصد اتمی موجود برای Zr و Al، طبق روابط استوکیومتری است.



شکل ۱۰. الف) تصویر میکروسکوپی نمونه T2-E و ب) آنالیز EDS نقطه B

نمونه T6-E، به‌منظور بررسی تأثیر عملیات حرارتی بر خواص کششی، مورد آزمایش قرار گرفت. نتایج نشان داد انجام مرحله آنیل، باعث کاهش استحکام کششی و افزایش کرنش می‌شود. ازبین رفتن کارسختی به‌دست‌آمده از مرحله اکستروژن گرم، عامل کاهش استحکام کششی است [۲٤]. همچنین، خنک‌کردن نمونه در کوره، باعث افزایش اندازه دانه شده که طبق رابطه هال - پچ، کاهش استحکام کششی را به‌دنبال داشت [۲۵]. شکل ۱۱ الف و ب، به‌ترتیب، تصاویر SEM نمونه‌های T5-E و T6-E را نشان می‌دهد. در این تصاویر، اندازه نانوذرات تقویت‌کننده TiB_2 مشخص است. همان‌طور که مشاهده می‌شود متوسط اندازه نانوذرات TiB_2 در نمونه T6-E، در مقایسه با نمونه T5-E، بزرگ‌تر است که علت آن، عملیات حرارتی آنیل است.



شکل ۱۱. تصاویر SEM از نمونه‌های الف) T5-E و ب) T6-E

۳-۵- بررسی سطوح شکست

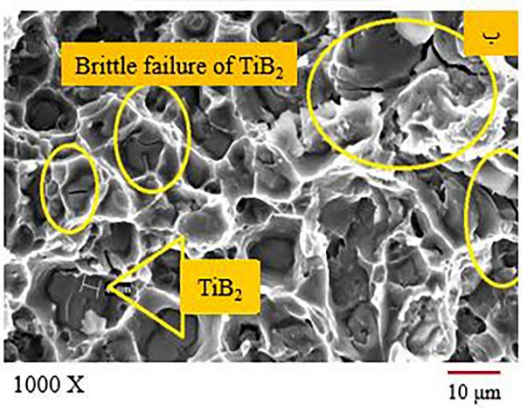
شکل ۱۲، تصاویر سطوح شکست آلیاژ Al5083 بدون ذرات تقویت‌کننده (T0-E) را نشان می‌دهد. در این نمونه، با توجه به اندازه و عمق نواحی شکست، نوع شکست نرم است.



شکل ۱۲. الف) شکست نمونه T0-E و ب) تصویر میکروسکوپی از سطح شکست نمونه T0-E

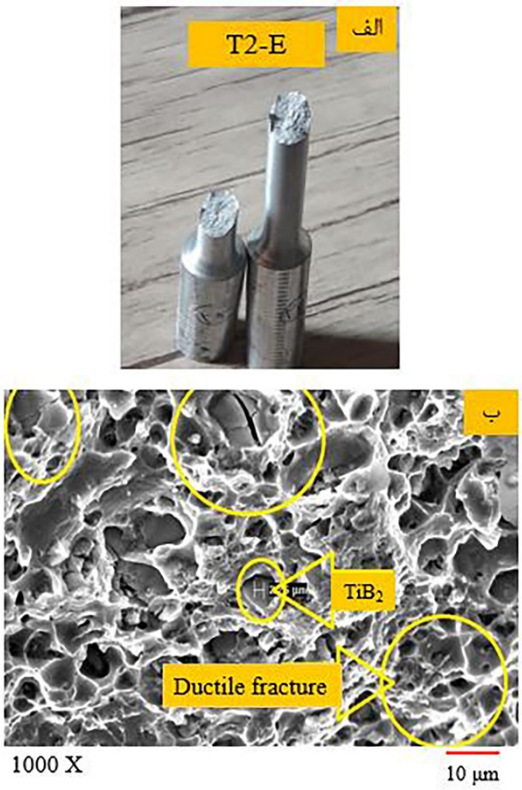
نوع شکست در کامپوزیت T1-E، ترکیبی از دو نوع شکست نرم زمینه و شکست ترد ذرات تقویت‌کننده (دایره‌های زردرنگ) و فاز Al_3Ti است (شکل ۱۳). وجود پیوند قوی در فصل مشترک بین تقویت‌کننده و زمینه، به‌خوبی دیده می‌شود. این چسبندگیِ مناسب زمینه و تقویت‌کننده باعث شده است جدایش بین این دو فاز، در تصاویر میکروسکوپی دیده نشود.





شکل ۱۳. الف) شکست کامپوزیت T1-E و ب) تصویر میکروسکوپی از سطح شکست کامپوزیت T1-E

در نمونه T2-E نیز، شکست ترد ذرات تقویت‌کننده (دایره‌های زردرنگ) به‌وضوح قابل‌رؤیت است. اتصال بین زمینه و تقویت‌کننده، در این شکل، نیز قوی است و جدایش در فصل مشترک این دو فاز دیده نمی‌شود. افزودن Zr، باعث تبدیل ترکیب بین‌فلزی Al_3Ti به TiB_2 می‌شود و کاهش رفتار ترد کامپوزیت و افزایش شکست نرم را به‌دنبال دارد. علت افزایش میزان کرنش در نمونه T2-E، در مقایسه با نمونه T1-E، افزودن Zr است (شکل ۱۴).



شکل ۱۴. الف) شکست کامپوزیت T2-E و ب) تصویر میکروسکوپی از سطح شکست کامپوزیت T2-E

٤- نتیجه‌گیری

در پژوهش حاضر، تأثیر ۵ و ۱۰ درصد وزنی ذرات TiB_2 و افزودنی‌های Zr و CeO_2 بر ریزساختار و خواص کششی کامپوزیت زمینه Al5083 مطالعه شد. نتایج حاصل از این پژوهش به شرح زیر است:

۱- انجام عملیات ثانویه اکستروژن و افزودن ۵ درصد وزنی TiB_2، باعث کاهش تخلخل و افزایش چگالی نمونه‌های ریخته‌گری شد. اما افزودن ۱۰ درصد وزنی TiB_2 به زمینه، باعث افزایش گران‌روی و حفرات داخل کامپوزیت شد که کاهش چگالی نسبت نمونه بدون تقویت‌کننده را به‌دنبال داشت. همچنین، اکستروژن باعث شکستن کلوخه‌ها و توزیع یکنواخت تقویت‌کننده شد.

۲- افزودن تقویت‌کننده TiB_2، باعث افزایش استحکام کششی و کاهش کرنش شد. اما افزودن Zr و CeO_2، به‌علت حذف ترکیب بین‌فلزی Al_3Ti، افزایش هر دو خواص استحکام کششی و کرنش را به‌همراه داشت.

۳- بررسی سطح شکست، افزایش رفتار ترد، با افزودن فاز تقویت‌کننده را نشان داد. اما افزودن Zr و CeO_2، افزایش شکست نرم، در مقایسه با شکست ترد را نشان داد.

۵- سپاسگزاری

از تمامی اساتیدی که ما را در امر پژوهش و نگارش این مقاله یاری کردند، بسیار سپاسگزاریم. همچنین، از حمایت‌های دانشگاه صنعتی مالک اشتر نیز کمال تشکر را داریم.

مراجع

1. Zarghami, F., Farashiani, A., Razavi, M., "The effect of V_2O_5 addition on the microstructure and mechanical properties of Al-V_2O_5 composites prepared by spark plasma sintering", ***Journal of Advanced Materials and Technologies (JAMT)***, Vol. 7, No. 3, (2018), 43-54. https://www.jamt.ir/article_91773.html?lang=en
2. Abdollahi Azghan, M., Eslami-Farsani, R., "Experimental investigation of effect of thermal cycling and metal surface treatment on flexural properties laminate composite of aluminium-epoxy/basalt fibers", ***Modares Mechanical Engineering***, Vol. 17, No. 8, (2017), 369-376. http://mme.modares.ac.ir/article-15-12103-en.html
3. Xin-Min, M., Rui-Juan, X., Hao, W., Wei-Min, W., "Electronic structure and chemical bond of titanium diboride", ***Journal of Wuhan University of Technology-Materials Science Edition***, Vol. 18, No. 2, (2003), 11-14. https://doi.org/10.1007/BF02838790
4. Hashim, J., Looney, L., Hashmi, M., "Metal matrix composites: Production by the stir casting method", ***Journal of Materials Processing Technology***, Vol. 92-93, (1999), 1-7. https://doi.org/10.1016/S0924-0136(99)00118-1
5. Reddy, M. P., Shakoor, R. A., Parande, G., Manakari V., Ubaid, F., Mohamed, A., Gupta, M., "Enhanced performance of nano-sized SiC reinforced Al metal matrix nanocomposites synthesized through microwave sintering and hot extrusion techniques", ***Progress in Natural Science: Materials International***, Vol. 27, No. 5, (2017), 606-614. https://doi.org/10.1016/j.pnsc.2017.08.015
6. Xue, J., Wang, J., Han, Y., Li, P., Sun, B., "Effects of CeO_2 additive on the microstructure and mechanical properties of in situ TiB_2/Al composite", ***Journal of Alloys and Compounds***, Vol. 509, No. 5, (2011), 1573-1578. https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2010.10.152
7. Li, H., Wang, X., Chai, L., Wang, H., Chen, Z., Xiang, Z., Jin, T., "Microstructure and mechanical properties of an in-situ TiB_2/Al-Zn-Mg-Cu-Zr composite fabricated by Melt-SHS process", ***Materials Science and Engineering: A***, Vol. 720, (2018), 60-68. https://doi.org/10.1016/j.msea.2018.02.025
8. Wang, Y., Fang, C., Zhou, L., Hashimoto, T., Zhou, X., Ramasse, Q., Fan, Z., "Mechanism for Zr poisoning of Al-Ti-B based grain refiners", ***Acta Materialia***, Vol. 164, (2019), 428-439. https://doi.org/10.1016/j.actamat.2018.10.056
9. Hosseini, S. A., Ranjbar, K., Dehmolaei, R., Amirani, A. R., "Fabrication of Al5083 surface composites reinforced by CNTs and cerium oxide nano particles via friction stir processing", ***Journal of Alloys and Compounds***, Vol. 622, (2014), 725-733. https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2014.10.158
10. Tsuo, Y., Yoshida, K., Atsuta, M., "Effects of alumina-blasting and adhesive primers on bonding between resin luting agent and zirconia ceramics", ***Dental Materials Journal***, Vol. 25, No. 4, (2006), 669-674. https://doi.org/10.4012/dmj.25.669
11. Hashim, J., Looney, L., Hashmi, M. S. J., "The wettability of SiC particles by molten aluminium alloy", ***Journal of Materials Processing Technology***, Vol. 119, No.1-3, (2001), 324-328. https://doi.org/10.1016/S0924-0136(01)00975-X
12. Akhlaghi, A., Noghani, M., Emamy, M., "The effect of La-intermetallic compounds on tensile properties of Al-15 % Mg_2Si in-situ composite", ***Procedia Materials Science***, Vol. 11, (2015), 55-60. https://doi.org/10.1016/j.mspro.2015.11.085
13. Alemi Ardakani, E., Kalantar, M., Mosallaee Pour, M., Ghasemi Banad Kouki, S., "Production and characterization of in-situ Al-Mn-Al_2O_3 composite produced in Al-MnO_2 system", ***Journal of Science and Technology of Composites***, Vol. 3, No.3, (2016), 277-284. http://jstc.iust.ac.ir/article_21374.html
14. Alipour, M., Eslami-Farsani, R., "Investigation of the microstructure and hardness of cast AA7068 nanocomposite reinforced with SiC nanoparticles", ***Journal of Science and Technology of Composites***, Vol. 5, No. 4, (2019), 461-468. http://jstc.iust.ac.ir/article_30795_en.html
15. Hedayatian, M., Vahedi, K., Nezamabadi, A., Momeni, A., "Effect of graphene oxide reinforcement on the ballistic properties of Al6061- nanocomposites", ***Journal of Science and Technology of Composites***, Vol. 6, No. 3, (2019), 401-410. http://jstc.iust.ac.ir/article_36092_en.html
16. Feng, C. F., Froyen, L., "Microstructures of in situ Al/TiB_2 MMCs prepared by a casting route", ***Journal of Materials Science***, Vol. 35, No. 4, (2000), 837-850. https://doi.org/10.1023/A:1004729920354
17. Wang, M., Chen, D., Chen, Z., Wu, Y., Wang, F., Ma, N., Wang, H., "Mechanical properties of in-situ TiB_2/A356 composites", ***Materials Science and Engineering: A***, Vol. 590, (2013), 246-254. https://doi.org/10.1016/j.msea.2013.10.021
18. Bathula, S., Anandani, R. C., Dhar, A., Srivastava, A., "Microstructural features and mechanical properties of Al 5083/SiCp metal matrix nanocomposites produced by high energy ball milling and spark plasma sintering", ***Materials Science and Engineering: A***, Vol. 545, (2012), 97-102. https://doi.org/10.1016/j.msea.2012.02.095
19. Chen, Z., Wang, T., Zheng, Y., Zhao, Y., Kang, H., Gao, L., "Development of TiB_2 reinforced aluminum foundry alloy based in situ composites–Part I: An improved halide salt route to fabricate Al–5 wt % TiB_2 master composite", ***Materials Science***

20. Suresh, S., Shenbag, N., Moorthi, V., "Aluminium-titanium diboride (Al-TiB_2) metal matrix composites: challenges and opportunities", ***Procedia Engineering***, Vol. 38, (2012), 89-97. https://doi.org/10.1016/j.proeng.2012.06.013
21. ASTM E8/E8M-15a, "Standard test methods for tension testing of metallic materials", ***Annual Book of ASTM Standards,*** ASTM International, West Conshohocken, PA, (2015). https://doi.org/10.1520/E0008_E0008M-15A
22. Ehsani, N., Abdi, F., Abdizadeh, H., Baharvandi, H. R., "The effect of TiB_2 powder on microstructure and mechanical behavior of Al-TiB_2 metal matrix composites", ***Proceedings of SPIE 6423, International Conference on Smart Materials and Nanotechnology in Engineering***, Vol. 6423, (2008), 642369. https://doi.org/10.1117/12.791738
23. Tee, K. L., Lu, L., Lai, M. O., "In situ stir cast Al–TiB_2 composite: processing and mechanical properties", ***Materials Science and Technology***, Vol. 17, No. 2, (2001), 201-206. https://doi.org/10.1179/026708301101509863
24. Tahreen, N., Zhang, D. F., Pan, F. S., Jiang, X. Q., Li, D. Y., Chen, D. L., "Hot deformation and work hardening behavior of an extruded Mg–Zn–Mn–Y alloy", ***Journal of Materials Science & Technology***, Vol. 31, No. 12, (2015), 1161-1170. https://doi.org/10.1016/j.jmst.2015.10.001
25. Crimp, M. A., Vedula, K., "The relationship between cooling rate, grain size and the mechanical behavior of B_2Fe-Al alloys", ***Materials Science and Engineering: A***, Vol. 165, No. 1, (1993), 29-34. https://doi.org/10.1016/0921-5093(93)90623-M

فصلنامه مواد و فناوری‌های پیشرفته

Journal Homepage: www.jamt.ir

مقاله کامل پژوهشی

طراحی و شبیه‌سازی دیود اثر میدانی با تحرک الکترونی بالا مبتنی بر AlGaN/GaN

تارا غفوری [۱]، نگین معنوی زاده [۲*]، متینه سادات حسینی قیداری [۳]

[۱] دانشجوی دکتری، دانشکده مهندسی برق، دانشگاه صنعتی خواجه نصیرالدین طوسی، تهران، تهران، ایران

[۲] دانشیار، دانشکده مهندسی برق، دانشگاه صنعتی خواجه نصیرالدین طوسی، تهران، تهران، ایران

[۳] کارشناسی، دانشکده مهندسی برق، دانشگاه صنعتی خواجه نصیرالدین طوسی، تهران، تهران، ایران

تاریخچه مقاله:

ثبت اولیه: ۱۳۹۹/۰۷/۰۷

دریافت نسخهٔ اصلاح‌شده: ۱۳۹۹/۰۸/۳۰

پذیرش قطعی: ۱۴۰۰/۰۶/۳۱

کلیدواژه‌ها:

دیود اثر میدانی با تحرک الکترونی بالا،

نسبت جریان روشن به جریان خاموش،

پیوند ناهمگون،

نشت لایه بافر،

لایه جداساز

چکیده طراحان سیستم سعی دارند ملزومات بیشتری را در طراحی بلوکهای ساختاری روی تراشه‌های جدید بگنجانند تا مدارهای مجتمع دیجیتالی قابل اطمینان با چگالی بالا، سرعت کلیدزنی بالا و توان مصرفی پایین ارائه دهند. در این مقاله، افزاره جدیدی به نام «دیود اثر میدانی با تحرک الکترونی بالا» (HEMFED) برپایه AlGaN/GaN با موفقیت طراحی شد. به‌منظور جلوگیری از نشت لایه بافر GaN و کاهش تأثیر مخرب تله‌های این لایه بر رفتار انتقالی گاز الکترون دوبعدی (2-DEG) یک لایه جداساز AlN در ساختار ناهمگون به‌کار برده شد. با این ساختار پیشنهادی، نسبت جریان روشن به خاموش (I_{ON}/I_{OFF}) تا $۱۰^{۷} \times ۴/۸۸$ برابر در مقایسه با همتای ترانزیستور با تحرک الکترونی بالا (HEMT) برپایه AlGaN/GaN، $۱۰^{۸} \times ۸/۲۰$ برابر در مقایسه با همتای ترانزیستور اثر میدانی فلز-اکسید-نیمه‌هادی (MOSFET) و $۱۰^{۴} \times ۹/۰۵$ برابر در مقایسه با همتای دیود اثر میدانی (FED) برپایه Si در ولتاژ تغذیه ۱/۸ ولت بهبود یافت. این برتری، از برقراری یک میدان الکتریکی قوی به میزان ۸۰۰ کیلوولت بر سانتیمتر در ناحیه 2-DEG ساختار ناهمگون پیشنهادی و تسریع حرکت حاملهای الکترون صفحه‌ای در کانال ناشی می‌شود. ازاین‌رو، این افزاره در کاربردهای دیجیتالی سرعت بالا و توان مصرفی پایین قابل استفاده است.

https://doi.org/10.30501/jamt.2021.249841.1125 URL: https://www.jamt.ir/article_126415.html

Original Research Article

Journal of Advanced Materials and Technologies (JAMT): Vol. 10, No. 2, (Summer 2021), 59-69

Design and Simulation of AlGaN/GaN High Electron Mobility Field-Effect Diode

Tara Ghafouri [1], Negin Manavizadeh [2*], Matineh Sadat Hosseini Gheidari [3]

[1] *Ph. D. Student, Faculty of Electrical Engineering, K. N. Toosi University of Technology, Tehran, Tehran, Iran*

[2] *Associate Professor, Faculty of Electrical Engineering, K. N. Toosi University of Technology, Tehran, Tehran, Iran*

[3] *B. Sc., Faculty of Electrical Engineering, K. N. Toosi University of Technology, Tehran, Tehran, Iran*

Paper History:

Received: 2020-09-28

Revised in revised form: 2020-11-20

Accepted: 2021-09-22

Abstract Modern system-on-chip (SoC) designers are trying to include more considerations in designing building blocks to present reliable integrated digital circuits as well as high-density, high-speed, and low-power ones. In this paper, an innovative device so-called High Electron Mobility Field-Effect Diode (HEMFED) is successfully designed based on AlGaN/GaN. To prohibit leakage of GaN buffer layer and

***عهده دار مکاتبات**

نشانی: ایران، تهران، تهران، دانشگاه صنعتی خواجه نصیرالدین طوسی، دانشکده مهندسی برق، **تلفن:** ۰۲۱-۸۴۰۶۲۳۲۵، **دورنگار:** ۰۲۱-۸۴۰۶۲۳۲۵

پیام نگار: manavizadeh@kntu.ac.ir

Please cite this article as: Ghafouri, T., Manavizadeh, N., Hosseini Gheidari, M. S., "Design and simulation of AlGaN/GaN high electron mobility field-effect diode", ***Journal of Advanced Materials and Technologies (JAMT)***, Vol. 10, No. 2, (2021), 59-69. (https://doi.org/10.30501/jamt.2021.249841.1125).

2783-0829/© 2021 The Author(s). Published by MERC.

This is an open access article under the CC BY license (https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/).

Keywords:
High Electron Mobility Field-Effect Diode (HEMFED),
I_{ON}/I_{OFF} Ratio,
Heterojunction,
Buffer Layer Leakage,
Spacer Layer

weaken the impact of the buffer traps on electrical transport properties of two-dimensional electron gas (2-DEG), AlN spacer layer is embedded in the heterostructure. The proposed structure enhances ION/IOFF ratio up to 4.88×10^7 times compared to the AlGaN/GaN High Electron Mobility Field-Effect Transistor (HEMT) counterpart, 8.20×10^8 times compared to the Metal-Oxide-Semiconductor Field-Effect Transistor (MOSFET) counterpart, and 9.05×10^4 times compared to the Si Field-Effect Diode (FED) counterpart, at a supply voltage of VDD = 1.8 V. This superiority of the proposed device is referred to the formation of a strong electric field of 800 kV/cm in 2-DEG and the precipitation of electron sheet carriers in the channel. Accordingly, the proposed device can be utilized in high-speed and low-power digital applications.

https://doi.org/10.30501/jamt.2021.249841.1125 URL: https://www.jamt.ir/article_126415.html

۱- مقدمه

ترانزیستورهای با تحرک الکترونی بالا[1] (HEMTs) از پیوند ناهمگون بین دو نیمه‌هادی با شکاف باند انرژی متفاوت تشکیل شده‌اند. این تفاوت زیاد در شکاف انرژی دو ماده به ایجاد نوعی ناپیوستگی بزرگ در نوار هدایت با رفتاری مشابه چاه کوانتومی منجر می‌شود که باربرهای با تحرک بسیار بالا از آن عبور می‌کنند (گاز الکترونی دوبُعدی[2] (2-DEG)) [۱]. به‌منظور کمینه‌سازی پراکندگی سطحی، ثابت شبکه بلوری هر دو نیمه‌هادی، باید یکسان باشد. در میان ساختارهای ارائه‌شده، ساختارهای ناهمگون نیتریدی، به‌دلیل بازه وسیع شکاف باند، تحرک بالای الکترون، ولتاژ شکست بالا، چگالی بار صفحه‌ای بالا، رسانایی حرارتی بالا و قطبش پیزوالکتریکی از اهمیت ویژه‌ای برخوردارند [۲]. تاکنون، تلاش‌های فراوانی برای بهبود عملکرد این ساختارها انجام شده است. چن[3] و همکاران [۳]، یک دیود اثر میدانی[4] (FED) یکسوساز سازگار با HEMT AlGaN/GaN پیشنهاد دادند که با اتصال آند دیود به گیت شاتکی HEMT، ولتاژ روشنایی یکسوساز (به‌جای تغییر با سد شاتکی[5]) با ولتاژ آستانه HEMT تنظیم می‌شد و بدین‌ترتیب، به ولتاژ شکست بالایی دست یافتند. همچنین لی[6] و همکاران [۴]، یک دیود سد شاتکی مبتنی بر GaN روی یک لایه بافر متشکل از کامپوزیت AlGaN/AlN ساختند که به کاهش جریان نشتی تا حدود ۰/۲ میکروآمپر، کمک می‌کرد. در دیودهای سد شاتکی اثر میدانی افقی و عمودی با ساختار ناهمگون AlGaN/GaN گزارش‌شده توسط یوشیدا[7] و همکاران [۵]، از یک پشته فلزی Al/Ti برای ایجاد سد شاتکی با ارتفاع کم (به‌منظور دستیابی به ولتاژ روشنایی پایین) و Pt/Au برای ایجاد سد شاتکی مرتفع‌تر (به‌منظور دستیابی به ولتاژ شکست بالا) استفاده شد و بنابراین، نیازمند مراحل ساخت پیچیده‌تری بود. از طرفی، ورود لایه نازک AlN، به حذف اثر پراکندگی ناشی از ناهمواری فصول مشترک و درنتیجه، بهبود خواص انتقالی 2-DEG کمک می‌کرد [۶ و ۷] که در پژوهش حاضر نیز این رویکرد مؤثر به‌کار رفته است.

در ترکیبات گروه III-V، با وجود مزایای اشاره‌شده در مقایسه با فناوری مبتنی بر سیلیکون، با کوچک‌سازی طول گیت به محدوده زیر ۱۰۰ نانومتر، تأثیر کانال کوتاه در هر دو افزاره ترانزیستور اثر میدانی فلز-اکسید-نیمه‌هادی (MOSFET)[8] و HEMT پدیدار می‌شود و با تضعیف کنترل گیت بر کانال، عملکرد این ادوات تحت تأثیر قرار می‌گیرد. بر این اساس، اخیراً ساختارهایی به‌منظور فائق‌آمدن بر آثار ناشی از کاهش مقیاس این ادوات پیشنهاد شده‌اند. از جمله آن‌ها، ترانزیستورهای با پیوند ناهمگون گرافن/مولیبدن دی‌سولفید[9] [۸]، ترانزیستورهای اثر میدانی چندگیتی و تونلی اصلاح‌شده[10] [۹-۱۴] و افزاره‌های مبتنی بر نانوساختارهایی نظیر نانولوله سیلیکونی[11] [۱۵ و ۱۶] و نانولوله کربنی[12] [۱۷]، نانونوار گرافن[13] [۱۸ و ۱۹]، نانوسیم گالیم نیترید[14] [۲۰] و نانوذرات اکسید روی[15] [۲۱] هستند. در میان افزاره‌های پیشنهادی، دیود اثر میدانی سیلیکونی [۲۲]، ضمن تقویت کنترل‌پذیری گیت بر کانال، بسیاری از ویژگی‌های الکتریکی افزاره را در مقایسه با همتای CMOS[16] بهبود داده است. از جمله این پارامترها، نسبت بالای I_{ON}/I_{OFF} در FED است که با اتلاف توان کمتر و

[1] High-Electron Mobility Transistor
[2] Two-Dimensional Electron Gas
[3] Chen
[4] Field-Effect Diode
[5] Schottky Barrier
[6] Lee
[7] Yoshida

[8] Metal-Oxide Semiconductor Field-Effect Transistor
[9] Graphene/Molybdenum Disulfide
[10] Multi-Gate/Tunel Field-Effect Transistor (MG/TFET)
[11] Silicon Nanowire
[12] Carbon Nanotube
[13] Graphene Nanoribbon
[14] Gallium Nitride Nanowire
[15] Zinc Oxide Nanoparticles
[16] Complementary Metal-Oxide-Semiconductor

حاصل ضرب انرژی در تأخیر (EDP)[1] همراه است. این نسبت برای نمونه‌های SOI-FED[2]، به‌دلیل رخ‌ندادن انسداد و تأثیر الکترون داغ، حداقل به اندازه ۲ مرتبه بزرگ‌تر از نمونه‌های SOI-MOSFET متناظر است [۲۳]. همچنین، پاسخ کلیدزنی سریع بین حالات روشن و خاموش افزاره، به‌دلیل زمان کوتاه تأخیر گیت ذاتی، به کمک FED حاصل می‌شود [۲۴]. این دو مؤلفه مهم (فرکانس بالا و توان مصرفی پایین) سبب شده تا این افزاره نانومقیاس در بلوک‌های ساختاری مدارهای مجتمع دیجیتال به‌کار رود [۲۵]. از جمله مدارهای طراحی‌شده به کمک FED می‌توان به مدارهای محافظت تخلیه الکترواستاتیکی [۲۶]، مدل‌سازی گیت‌های منطقی [۲۷]، مالتی پلکسر [۲۸]، حافظه‌های TRAM[3] [۲۹]، SRAM[4] [۳۰ و ۳۱] و DRAM[5] [۳۲] اشاره کرد. قابل ذکر است تمامی افزاره‌های FED واقع در یک تراشه واحد، هم‌زمان، توسط فرایندهای ساخت سازگار با CMOS حاصل می‌شوند [۲۷].

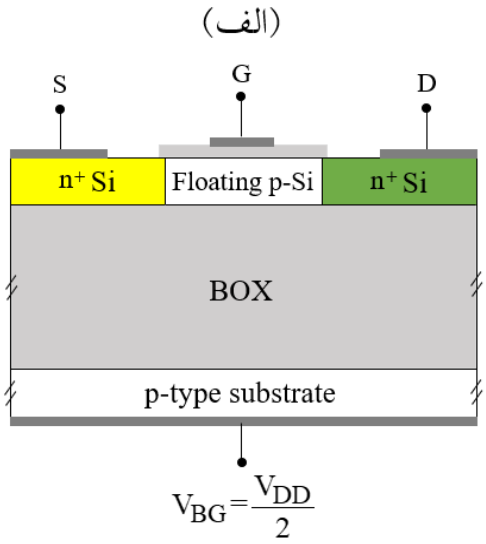
در این پژوهش، برای نخستین‌بار، افزاره‌ای مبتنی بر ترکیبات نیتریدی پیشنهاد شده است که ضمن حذف تأثیر نامطلوب ناشی از کوچک‌سازی ادوات MOSFET و HEMT مرسوم، سرعت کلیدزنی بالاتر با قابلیت استفاده در مدارهای دیجیتالی با چگالی بالا را محقق می‌سازد.

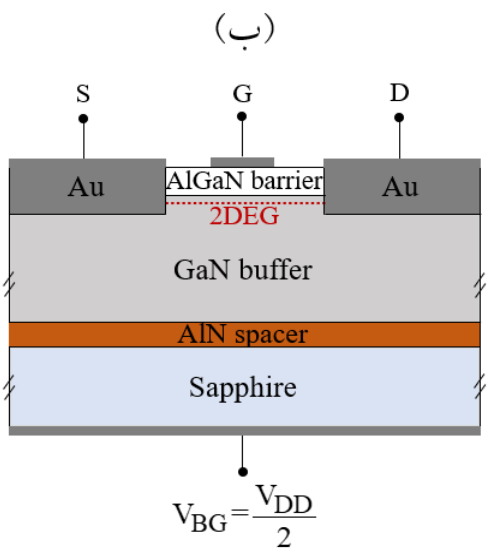
۲- ساختار افزاره و پارامترهای شبیه‌سازی

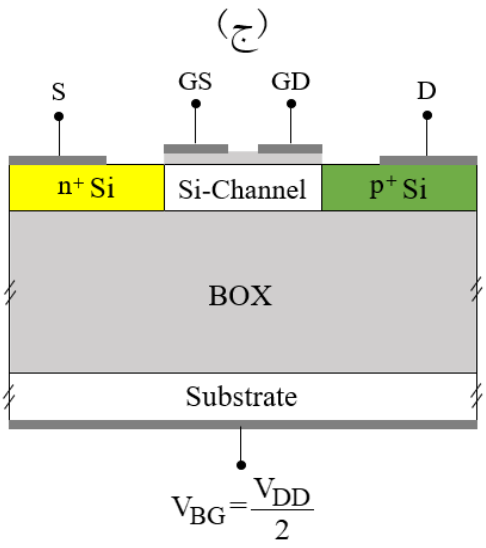
ساختار یک FED مشابه ساختار MOSFET است، با این تفاوت که در قسمت بالای کانال، دو گیت مجزا (GS و GD) قرار گرفته و نواحی سورس و درین، آلایش متفاوتی دارند؛ به این صورت که آلایش ناحیه درین از نوع p^+ و ناحیه سورس از نوع n^+ است [۲۳]. FED قادر است به‌عنوان عنصر تقویت‌کننده یا کلید دیجیتالی عمل کند تا ولتاژ خروجی با ولتاژهای گیت، مدوله شده و با تنظیم ولتاژ گیت‌ها به‌طور مناسب، از انعطاف‌پذیری و کنترل بالایی بر نواحی زیر گیت‌ها برخوردار باشد [۲۵]. هریک از این نواحی، در اثر القای حامل‌ها توسط یکی از گیت‌ها در کانال آلایش‌نشده FED ایجاد می‌شود و با اعمال ولتاژ به گیت‌ها، می‌توان نوعی پیوند pn القایی با قابلیت تنظیم حامل‌ها تشکیل داد. لایه نیمه‌هادی، ذاتی و به اندازه کافی نازک است تا اثر مقاومت شانت در زیر کانال بین سورس و درین کاهش یابد. ساختار پیشنهادی AlGaN/GaN HEMFED نیز مشابه ساختار AlGaN/GaN HEMT دوگیتی است و نواحی سورس و درین از جنس GaN دارای آلایش‌های سنگین n^+ و p^+ هستند. ورود لایه جداساز AlN در ساختار ناهمگون به افزایش عمق چاه کوانتومی و به دنبال آن، کاهش پراکندگی (شامل ناهمواری‌های فصل مشترک، پراکندگی ناخالصی بدنه و ...)، بهبود تحرک باربرهای الکترونی در کانال 2-DEG و افزایش I_{ON} کمک می‌کند [۶]. اتصال گیت شاتکی به AlGaN، دارای ولتاژ داخلی بیشتری در مقایسه با اتصال مشابه در GaN است. بنابراین، چنین ساختاری کاهش نویز را تضمین می‌کند [۳۳]. همچنین، شکاف باند انرژی کوچک‌تر GaN در مقایسه با AlGaN، ایجاد اتصال اهمی با مقاومت پایین به نواحی سورس و درین GaN در افزاره پیشنهادی را محقق می‌سازد. طرحواره ساختارهای مذکور در شکل ۱ ترسیم شده است. پارامترهای هندسی MOSFET و FED براساس فناوری ۱۸۰ نانومتر [۳۴] اتخاذ شده است که یکی از ویژگی‌های آن، تطابق بازه مجاز ولتاژهای کاری با ولتاژهای منطقی استاندارد است. در افزاره Si-FED و ساختار پیشنهادی AlGaN/GaN HEMFED، طول سورس/درین برابر با ۲۲۰ نانومتر، طول گیت‌های GS و GD برابر با ۸۷ نانومتر و فاصله بین آن دو، ۵ نانومتر است. ضخامت لایه‌های حائل AlGaN، بافر GaN، جداساز AlN و زیرپایه یاقوت کبود[6] در ادوات HEMT و HEMFED، به‌ترتیب، برابر با ۱۵، ۱۶۰، ۱۵ و ۱۰۰ نانومتر است. طول وعرض تمامی افزاره‌های مورد بررسی، به‌ترتیب، ۶۲۰ نانومتر و ۱ میکرومتر درنظر گرفته شده است. در افزاره‌های سیلیکونی مورد بررسی، غلظت آلایش Si، در نواحی سورس/درین، 10^{19} بر سانتی‌مترمکعب و در کانال FED، ذاتی یا با آلایش سبک درنظر گرفته می‌شود. در افزاره‌های مورد بررسی با ساختار ناهمگون، غلظت آلایش GaN در نواحی سورس/درین، 10^{21} بر سانتی‌مترمکعب و در لایه بافر، 10^{14} بر سانتی‌مترمکعب است. غلظت آلایش‌دهنده

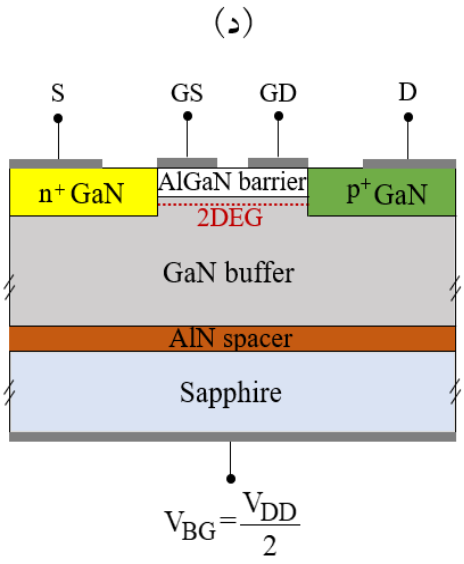
[1] Energy-Delay Product
[2] Silicon-On-Insulator-Field-Effect Diode
[3] Thyristor Random-Access Memory
[4] Static Random-Access Memory
[5] Dynamic Random-Access Memory
[6] Sapphire

AlGaN نیز 10^{16} بر سانتی‌مترمکعب است. در تمام افزاره‌های مورد بررسی، ولتاژهای تغذیه توان پایه و گیت پشتی، به‌ترتیب، ۱/۸ و ۰/۹ ولت است و شبیه‌سازی‌ها در دمای ۲۷ درجه سلسیوس انجام می‌شوند.









شکل ۱. طرحواره ساختارهای (الف) n-MOSFET، (ب) AlGaN/GaN HEMT، (ج) Si-FED و (د) AlGaN/GaN HEMFED

شبیه‌سازی‌ها با استفاده از ابزار Silvaco TCAD، برای حل مسائل مربوط به نفوذ-رانش در نیمه‌هادی و به‌منظور طراحی افزاره پیشنهادی انجام می‌شوند. مدل‌های فیزیکی، شامل تحرک وابسته به غلظت، تحرک وابسته به میدان‌های الکتریکی عرضی، مدل‌های بازترکیب شاکلی-رید-هال[1] و اوژه[2]، مدل‌های وابسته به تابع فرمی-دیراک[3]، باریک‌کردن شکاف باند و مدل لمباردی سی وی تی[4]، برای بسط مؤلفه‌های مربوط به تحرک باربرها هستند [۳۵]. عبور باربرها از یک چاه الکترون دوبُعدی بسیار نازک و کوانتیزه‌شدن کانال در جهت y در ادوات AlGaN/GaN HEMT مرسوم و AlGaN/GaN HEMFED پیشنهادی، می‌تواند موجب ظهور آثار کوانتومی نظیر پیدایش سطوح انرژی مجاز و زیرباندهایی در راستای کوانتیدگی شود [۳۶]. ازاین‌رو، در شبیه‌سازی این دو افزاره، از مدل‌های کوانتومی شرودینگر-پواسون و ون‌دورت[5] نیز، در کنار مدل‌های مذکور، استفاده شده است. ابعاد هندسی و پارامترهای فیزیکی به‌کاررفته در این پژوهش، با شبیه‌سازی افزاره‌های FED و MOSFET، مطابق مرجع [۳۱]، کالیبره شدند.

[1] Shockley-Read-Hall
[2] Auger
[3] Fermi-Dirac
[4] Lombardi CVT
[5] Van Dort

ساختار ناهمگون AlGaN/GaN HEMFED پیشنهادی، قابلیت اجرای عملی نیز دارد. با رشد لایه‌های بلوری AlN، GaN با آلایش غیرعمدی[1] و AlGaN با آلایش نوع n (مانند Si)، به‌ترتیب، روی یک بستر یاقوت کبود، سیلیکون کاربید و یا سیلیکون، به شیوه رشد بلوری[2] نظیر لایه‌نشانی شیمیایی بخار آلی فلزی[3] در دماهای بالا (۱۱۰۰-۱۲۰۰ درجه سلسیوس) یا برآرایی به روش پرتو مولکولی[4] مشابه فرایند ساخت یک نمونه همتای AlGaN/GaN HEMT گزارش‌شده در مرجع [۳۷]، می‌توان افزاره پیشنهادی را درعمل محقق کرد. در چنین آرایشی، یک لایه گاز الکترون دوبُعدی در نزدیکی فصل مشترک بین GaN و AlGaN در سمت GaN، به‌دلیل اختلاف شکاف باند انرژی میان این دو ماده، تشکیل می‌شود. به کمک زدایش انتخابی، پنجره‌هایی در نواحی سورس و درین باز می‌شوند (به کمک زدایش یون فعال[5] با استفاده از گاز BCl_3، بدنه نیمه‌هادی عمیق‌تر از لایه n-AlGaN و لایه 2-DEG درون UID-GaN، مطابق شکل ۱ (د)، زدایش می‌شود). به دنبال آن، لایه‌های n^+-GaN و p^+-GaN با رشد بلوری مجدد، به روش MOCVD، مناطق زدایش‌شده مجاور بخش محدب ایجادشده از مرحله قبل را اشغال می‌کنند. سپس، یون‌هایی نظیر آرگون به‌طور انتخابی کاشته می‌شوند تا بدین‌وسیله باربرهای موجود در مناطق خارج از ناحیه فعال GaN HEMFED را به‌منظور عایق‌سازی افزاره، جبران کنند. درنهایت، الکترودهای سورس/درین و گیت‌های GS و GD با فرایند لیفت-آف[6]، به دنبال روش لایه‌نشانی فیزیکی بخار[7] و ترمیم حرارتی، اجرا می‌شوند.

براساس ولتاژهای اعمالی به پایانه‌های FED، پنج حالت کاری مطابق جدول ۱ درنظر گرفته و وضعیت افزاره مشخص می‌شود. به‌منظور بایاس FED در وضعیت خاموش (شکل‌گیری ساختار n^+pnp^+ یا p^+npn^+ از سورس تا درین، بسته به علامت V_{DS}) و وضعیت روشن (شکل‌گیری ساختار n^+npp^+ یا p^+pnn^+ از سورس تا درین بسته به علامت V_{DS})، ولتاژهای $-V_{DD}$ و $+V_{DD}$ متناظر با منطق «۰» و «۱»، درحالی‌که هیچ ولتاژی به ترمینال گیت پشتی وارد نشود (V_{BG}=۰)، به پایانه گیت جلویی اعمال می‌شوند. در طراحی مدارهای مجتمع دیجیتالی با مقیاس بسیار بزرگ (VLSI)[8] مبتنی بر FED، با اعمال نصف ولتاژ تغذیه به گیت پشتی نیز می‌توان حالت‌های عملکردی مذکور را محقق ساخت. مزیت این رویکرد ($V_{BG}=V_{DD}/2$) این است که دیگر نیازی به اعمال ولتاژهای متقارن به پایانه گیت جلویی نیست و این بار، منطق‌های «۰» و «۱»، به‌ترتیب، معادل ۰ و V_{DD} هستند. بدین‌ترتیب، توان مصرفی مدار نیز کاهش می‌یابد [۲۲].

جدول ۱. حالت‌های کاری دیود اثر میدانی و ساختار از S تا D

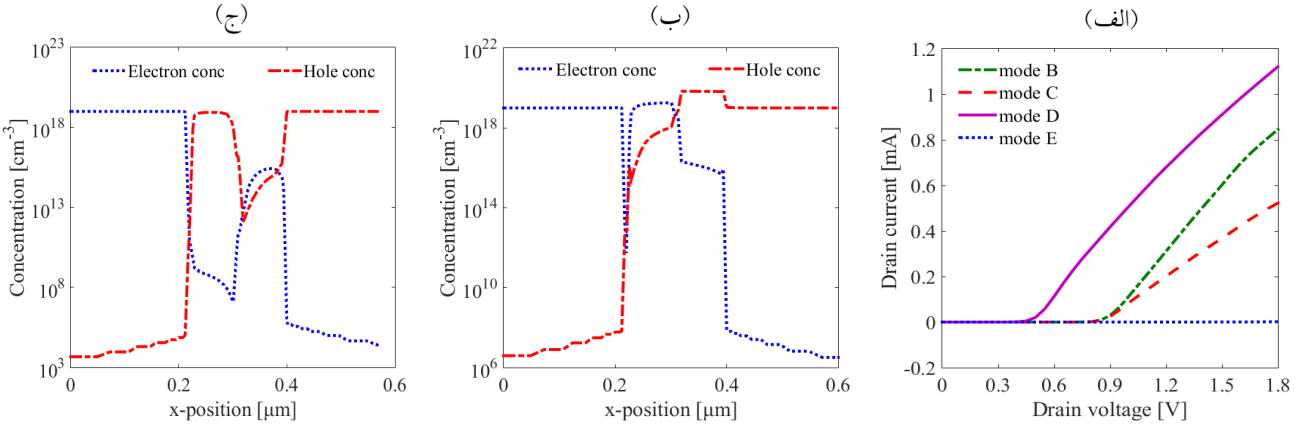
وضعیت	ساختار	V_{GD}	V_{GS}	V_{DS}	حالت
خاموش	$n^+\times\times p^+$	×	×	"۰"	A
روشن	n^+npp^+	"۰"	"۱"	"۱"	B
روشن	n^+nnp^+	"۱"	"۱"	"۱"	C
روشن	n^+ppp^+	"۰"	"۰"	"۱"	D
خاموش	n^+pnp^+	"۱"	"۰"	"۱"	E

۳- نتایج و بحث

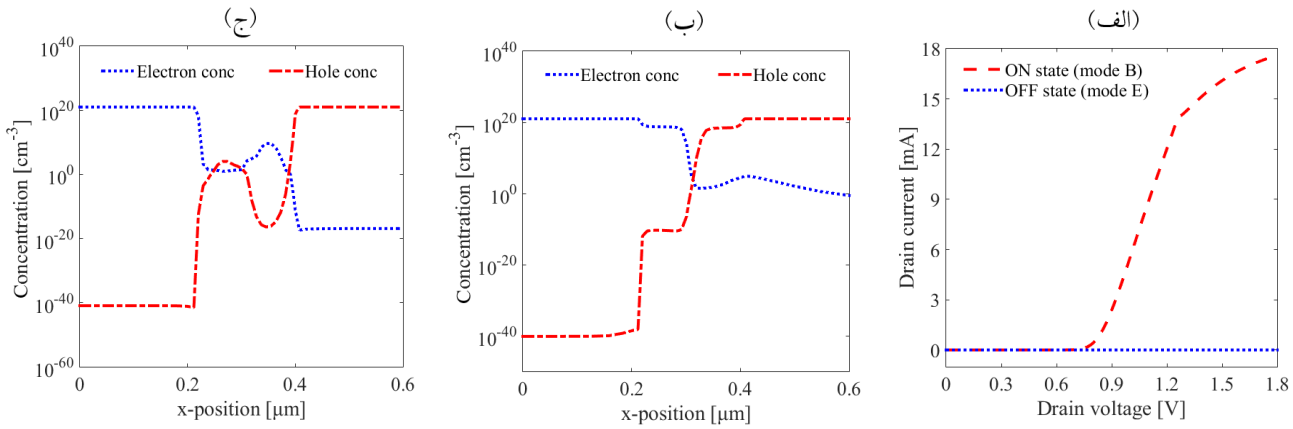
با توجه به ویژگی‌های ساختاری و حالت‌های کاری FED، افزاره پیشنهادی در مقایسه با آرایش ترانزیستورهای اثر میدانی دوگیتی مزایای زیر را دارد: مطابق حالت‌های n^+nnp^+ و n^+ppp^+ در جدول ۱، امکان مدل‌سازی رفتار شبه nMOS و شبه pMOS، به‌ترتیب، به کمک این افزاره فراهم می‌شود، به‌طوری که حالت‌های B، C و D را می‌توان متناظر با حالت خطی درنظر گرفت و حالت D را متناظر با حالت قطع ترانزیستور اثر میدانی پنداشت (شکل ۲ (الف)). در این میان، به‌دلیل این‌که در حالت خطی B در مقایسه با سایر حالت‌های روشن، احتمال کمتری برای بازترکیب حامل‌های الکترون و حفره در کانال ساختار n^+npp^+ وجود دارد، این حالت بر سایر حالت‌ها برتری دارد. بنابراین، ادامه شبیه‌سازی‌ها با درنظرگرفتن حالت B به‌عنوان وضعیت روشن و حالت E به‌عنوان وضعیت خاموش افزاره انجام می‌شود. نمودارهای تراکم الکترون و حفره در حالت‌های کاری Si-FED در شکل

[1] Unintentionally Doped (UID) GaN
[2] Epitaxially Crystal Growth
[3] Metal Organic Chemical Vapor Deposition (MOCVD)
[4] Molecular Beam Epitaxy (MBE)
[5] Reactive Ion Etching (RIE)
[6] Lift-Off
[7] Physical Vapor Deposition (PVD)
[8] Very Large-Scale Integration

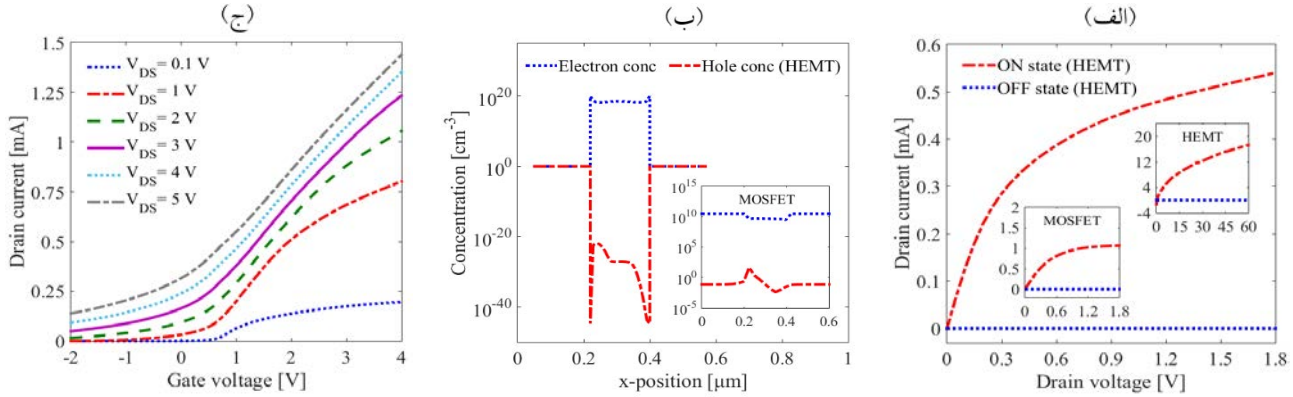
۲ (ب) و (ج) و در فاصله ۱ نانومتری زیر گیت‌های GS و GD، از سورس تا درین، ترسیم شده‌اند. جریان خروجی در ساختارهای ناهمگون به تراکم حامل‌ها و تحرک آن‌ها وابسته است. از مقایسه ویژگی‌های خروجی ساختارهای Si-FED و AlGaN/GaN HEMFED در شکل‌های ۲ (الف) و ۳ (الف)، نتیجه می‌شود که جریان حالت روشن در افزاره پیشنهادی، در $V_{DS}=V_{DD}$، تا ۱۵ برابر افزایش داشته که از تحرک بالاتر الکترون‌ها در ساختار ناهمگون HEMFED ناشی شده است. نمودارهای تراکم حامل‌های الکترون و حفره، در فاصله ۱ نانومتری زیر لایه AlGaN، از سورس تا درین، در حالت‌های روشن و خاموش در شکل ۳ (ب) و (ج) نمایش داده شده‌اند.



شکل ۲. (الف) ویژگی خروجی و تراکم حامل‌ها در کانال Si-FED در حالت‌های کاری، (ب) روشن (B) و (ج) خاموش (E)



شکل ۳. (الف) ویژگی خروجی و تراکم حامل‌ها در کانال AlGaN/GaN HEMFED در حالت‌های کاری، (ب) روشن (B) و (ج) خاموش (E)



شکل ٤. (الف) ویژگی خروجی، (ب) تراکم حامل‌ها در کانال GaN HEMT و MOSFET و (ج) ویژگی انتقالی HEMT در V_{DS} های متفاوت

مقایسه ویژگی‌های خروجی افزاره HEMFED با نمونه‌های متناظر ترانزیستور اثر میدانی MOSFET و HEMT در شکل‌های ۳ (الف) و ٤ (الف)، حاکی از افزایش جریان حالت روشن افزاره پیشنهادی، به‌ترتیب، تا ۱۷ و ۳۳ برابر در $V_{DS}=V_{DD}$ است. در جدول ۲، کمیت‌های عددی جریان حالت روشن، جریان حالت خاموش و نسبت آن‌ها ارائه شده است که قابلیت کلیدزنی هر چهار افزاره مورد بررسی در این کار را نشان می‌دهد. در ولتاژی معین، ساختار ناهمگون AlGaN/GaN HEMFED بیشترین جریان خروجی را حاصل کرده است که نشان می‌دهد این افزاره، علاوه بر قابلیت عملکرد به‌عنوان کلید دیجیتالی (به‌دلیل نسبت I_{ON}/I_{OFF} بالا)، به‌عنوان عامل تقویت‌کننده جریان مستقیم نیز می‌تواند به‌کار رود. تراکم باربرهای الکترون و حفره در کانال این ادوات در شکل ٤ (ب) ترسیم شده است. مطابق شکل ٤ (ج)، در مقادیر پایین V_{DS}، ولتاژ آستانه در GaN HEMT مرسوم حدود ۲- تا ۱- ولت است که در نمونه متناظر HEMFED، تا حدود ۰/۷ ولت افزایش می‌یابد، درنتیجه، مقاومت در برابر نویز را تضمین کرده و با کاهش جریان زیر آستانه، از اتلاف توان جلوگیری می‌کند. تلفات توان در نتیجه نسبت I_{ON}/I_{OFF} بالا، کاهش می‌یابد، ضمن این‌که حذف تغذیه توان با پلاریته[1] منفی در کاهش توان مصرفی نیز تأثیر مطلوبی خواهد گذاشت.

جدول ۲. مقایسه جریان‌های حالت خاموش، روشن و نسبت آن‌ها در افزاره‌های مورد بررسی در ابعاد فناوری ۱۸۰ نانومتر

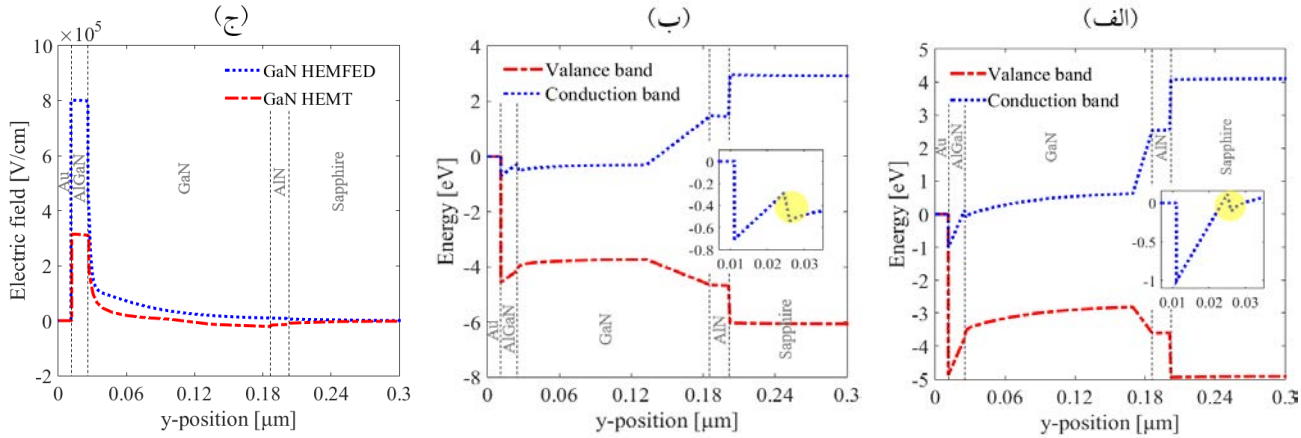
ساختار	nMOS	FED	HEMT	HEMFED
I_{OFF} (nA)	۱۵۰/۰۰	۰/۰۱	۱۲/۰۰	$۱/۹\times۱۰^{-٦}$
I_{ON} (mA)	۱/۱۰	۰/۸۵	۰/۵٤	۱۷/۰۰
I_{ON}/I_{OFF}	$۱/٤\times۱۰^{٤}$	$۱/۲\times۱۰^{۸}$	$۲/۳\times۱۰^{۵}$	$۱/۱\times۱۰^{۱۳}$

نمودار نوارهای انرژی در ساختارهای HEMFED پیشنهادی و HEMT متناظر، به‌ترتیب، در شکل ۵ (الف) و (ب) نمایش داده شده است. کانال 2-DEG، در فصل مشترک GaN و AlGaN، در پیوست شکل ۵ (الف) و (ب) برجسته شده است. اختلاف انرژی بزرگ‌تر در نوار هدایت AlGaN افزاره پیشنهادی HEMFED، در مقایسه با نمونه متناظر HEMT، به پراکندگی کمتر ناخالصی یونیزه شده اشاره دارد که به جریان بیشتر افزاره می‌انجامد. افزایش میدان الکتریکی عرضی در این ناحیه و در ساختار HEMFED تا بیش از ۲/۵ برابر در مقایسه با همتای HEMT نیز حاکی از سرعت بالاتر الکترون‌ها در کانال HEMFED است که امکان عملکرد مطلوب آن را در کاربردهای فرکانس بالا تحقق می‌بخشد (شکل ۵ (ج)).

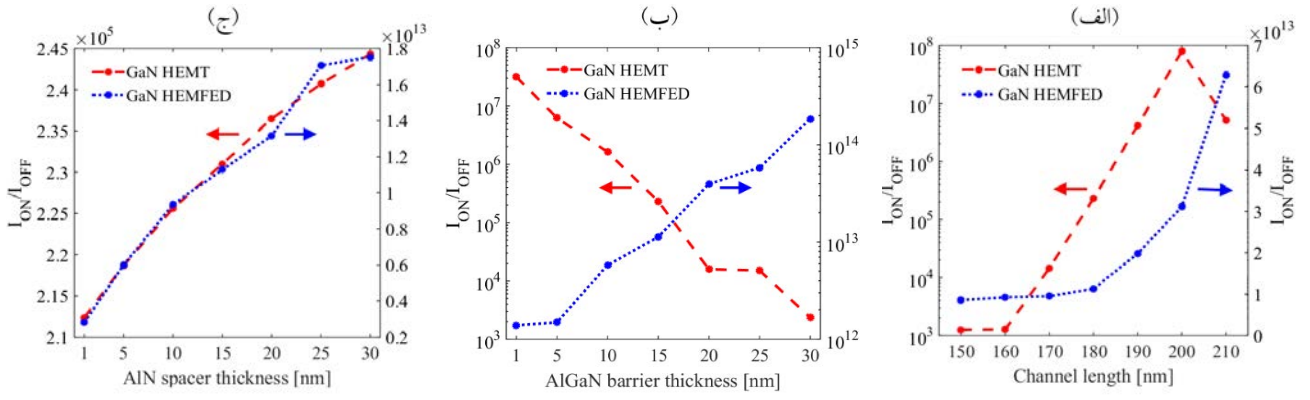
در شکل ٦، معیار عملکردی I_{ON}/I_{OFF}، با تغییر ابعاد هندسی افزاره‌های مورد بررسی نشان داده شده است. با افزایش طول کانال افزاره‌های HEMT و HEMFED، احتمال بازترکیب حامل‌های اقلیت افزایش یافته و بنابراین، I_{OFF} کاهش و I_{ON}/I_{OFF} افزایش می‌یابد. با وجود این، افزایش نسبت I_{ON}/I_{OFF} با طول کانال در افزاره پیشنهادی HEMFED در مقایسه با HEMT مرسوم قابل توجه است. در افزاره‌هایی با کانال طویل، با اعمال V_{DS} ثابت، میدان الکتریکی اعمالی به باربرها در طول کانال کاهش یافته و بدین‌ترتیب، I_{ON} و نسبت I_{ON}/I_{OFF} نیز کاهش می‌یابد (شکل ٦ (الف)). درواقع، این افزایش طول کانال، از سرعت الکترون‌هایی که پیش از این، به‌صورت شبه‌بالستیک از چاه الکترون دوبُعدی گذر می‌کردند، می‌کاهد. مطابق شکل ٦ (ب)، تأثیر ضخامت لایه AlGaN بر رفتار انتقالی حامل‌ها در افزاره‌های HEMT و HEMFED متفاوت است. در ساختار HEMT مرسوم، با اعمال ولتاژ گیت ثابت و افزایش سد AlGaN و فاصله‌گرفتن بارهای قطبش در این لایه، شدت میدان الکتریکی عرضی زیر گیت کاهش می‌یابد که این امر به تضعیف کنترل گیت بر کانال می‌انجامد و تأثیر نامطلوبی بر قابلیت کلیدزنی افزاره (افزایش I_{OFF}) خواهد داشت. اما در افزاره HEMFED، ضمن کنترل مؤثرتر گیت‌های GS و GD بر کانال و تقلیل این تأثیر نامطلوب، با توجه به اختلاف بزرگ‌تر انرژی نوار هدایت و تشکیل چاه کوانتومی عمیق‌تر در AlGaN، مطابق شکل ۵ (الف)، از پراکندگی باربرها کاسته می‌شود و I_{ON} افزایش می‌یابد. درواقع، افزایش میدان الکتریکی عرضی تشکیل شده در این لایه افزاره HEMFED (شکل ۵ (ج))، به هدایت و تجمع بیشتر الکترون‌ها در کانال 2-DEG کمک می‌کند. به‌منظور کاهش اثر تله‌های لایه بافر بر رفتار انتقالی افزاره و دستیابی به تحرک

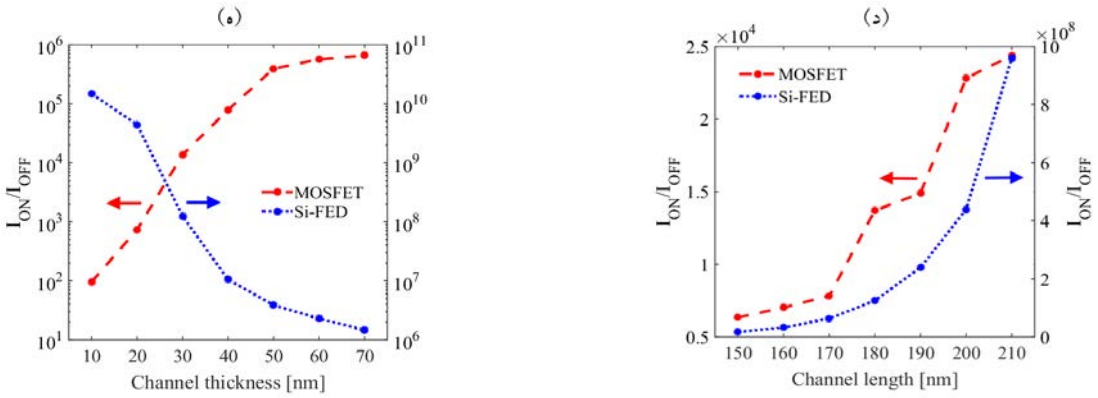
[1] Polarity

بالاتر، یک لایه نازک AlN، درون ساختار تعبیه شده است. به عبارتی، ورود این لایه جداساز به افزایش عمق چاه کوانتومی، کاهش پراکندگی و افزایش تحرک حامل منجر می‌شود و با افزایش ضخامت این لایه، جریان روشن و درنتیجه، نسبت I_{ON}/I_{OFF} در ساختارهای ناهمگون افزایش می‌یابد (شکل ٦ (ج)). شکل ٦ (د) نشان می‌دهد که تأثیر تغییر طول کانال در ادوات برپایه سیلیکون نیز با افزاره‌های برپایه AlGaN/GaN مشابهت دارد، فقط در دیود اثر میدانی مبتنی بر هر دو ماده، افزایش I_{ON}/I_{OFF} در مقایسه با نمونه‌های ترانزیستوری متناظر چشمگیرتر است. علت این اختلاف بدین شرح است: در MOSFET، جریان درین در حالت‌های کاری خطی و اشباع، به‌طور مستقیم به W/L وابستگی دارد و افزایش طول کانال، به کاهش I_{ON} می‌انجامد (عرض ثابت ۱ میکرومتر). با وجود این، کاهش قابل توجه I_{OFF}، درنهایت، موجب افزایش نسبت I_{ON}/I_{OFF} می‌شود. در دیود اثر میدانی (پیوند p-n)، جریان در حالت کاری روشن به‌طور مستقیم به سطح مقطع وابستگی دارد و بنابراین، با افزایش طول کانال Si-FED، I_{ON} افزایش می‌یابد. در حالت خاموش FED نیز افزایش طول کانال، نرخ بازترکیب حامل‌های اقلیت را افزایش می‌دهد و به کاهش I_{OFF} و افزایش I_{ON}/I_{OFF} می‌انجامد. همچنین، تأثیر تغییر ضخامت کانال در ادوات ترانزیستور اثر میدانی و دیود اثر میدانی در نسبت I_{ON}/I_{OFF} متفاوت است (شکل ٦ (ه)). افزایش عمق کانال در MOSFET، به القای بیشتر حامل‌ها، از سورس و درین به داخل کانال، منجر می‌شود و I_{ON} افزایش می‌یابد. در Si-FED، با افزایش عمق کانال در هر دو حالت روشن (حالت B) و خاموش (حالت E)، جریان‌ها افزایش می‌یابند. با وجود این، افزایش I_{OFF} بر افزایش I_{ON} پیشی می‌گیرد و درنهایت، به کاهش نسبت I_{ON}/I_{OFF} می‌انجامد. علت این امر، القای حامل‌های الکترون (حفره) بیشتر، در ناحیه نوع p (n) زیر GS (GD)، در حالت خاموش افزاره و افزایش بازترکیب حامل‌ها، در نواحی زیر گیت‌ها و درنتیجه، افزایش I_{OFF} است.



شکل ۵. ترسیم نوارهای انرژی در ساختارهای (الف) AlGaN/GaN HEMFE، (ب) AlGaN/GaN HEMT و (ج) مقایسه میدان‌های الکتریکی





شکل ٦. نمایش تغییرات نسبت I_{ON}/I_{OFF} برحسب پارامترهای هندسی افزاره‌های مورد بررسی

نتایج حاصل از بررسی تأثیر طول و ضخامت کانال در نسبت I_{ON}/I_{OFF} افزاره‌های n-MOS و Si-FED در نمودارهای (٦ (د) و ٦ (ه))، با گزارش‌های مشابه در مقیاس نانومتر، به‌خوبی مطابقت دارد [۲۳]. به‌علاوه، با توجه به قابلیت کنترل مؤثرتر گیت‌ها بر رفتار باربرهای موجود در کانال FED در مقایسه با MOSFET و وجود پیوند p-n بایاس معکوس در میانه کانال در حالت خاموش FED، اختلاف مرتبه بزرگی جریان‌های خاموشی در این دو افزاره در مقیاس نانومتری محسوس‌تر است. ویژگی I_{ON}/I_{OFF} برحسب طول کانال، برای ساختارهای MOSFET بالک، SOI، دوگیتی [۳۸] و همچنین ترانزیستور اثر میدانی برجسته (FinFET)[1] [۳۹] و ترانزیستور اثر میدانی ساخته شده با نانولوله‌های کربنی (CNTFET)[2] [٤۰] از افزایش این نسبت با افزایش طول کانال افزاره‌ها تا ۱۸۰ نانومتر با بیشینه مقدار، به‌ترتیب، ۵، ٦، ۷، ۷ و ۷ مرتبه بزرگی حکایت دارد. درحالی‌که به‌کارگیری Si-FED، این نسبت را تا بیش از ۸ مرتبه بزرگی افزایش می‌دهد.

٤- نتیجه‌گیری

در این پژوهش، افزاره‌ای به‌نام دیود اثر میدانی با تحرک الکترونی بالا (HEMFED)، مبتنی بر AlGaN/GaN، با قابلیت کاربرد در مدارهای دیجیتالی با چگالی بالا، سرعت بالا و جریان نشتی پایین، در ازای پیچیدگی ساخت معرفی شد. همچنین، ویژگی‌های خروجی و نسبت I_{ON}/I_{OFF} در افزاره پیشنهادی، با ادوات SOI-MOSFET مرسوم، GaN HEMT مرسوم و SOI-FED سیلیکونی، در ابعاد هندسی متفاوت مقایسه شد. نتایج به‌دست‌آمده، برتری افزاره پیشنهادی را از نظر پارامتر عملکردی I_{ON}/I_{OFF}، تا بیش از ٤، ۷ و ۸ مرتبه اندازه بزرگ‌تر، در مقایسه با نمونه‌های متناظر، به‌ترتیب، Si FED، HEMT و MOSFET نشان داد. افزایش اختلاف انرژی نوار هدایت در کانال 2-DEG متناظر با میدان الکتریکی شدید تشکیل شده در این ناحیه، به میزان ۸۰۰ کیلوولت بر سانتی‌متر، بر تحرک بالای الکترون‌ها در کانال افزاره HEMFED مبتنی بر AlGaN/GaN دلالت داشت. علاوه بر مزایای ذکرشده برای دیود اثر میدانی پیشنهادی در این پژوهش، امکان به‌کارگیری افزاره‌های HEMFED مشابه با پارامترهای هندسی یکسان در شبکه‌های بالابرنده و پایین‌برنده مدارهای مبتنی بر این افزاره نیز فراهم شده، که به‌دلیل نسبت W/L یکسان در تمام آن‌ها، به کاهش مساحت و افزایش چگالی روی تراشه‌های نسل جدید کمک می‌کند.

۵- سپاسگزاری

شایسته است از پشتیبانی همکاران حاضر در آزمایشگاه ادوات نانوساختار الکترونیکی دانشکده مهندسی برق دانشگاه خواجه نصیرالدین طوسی در انجام این پژوهش تشکر و قدردانی گردد.

مراجع

1. Mukhopadhyay, S., Kalita, S., "Review on the designs and characteristics of high-electron mobility transistors", ***International Journal of Microwave Engineering and Technology***, Vol. 4, No. 1, (2018), 20-41. https://doi.org/10.37628/ijmet.v4i1.765

[1] Fin Field-Effect Transistor
[2] Carbon Nanotube Field-Effect Transistor

ACS Nano, Vol. 14, No. 3, (2020), 2709-2717. https://doi.org/10.1021/acsnano.9b07207

18. Wong, K. L., Chuan, M. W., Hamzah, A., Rusli, S., Alias, N. E., Sultan, S. M., Lim, C. S., Tan, M. L. P., "Carrier transport of rough-edged doped GNRFETs with metal contacts at various channel widths", ***Superlattices and Microstructures***, Vol. 143, (2020), 106548. https://doi.org/10.1016/j.spmi.2020.106548
19. Dabir, F., Sarraf-Mamoory, R., Riahi-Noori, N., Loeblein, M., Teo, E. H. T., "Synthesis and electrical properties evaluation of three-dimensional graphene", ***Jouurnal of Advanced Materials and Technologies (JAMT)***, Vol. 4, No. 3, (2015), 17-23. https://doi.org/10.30501/JAMT.2637.70303
20. He, Y., Huang, Z., Zhang, M., Wu, M., Mi, M., Wang, C., Yang, L., Zhang. C., Guo, L., Ma, X., Hao, Y., "Temperature-dependent characteristics of AlGaN/GaN nanowire channel high electron mobility transistors", ***Applications and Materials Science***, Vol. 216, No. 16, (2019), 1900396. https://doi.org/10.1002/pssa.201900396
21. Purwaningsih, S. Y., Zainuri, M., Triwikantoro, T., Pratapa, S., Darminto, D., "Structural, optical and defect state analyses of ZnO nanoparticle films", ***International Journal of Engineering***, Vol. 33, No. 5, (2020), 852-860. https://doi.org/10.5829/ije.2020.33.05b.17
22. Raissi, F., "A brief analysis of the field effect diode and breakdown transistor", ***IEEE Transactions on Electron Devices***, Vol. 43, No. 2, (1996), 362-365. https://doi.org/10.1109/16.481742
23. Manavizadeh, N., Raissi, F., Soleimani, E. A., Pourfath, M., Selberherr, S., "Performance assessment of nanoscale field-effect diodes", ***IEEE Transactions on Electron Devices***, Vol. 58, No. 8, (2011), 2378-2384. https://doi.org/10.1109/TED.2011.2152844
24. Manavizadeh, N., Raissi, F., Soleimani, E. A., Pourfath, M., "Geometrical study of nanoscale field effect diodes", ***Semicondoctor Science and Technology***, Vol. 27, No. 4, (2012), 045011. https://doi.org/10.1088/0268-1242/27/4/045011
25. Touchaee, B. J., Manavizadeh, N., "An inverter gate design based on nanoscale S-FED as a function of reservoir thickness", ***IEEE Transactions on Electron Devices***, Vol. 62, No. 10, (2015), 3147-3152. https://doi.org/10.1109/TED.2015.2463099
26. Salman, A. A., Beebe, S. G., Emam, M., Pelella, M. M., Ioannou, D. E., "Field Effect Diode (FED): A novel device for ESD protection in deep sub-micron SOI technologies", ***Proceedings of International Electron Devices Meeting***, San Francisco, CA, USA, 11-13 December 2006, (2006), 1-4. https://doi.org/10.1109/IEDM.2006.346971
27. Touchaee, B. J., Manavizadeh, N., "Design and simulation of low-power logic gates based on nanoscale side-contacted FED", ***IEEE Transactions on Electron Devices***, Vol. 64, No. 1, (2017), 306-311. https://doi.org/10.1109/TED.2016.2626342
28. Ghafouri, T., Manavizadeh, N., "Design and simulation of high-performance 2:1 multiplexer based on side-contacted FED", ***Ain Shams Engineering Journal***, Vol. 12, No. 1, (2021), 709-716. https://doi.org/10.1016/j.asej.2020.05.005
29. Badwan, A. Z., Chbili, Z., Li, Q., Ioannou, D. E., "SOI FED-SRAM cell: Structure and operation", ***IEEE Transactions on Electron Devices***, Vol. 62, No. 9, (2015), 2865-2870. https://doi.org/10.1109/TED.2015.2450693
30. Ghafouri, T., Manavizadeh, N., "Noise-immune 6T SRAM bit-cells based on side-contacted FED", ***IEEE Transactions on Electron Devices***, Vol. 67, No. 12, (2020), 5511-5519. https://doi.org/10.1109/TED.2020.3028342
31. Ghafouri, T., Manavizadeh, N., "Performance comparison of 6T SRAM bit-cells based on side-contacted FED and CMOS", ***Alexandria Engineering Journal***, Vol. 59, No. 5, (2020), 3715-3729. https://doi.org/10.1016/j.aej.2020.06.026
32. Badwan, A. Z., Chbili, Z., Yang, Y., Salman, A. A., Li, Q., Ioannou, D. E., "SOI Field-Effect Diode DRAM cell: Design and operation", ***IEEE Electron Device Letters***, Vol. 34, No. 8, (2013), 1002-1004. https://doi.org/10.1109/LED.2013.2265552
33. Alim, M. A., Jahan, I., Nipu, N. J., Naher, S., Rezazadeh, A. A., "Local mismatch and noise investigation for pre and post multilayer pHEMTs", ***Current Applied Physics***, Vol. 20, No. 12, (2020), 1314-1320. https://doi.org/10.1016/j.cap.2020.09.006

2. Zeng, F., An, J. X., Zhou, G., Li, W., Wang, H., Duan, T., Jiang, L., Yu, H., "A comprehensive review of recent progress on GaN high electron mobility transistors: Devices, fabrication and reliability", ***Electronics***, Vol. 7, No. 12, (2018), 377. https://doi.org/10.3390/electronics7120377
3. Chen, W., Wong, K. Y., Huang, W., Chen, K. J., "High-performance AlGaN/GaN lateral field-effect rectifiers compatible with high electron mobility transistors", ***Applied Physics Leters***, Vol. 92, (2008), 253501. https://doi.org/10.1063/1.2951615
4. Lee, G. Y., Liu, H. H., Chyi, J. I., "High-performance AlGaN/GaN schottky diodes with an AlGaN/AlN buffer layer", ***IEEE Electron Device Letters***, Vol. 32, No. 11, (2011), 1519-1521. https://doi.org/10.1109/LED.2011.2164610
5. Yoshida, S., Li, J., Ikeda, N., Hataya, K., "AlGaN/GaN field effect Schottky barrier diode (FESBD)", ***Physica Status Solidi (c)***, Vol. 2, No. 7, (2005), 2602-2606. https://doi.org/10.1002/pssc.200461300
6. Narang, K., Bag, R. K., Singh, V. K., Pandey, A., Saini, S. K., Khan, R., Arora, A., Padmavati, M. V. G., Tyagi, R., Singh, R., "Improvement in surface morphology and 2DEG properties of AlGaN/GaN HEMT", ***Journal of Alloys and Compounds***, Vol. 815, (2020), 152283. https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2019.152283
7. Ghafouri, T., Salehi, A., Mahmoodnia, H., "Investigating a novel normally-ON AlGaN/GaN capped PHEMT and the effects of cap layers thickness on its gate leakage current", ***Proceedings of 26th Iranian Conference on Electrical Engineering (ICEE)***, Mashhad, Iran, 8-10 May 2018, (2018), 305-310. https://doi.org/10.1109/ICEE.2018.8472634
8. Lee, I., Kim, J. N., Kang, W. T., Shin, Y. S., Lee, B. H., Yu, W. J., "Schottky barrier variable graphene/multilayer-MoS_2 heterojunction transistor used to overcome short channel effects", ***ACS Applied Matererials and Interfaces***, Vol. 12, No. 2, (2020), 2854-2861. https://doi.org/10.1021/acsami.9b18577
9. Banerjee, P., Sarkar, S. K., "3-D analytical modeling of high-k gate stack dual-material tri-gate strained silicon-on-nothing MOSFET with dual-material bottom gate for suppressing short channel effects", ***Journal of Computational Electronics***, Vol. 16, (2017), 631-639. https://doi.org/10.1007/s10825-017-1002-y
10. Dash, D. K., Saha, P., Sarkar, S. K., "3-D analytical modeling of triple metal tri-gate graded channel high-k SON TFET for improved performance", ***Silicon***, Vol. 12, (2020), 2041-2052. https://doi.org/10.1007/s12633-019-00268-5
11. Vimala, P., Samuel, T. S. A., "Investigation of cylindrical channel gate all around InGaAs/InP heterojunction heterodielectric tunnel FETs", ***Silicon***, (2020). https://doi.org/10.1007/s12633-020-00691-z
12. Masoudi, A., Ahangari, Z., Fathipour, M., "Performance optimization of a nanoscale GaSb p-channel electron-hole bilayer tunnel field effect transistor using metal gate workfunction engineering", ***Materials Research Express***, Vol. 6, No. 9, (2019), 096311. https://doi.org/10.1088/2053-1591/ab30b0
13. Abdi, D. B., Kumar, M. J., "In-built n^+ pocket p-n-p-n tunnel field-effect transistor", ***IEEE Electron Device Letters***, Vol. 35, No. 12, (2014), 1170-1172. https://doi.org/10.1109/LED.2014.2362926
14. Kaneko. M., Nakajima, M., Jin. Q., Kimoto, T., "Experimental study on short-channel effects in double-gate silicon carbide JFETs", ***IEEE Transactions on Electron Devices***, Vol. 67, No. 10, (2020), 4538-4540. https://doi.org/10.1109/TED.2020.3017143
15. Singh, A., Chaudhury, S., Pandey, C. K., Sharma, S. M., Sarkar, C. K., "Design and analysis of high k silicon nanotube tunnel FET device", ***IET Circuits, Devices and Systems***, Vol. 13, No. 8, (2019), 1305-1310. https://doi.org/10.1049/iet-cds.2019.0230
16. Moalaghi, M., Koohisaadi, A., Talebnia, P., Manavizadeh, N., Lemraski, M. S., "Improving electronic parameters of silicon nanowires by arsenic and phosphor dopants", ***Jouurnal of Advanced Materials and Technologies (JAMT)***, Vol. 4, No. 4, (2015), 11-17. https://doi.org/10.30501/JAMT.2636.70311
17. Gaulke, M., Janissek, A., Peyyety, N. A., Alamgir, I., Riaz, A., Dehm, S., Li, H., Lemmer, U., Flavel, B. S., Kappes, M. M., Hennrich, F., Wei, L., Chen, Y., Pyatkov, F., Krupke, R., "Low-temperature electroluminescence excitation mapping of excitons and trions in short-channel monochiral carbon nanotube devices",

Engineering, Dhaka, Bangladesh, 20-22 December 2016, (2016), 123-126. https://doi.org/10.1109/ICECE.2016.7853871

39. Kim, T. K., Kim, D. H., Yoon, Y. G., Moon, J. M., Hwang, B. W., Moon, D. I., Lee, G. S., Lee, D. W., Yoo, D. E., Hwang, H. C., Kim, J. S., Choi, Y. K., Cho, B. J., Lee, S. H., "First demonstration of junctionless accumulation-mode bulk FinFETs with robust junction isolation", ***IEEE Electron Device Letters***, Vol. 34, No. 12, (2013), 1479-1481. https://doi.org/10.1109/LED.2013.2283291
40. Kordrostami, Z., Sheikhi, M. H., Zarifkar, A., "Influence of channel and underlap engineering on the high-frequency and switching performance of CNTFETs", ***IEEE Transactions on Nanotechnology***, Vol. 11, No. 3, (2012), 526-533. https://doi.org/10.1109/TNANO.2011.2181998
34. Table PIDS2a High-Performance (HP) Logic Technology Recruitment, Process Integration, Devices, and Structures (PIDS), (2018). http://www.itrs.net/
35. ***ATLAS user's manual device simulation software***, Santa Clara, CA, USA, Silvaco, (2018). https://dynamic.silvaco.com
36. Datta, S., ***Quantum transport: Atom to transistor***, First edition, Cambridge University Press, (2005). https://cds.cern.ch
37. Mita, J., Toda, F., Marui, T., ***Method for fabricating AlGaN/GaN-HEMT using selective regrowth***, U.S. patent, US 20080176366 A1, (2008). https://patents.google.com/patent/US20080176366A1 (Accessed: 24 July 2008).
38. Saha, J. K., Chakma, N., Hasan, M., "Impact of scaling channel length on the performances of nanoscale FETs", ***Proceedings of 9th International Conference on Electrical and Computer***

فصلنامه مواد و فناوری‌های پیشرفته

Journal Homepage: www.jamt.ir

پژوهشگاه مواد و انرژی

مقاله کامل پژوهشی

مقایسه خواص الکتریکی و اپتیکی لایه‌های نازک نانوساختاری TeO_2 قبل و بعد از تابش گاما

توکل توحیدی *

استادیار، پژوهشکده کاربرد پرتوها، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، مجتمع پژوهشی شمال‌غرب کشور، بناب، آذربایجان شرقی، ایران

تاریخچه مقاله:

ثبت اولیه: ۱۳۹۹/۰۸/۱۴

دریافت نسخهٔ اصلاح‌شده: ۱۳۹۹/۱۰/۱۱

پذیرش قطعی: ۱۴۰۰/۰۷/۱۰

کلیدواژه‌ها:

دی‌اکسید تلوریم،

لایه نازک،

تابش گاما،

خواص اپتیکی،

خواص الکتریکی

چکیده دی‌اکسید تلوریم (TeO_2)، یکی از نیمه‌رساناهای مهم است که دارای خاصیت صوتی-اپتیکی بالا و پایداری شیمیایی و مکانیکی خوبی بوده و در دو فاز بی‌شکل و بلوری، برای مطالعات پایه و انواع کاربردها در فناوری، از جمله استفاده در قطعات اپتیکی، آشکارسازهای تابش گاما و حسگرهای گازی مناسب است. در این پژوهش، پس از تهیه لایه‌های نازک TeO_2، به روش لایه‌نشانی تبخیر حرارتی در خلأ، در سه ضخامت مختلف، تأثیر تابش پرتو گاما در محدوده ۴۰-۱۰ Gy و بازپخت حرارتی بر خواص نمونه‌ها، مطالعه و بررسی شد. نتایج میکروسکپی الکترونی روبشی (SEM)، تشکیل لایه‌ای با سطح یکنواخت را نشان داد. تحلیل نتایج پراش پرتو ایکس (XRD) نشان داد که ساختار لایه نازک TeO_2، قبل از بازپخت، به‌صورت بی‌شکل است، ولی بعد از بازپخت، در دمای ۴۰۰ درجه سلسیوس، به‌صورت بلوری است. شدت جذب نوری، بعد از بازپخت و بعد از تابش گاما، افزایش، ولی شکاف انرژی کاهش یافت. جریان الکتریکی نمونه‌ها، با افزایش ضخامت لایه‌ها، دُز پرتو گاما و بعد از بازپخت، افزایش یافت.

https://doi.org/10.30501/jamt.2021.254430.1137 URL: https://www.jamt.ir/article_126403.html

Original Research Article

Journal of Advanced Materials and Technologies (JAMT): Vol. 10, No. 2, (Summer 2021), 71-82

Comparison of Optical and Electrical Properties of TeO_2 Nanostructure Thin Films Before and After Gamma Radiation

Tavakkol Tohidi *

Assistant Professor, Radiation Application Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute (NSTRI), Northwest Research Complex, Bonab, East Azerbaijan, Iran

Paper History:
Received: 2020-11-04
Revised in revised form: 2020-12-31
Accepted: 2021-10-02

Keywords:
TeO_2,
Thin Film,
Gamma Irradiation,
Optical Properties,
Electrical Properties

Abstract Tellurium dioxide (TeO_2) is an important semiconductor, which it has high acousto-optic figure of merit, chemical stability and mechanical durability and both in its crystalline and amorphous forms, making it suitable for theoretical studies and technological applications such as optical devices, γ-ray detectors, and gas sensors. In this work, the TeO_2 thin film with three different thicknesses was prepared by vacuum thermal evaporation method. The effect of gamma irradiation in the range of 10-40 Gy and also the effect of thermal annealing on properties of TeO_2 thin films were investigated. Scanning Electron Microscopy (SEM) results showed the formation of the film with smooth surface. X-Ray Diffraction (XRD) analysis were revealed that the as-deposited films were amorphous but after annealing at 400 °C, the crystalline phase of the samples occurred. The optical absorbance after annealing and gamma radiation was increased but the band

***عهده دار مکاتبات**

نشانی: ایران، آذربایجان شرقی، بناب، مجتمع پژوهشی شمال‌غرب کشور، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، پژوهشکده کاربرد پرتوها، **تلفن:** ۰۴۱-۳۷۷۸۰۲۰۴،

دورنگار: ۰۴۱-۳۷۷۸۰۲۰۵

پیام نگار: ttohidi@aeoi.org.ir

Please cite this article as: Tohidi, T., "Comparison of optical and electrical properties of TeO_2 nanostructure thin films before and after gamma radiation", ***Journal of Advanced Materials and Technologies (JAMT)***, Vol. 10, No. 2, (2021), 71-82. (https://doi.org/10.30501/jamt.2021.254430.1137).

2783-0829/© 2021 The Author(s). Published by MERC.
This is an open access article under the CC BY license (https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/).

gap decreased. The electrical current of samples was increased with increasing of films thickness, gamma dose and also after annealing.

https://doi.org/10.30501/jamt.2021.254430.1137 URL: https://www.jamt.ir/article_126403.html

۱- مقدمه

باتوجه به پیشرفت روزافزون علوم هسته‌ای و پرتودهی در سال‌های اخیر و نیز کاربرد چشمگیر این سیستم‌ها در انواع زمینه‌های علمی و صنعتی در جهان، رعایت اصول ایمنی و حفاظت در برابر پرتو، امری ضروری و حیاتی است. ازجمله این پرتوهای بسیار مفید و درعین‌حال خطرناک برای انسان، پرتو گاماست. امروزه، پرتودهی گاما، در حوزه‌های مختلف، مانند صنعت، پزشکی، نظامی و پژوهشی، کاربرد چشمگیری پیدا کرده است. یکی از روش‌های آشکارسازی پرتو گاما، آشکارسازی به‌وسیله حسگرهاست. ازاین‌رو، مهم است که حسگرهایی ساخته شوند که بتوانند با آشکارسازی آنی، در مواقع وجود پرتو گاما در محیط، به‌سرعت و فوری علامت هشدار تولید کنند. در حال حاضر، گونه‌های مختلفی از تابش‌سنج[1]های پرتوی وجود دارند که در اصول فیزیکی آشکارسازی و مواد مورد استفاده، با یکدیگر تفاوت دارند و معمولاً هرکدام برای کاربرد خاصی طراحی شده‌اند.

یکی از این موارد، فناوری لایه‌های نازک و ضخیم است که علاوه بر کاربردهای مختلفی نظیر ساخت انواع قطعات الکترونیک، حافظه‌های خواندنی-نوشتنی، کاربردهای نظامی، سلول‌های خورشیدی، ارتباطات و پزشکی [۱ و ۲]، برای توسعه حسگرهای تابشی نیز استفاده شده است [۳ و ٤]. توجه بیشتر به رفتار مواد دوبعدی، مثل لایه‌های نازک و مفید بودن ویژگی‌های آن‌ها، باعث شده از نظر علمی و نیز فناوری، به لایه‌های نازک توجه ویژه‌ای شود. از جمله لایه‌های نازک، اکسیدهای فلزی هستند که در کاربردهای تخصصی مختلف، نظیر پوشش‌دهی به‌عنوان کاتالیست[2]، الکتروشیمی با هدف بهبود عملکرد الکتروشیمیایی مواد مورد استفاده در باتری‌های لیتیومی، فیبرهای نوری و حسگرها استفاده می‌شوند. از مهم‌ترین اکسیدهای فلزی می‌توان به TeO_2 و SnO_2 اشاره کرد. اکسیدهای فلزی، باتوجه‌به خواص مختلفشان و برحسب حساسیتشان به تابش گاما و ناحیه دُز[3] کاری، برای کنترل دُز تابش استفاده می‌شوند [۵].

ویژگی‌های اکسیدهای فلزی، مستقیم و غیرمستقیم، با حضور نقص‌ها، به‌ویژه تهی‌جاهای اکسیژن[4]، ارتباط دارد. این نقایص، ویژگی‌های اپتیکی، الکترونیکی و ترابردی مواد را تعیین کرده و معمولاً بر خواص شیمیایی سطح آن غلبه می‌کند. تهی‌جاهای اکسیژن، به‌طور طبیعی، در هر اکسیدی، در قالب نقایص فرنکل[5] یا شاتکی[6] ظاهر می‌شوند و غلظت آن‌ها می‌تواند به روش‌های مختلف افزایش یا کاهش یابد [٤]. تهی‌جاهای اکسیژن، به مراکز رنگی یا مراکز F (برگرفته از Farbe، کلمه آلمانی به معنی رنگ) نیز معروف‌اند. اگر تهی‌جا در سطح، جای‌گزیده باشد، زیرنویس s اضافه و به‌صورت F_s نوشته می‌شود.

عقیده بر این است که تابش یون‌ساز، نقایص ساختاری ایجاد کرده و چگالی آن در معرض پرتوهای گاما تغییر می‌کند [٦]. انرژی مورد نیاز برای ایجاد یک الکترون-حفره، نسبتاً کم است (مثلاً ۱۸ الکترون‌ولت برای SiO_2). در مدل ارائه شده، برای مرکز رنگی، فرض می‌شود که میزان آسیب تابشی، به‌دلیل بازیابی آسیب، باید به آهنگ دُز وابسته باشد. زمانی‌که مراکز رنگی تحت پرتودهی ایجاد می‌شوند، ممکن است حتی در دمای اتاق نیز از بین بروند. در حین پرتودهی، خلق و فنای هم‌زمان وجود دارد. چگالی مرکز رنگی، در میزانی معین که به آهنگ دُز اعمالی وابسته است، به حالت تعادل خواهد رسید. ثابت‌های خلق و فنا را می‌توان، با به‌کارگیری داده‌های تجربی حاصل از آهنگ دُز معین، تعیین کرد و سپس، برای پیش‌بینی رفتار همان نمونه، تحت آهنگ‌های دُز مختلف به‌کار برد [۷].

دی‌اکسید تلوریم (TeO_2)، یک اکسید فلزی چندمنظوره با شکاف انرژی عریض، در حدود ۳/۵ الکترون ولت و یکی از مواد مهم صوتی-اپتیکی و الکترواپتیکی با انواع ویژگی‌های مطلوب شامل رفتار کشسانی، ضریب شکست بالا و کیفیت

[1] Dosimeter
[2] Catalyst

[3] Dose
[4] Oxygen Vacancies
[5] Frenkel Defect
[6] Schottky Defect

اپتیکی مناسب است [۸]. باتوجه به اهمیت و کاربردهای مختلف ماده TeO_2، خواص مختلف لایه‌های نازک آن توسط پژوهشگران بررسی شده است. لایه‌های نازک TeO_2، توسط سیسیلیانو[1] و همکاران [۹]، به روش کندوپاش رادیوفرکانسی[2]، روی زیرلایه‌های کوارتزی، به‌منظور بررسی خواص حسگری آن در مقایسه با گاز آمونیاک، لایه‌نشانی شد. این گروه، اثر زمان بازپخت حرارتی بر خواص اپتیکی و ساختاری لایه‌های نازک TeO_2 را نیز بررسی کردند [۱۰] و مشاهده کردند که بعد از ۵ دقیقه زمان بازپخت، لایه نازک TeO_2، ساختار بلوری پیدا کرد. همچنین، بعد از بازپخت، ضریب شکست و گاف انرژی[3] کاهش یافت.

اثر تابش گاما بر لایه‌های نازک مختلف از جمله In_2O_3، SiO، SnO_2، NiO و CeO_2 بررسی شده است [۱۸-۱۱]. اخیراً، به ماده TeO_2، هنگام ترکیب با مواد دیگر، به‌عنوان حفاظ پرتو گاما، بسیار توجه شده است [۱۹ و۲۰]. همچنین، اثر تابش گاما بر خواص مختلف لایه نازک اکسید فلزی TeO_2، به‌صورت کاربرد تابش‌سنج، به‌منظور رسیدن به شرایط مناسب، بررسی شده است. میتی[4] و همکاران [۲۱]، لایه‌های نازک TeO_2 را به روش تبخیر حرارتی، در ضخامت‌های ۳۰۰ تا ۱۵۰۰ نانومتر، تهیه کردند و در محدوده دُز ۱۰۰ تا ٤۰۰ گری[5] (Gy)، تحت تابش گاما قرار دادند و مشاهده کردند که با افزایش دُز، جریان نیز افزایش می‌یابد. مشخص شد که خواص اپتیکی لایه‌های نازک TeO_2 تهیه‌شده به روش تبخیر حرارتی با ضخامت ۵۰ نانومتر، حساسیت بالایی به پرتو گاما دارد و مقاومت لایه‌ها با افزایش دُز، کاهش می‌یابد [۲۲ و ۲۳]. سودا[6] و همکاران [۲٤]، لایه نازک TeO_2 را به روش تبخیر حرارتی در خلأ، با ضخامت ۱۵۰۰ نانومتر تهیه و تحت تابش گاما، خواص اپتیکی آن‌ها، شامل ضریب شکست و ضریب خاموشی را با استفاده از طیف عبوری بررسی کردند. حدود دُزهایی که می‌توان با لایه‌های نازک TeO_2 سنجید، باتوجه‌به شرایط تهیه لایه‌ها، متفاوت است و در مراجع مختلف از ۱۰ Gy تا ۵۰۰ Gy تغییر می‌کند [٤، ۱۷ و ۲۱].

در این کار، لایه‌های نازک TeO_2، به روش تبخیر حرارتی، در سه ضخامت مختلف، تهیه شدند و تأثیر پرتو گاما و بازپخت حرارتی بر خواص الکتریکی و اپتیکی آن‌ها مطالعه شد. همچنین، برای اولین‌بار، تأثیر پرتو گاما بر لایه‌ها، بعد از بازپخت، بررسی شد.

۲- مواد و روش‌ها

۲-۱- مواد

پودر خالص TeO_2 با خلوص ۹۹/۹۹۹۵ درصد، ساخت شرکت آلدریچ[7]، به‌عنوان ماده اصلی شیمیایی در ساخت لایه‌های نازک دی‌اکسید تلوریم (TeO_2) استفاده شد. موادی مانند اسید نیتریک (٦۵ درصد)، آب مقطر دو بار تقطیر و استون، در تمیزکردن زیرلایه‌های شیشه‌ای، استفاده شدند.

۲-۲- آماده‌سازی زیرلایه‌ها

در این کار، از زیرلایه‌های شیشه‌ای نوع لام‌های تجاری، در ابعاد ۷۵ × ۲۵ × ۱ میلی‌متر مربع استفاده شد. تمیزی زیرلایه‌ها از موارد بسیار مهم در بهبود کیفیت لایه نازک است؛ زیرا اگر لکه‌ای روی زیرلایه باشد، هسته‌بندی ایجاد نمی‌شود و لایه‌ای تشکیل نخواهد شد. ابتدا، زیرلایه‌ها با مایع ظرف‌شویی، چرب‌زدایی، با آب مقطر، شست‌وشو، به‌مدت ۲٤ ساعت در اسید نیتریک رقیق، غوطه ور و درنهایت، با آب مقطر، آب‌کشی شدند و در ظرف حاوی استون به‌مدت ۲۰ دقیقه در دستگاه تمیزکننده فراصوت[8] قرار داده و در آخر، با هوای داغ، خشک شدند. پس از خشک شدن، در جعبه نگهداری شیشه‌های لام قرار داده شد و در خشکانه[9]، برای استفاده‌های بعدی نگهداری شدند. در تمامی مراحل تمیزکاری، از دستکش بدون پرز استفاده شد.

۲-۳- روش کار

برای لایه‌نشانی لایه‌های نازک TeO_2، از دستگاه

[1] Siciliano
[2] Radio Frequency Sputtering
[3] Band Gap
[4] Maity
[5] Gray
[6] Sudha
[7] Aldrich
[8] Ultrasonic
[9] Desiccator

لایه‌نشانی آزمایشگاهی موجود در مجتمع پژوهشی شمال‌غرب کشور، ساخت جهاد دانشگاهی شریف، استفاده شده است. این دستگاه، شامل سیستم‌های لایه‌نشانی با پرتو الکترونی، کندوپاش DC و بوته مقاومتی است که در این کار، از تبخیر حرارتی با بوته مقاومتی برای لایه‌نشانی استفاده شد.

زیرلایه‌های تمیز، در جایگاه مخصوص نگه‌دارنده زیرلایه در دستگاه لایه‌نشانی و پودر TeO_2، در بوته تنگستنی قرار داده شد. با عبور جریان برق از بوته، پودر گرم شد و شروع به تبخیر کرد و لایه‌نشانی انجام شد. با تغییر زمان لایه‌نشانی، سه نوع نمونه در ضخامت‌های مختلف به‌دست آمد. با جریان عبوری ۵۰-٤۵ آمپر از بوته، ولتاژ اعمالیِ ۲۰-۱۵ ولت، نرخ لایه‌نشانی ۰/۵ انگستروم در ثانیه و در زمان‌های مختلف، لایه‌نشانی روی زیرلایه‌های شیشه‌ای که در فاصله ۳۷ سانتی‌متری از بوته قرار داشتند انجام گرفت و نمونه‌هایی با ضخامت‌هایی حدود ۹۰، ۱٤۰ و ۲۳۰ نانومتر ساخته شد. ضخامت نمونه‌ها با ضخامت‌سنج کوارتزی که روی دستگاه لایه‌نشانی وجود دارد، تعیین شد. فاصله بوته تا ضخامت‌سنج کوارتزی، در هر سه حالت، حدود ۱۸/۵ سانتی‌متر، دمای زیرلایه، ۱۰۰ درجه سلسیوس و خلأ دستگاه لایه‌نشانی، حین لایه‌نشانی، حدود ۵×۱۰^{-۵} میلی‌بار بود.

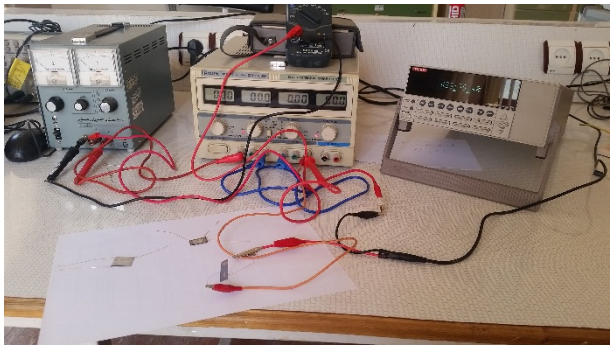
تعدادی از نمونه‌ها در دمای ٤۰ درجه سلسیوس در کوره مافل[1] بازپخت شدند. نمونه‌های قبل و بعد از بازپخت، در دُز معین، در سیستم سامانه پرتودهی چندمنظوره مجتمع پژوهشی شمال‌غرب کشور، در معرض تابش پرتو گاما قرار گرفتند. نمونه با ضخامت ۲۳۰ نانومتر قبل از بازپخت، علاوه بر تابش با دُز ۲۰ گری، در معرض تابش گاما با دزهای ۱۰، ۳۰ و ٤۰ گری نیز قرار گرفت.

به‌منظور اندازه‌گیری خواص الکتریکی، دو لایه مستطیل‌شکل از آلومینیوم با ضخامت حدود ۱۷۰ نانومتر و با فاصله جدایی ۳ میلی‌متر، توسط دستگاه لایه‌نشانی با روش پرتو الکترونی روی لایه نازک TeO_2، به‌عنوان اتصال الکتریکی، لایه‌نشانی شدند و سیم نازک مسی، توسط چسب نقره، روی لایه آلومینیومی در دو طرف چسبانده شد (شکل ۱).

ویژگی جریان-ولتاژ، با قراردادن نمونه‌ها در یک مدار الکتریکی اندازه‌گیری شد. ولتاژ مناسب، توسط منابع تغذیه تأمین و جریان، توسط پیکوآمپرمتر قرائت شد (قبل از قرائت و برای ازبین‌بردن اثر نور، سطح لایه پوشانده شد). شکل ۲، مدار مربوطه را نشان می‌دهد.



شکل ۱. تصویر نمونه‌های TeO_2 لایه‌نشانی‌شده روی زیرلایه‌های شیشه‌ای با ضخامت‌های مختلف و اتصال الکتریکی انجام‌شده



شکل ۲. تصویر مدار اندازه‌گیری جریان الکتریکی نمونه‌های TeO_2

۲-٤- دستگاه‌ها

برای تمیزکاری زیرلایه‌ها و در طول مراحل مختلف کار، از دستگاه تمیزکننده فراصوت استفاده شد. به‌منظور بازپخت‌کردن و خشک‌کردن نمونه‌ها، از کوره مافل و خشک‌کن الکتریکی[2] استفاده شد. برای مطالعه سطح لایه‌ها و تهیه تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی[3] (SEM)، از دستگاه SEM مدل Tescan- MIRA3 FEG ساخت کشور چک و مدل EVD18-Ziess ساخت آلمان مجهز به طیف‌سنجی پراش انرژی پرتو ایکس[4] (EDX)، استفاده شد. برای مطالعات جذبی و عبوری، از طیف‌نورسنج[5] مدل Perkin

[1] Muffle Furnace

[2] Electric Oven
[3] Scanning Electron Microscope (SEM)
[4] Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy
[5] Spectrophotometer

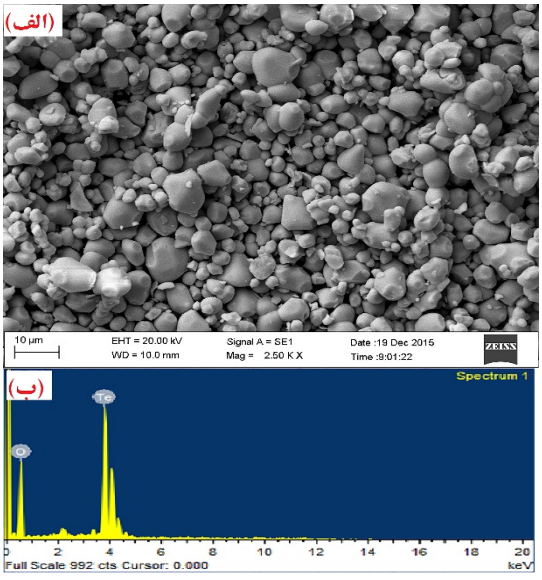
Elmer-Lambda 45 استفاده شد که مجهز به لامپ تنگستن و دوتریم برای ناحیه‌های مرئی و فرابنفش بود و در محدوده طول موج ۱۱۰۰-۱۹۰ نانومتر، جذب را ثبت می‌کرد. الگوی پراش پرتو ایکس[1] (XRD)، توسط پراش‌سنج پرتو ایکس مدل STADI-MP-STOE، با منبع تابش CuKα (λ=1.5406 Å) تولید شده در ولتاژ ٤۰ کیلوولت و جریان ۳۵ میلی‌آمپر ثبت شد. نمونه‌ها، در محدوده ۸۰-۱۰ درجه، با سرعت روبش ۵ درجه در دقیقه، روبش شدند.

از سامانه پرتودهی چندمنظوره مجتمع پژوهشی شمال‌غرب کشور با چشمه کبالت ٦۰، برای پرتودهی نمونه‌ها در دُزهای تعیین شده، استفاده شد. برای اندازه‌گیری جریان الکتریکی از پیکوآمپرمتر (KEITHLEY 6485 Pico Ammeter) استفاده شد.

۳- نتایج و بحث

۳-۱- ریخت‌شناسی و خلوص پودر TeO_2

شکل ۳ (الف)، تصویر SEM پودر TeO_2 مورد استفاده را نشان می‌دهد که دارای دانه‌هایی بی‌شکل در محدوده اندازه ۲ تا ۵ میکرومتر است. آنالیز EDX این پودر در شکل ۳ (ب)، نشان می‌دهد که عناصر تشکیل‌دهنده آن فقط عناصر تلوریم و اکسیژن هستند و بنا بر مشخصات اولیه ۹۹/۹۹۹۵ درصد خلوص ماده، خالص‌بودن پودر TeO_2 کاملاً مشهود است.



شکل ۳. (الف) تصویر SEM پودر TeO_2 و (ب) آنالیز EDX پودر TeO_2

[1] X-Ray Diffraction (XRD)

۳-۲- XRD

از متداول‌ترین روش‌های مطالعه ساختار نمونه‌ها، روش XRD است. اندازه دانه‌های بلوری را نیز می‌توان با استفاده از داده‌های طیف XRD و از فرمول شرر[2] تخمین زد.

$$D = 0.9\lambda / \beta_{20}\cos\theta \qquad (۱)$$

در این فرمول، λ، طول موج پرتو X مورد استفاده و β_{20}، پهنای پیک در نصف بیشینه شدت قله پراش بر حسب رادیان است.

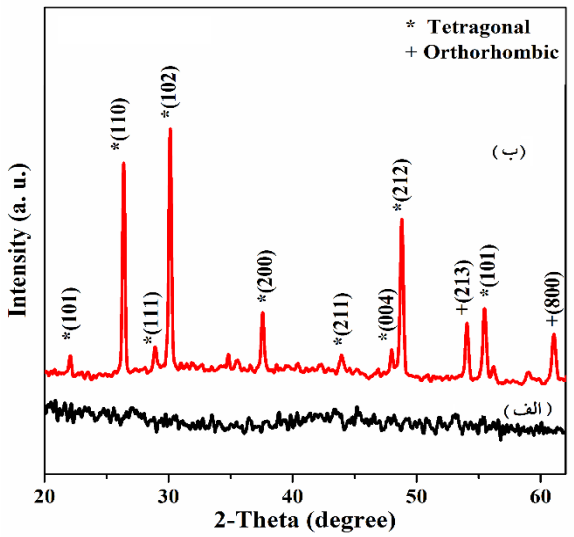
شکل ٤ (الف)، XRD لایه نازک نانوساختاری TeO_2 به ضخامت ۲۳۰ نانومتر را بلافاصله پس از لایه‌نشانی نشان می‌دهد. همان طور که مشاهده می‌شود به‌دلیل بی‌شکل بودن لایه نازک TeO_2 قبل از بازپخت، هیچ‌گونه قله مشخصی در XRD وجود ندارد. شکل ٤ (ب)، XRD لایه نازک نانوساختاری TeO_2 به ضخامت ۲۳۰ نانومتر را بعد از بازپخت در دمای ٤۰۰ درجه سلسیوس به‌مدت یک ساعت نشان می‌دهد. باتوجه به شکل، مشاهده می‌شود که تعداد زیادی قله، بعد از بازپخت، تشکیل شده‌اند که نشان‌دهنده بلوری‌شدن ساختار لایه نازک TeO_2 بعد از بازپخت است. قله‌های مربوط به ساختار بلوری چهارگوشه‌ای[3] TeO_2، براساس کارت استاندارد شماره ٤۲-۱۳٦۵ و قله‌های مربوط به ساختار بلوری راست‌لوزی[4] TeO_2، مطابق کارت استاندارد شماره ۰۹-۰٤۳۳ هستند [۲۵]. در اینجا، فاز چهارگوشه‌ای، در مقایسه با فاز راست‌لوزی، فاز غالب است. با استفاده از رابطه شرر، اندازه دانه‌های این لایه، برای صفحه (۱۰۲)، حدود ۵۰ نانومتر محاسبه شد. البته، برای تعیین ساختار بلوری ماده با روش XRD، اندازه معینی از دانه‌های بلوری مورد نیاز است.

۳-۳- SEM

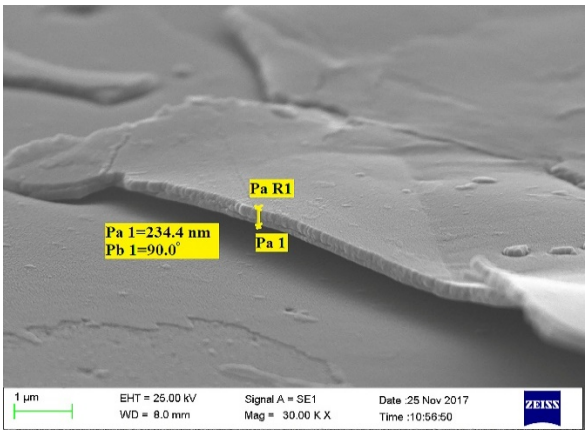
شکل ۵، تصویر SEM سطح مقطع[5] نمونه TeO_2 را نشان می‌دهد. تشکیل لایه‌ای با ضخامت تقریبی ۲۳٤/٤ نانومتر، روی زیرلایه، در این تصویر مشهود است که با مقدار

[2] Scherer
[3] Tetragonal
[4] Orthorhombic
[5] Cross Section

اندازه‌گیری‌شده، به‌وسیله ضخامت‌سنج دستگاه لایه‌نشانی، اختلاف کمی دارد.



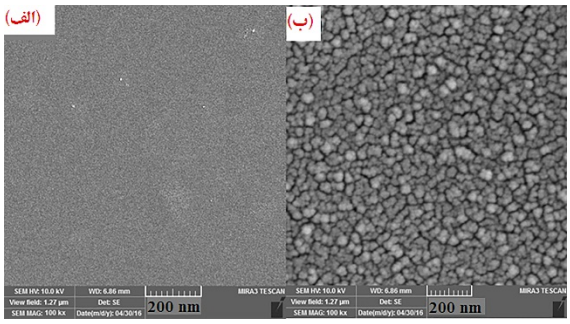
شکل ٤. طیف XRD لایه نازک TeO_2 (الف) قبل از بازپخت و (ب) بعد از بازپخت در دمای ٤٠٠ درجه سلسیوس به‌مدت یک ساعت



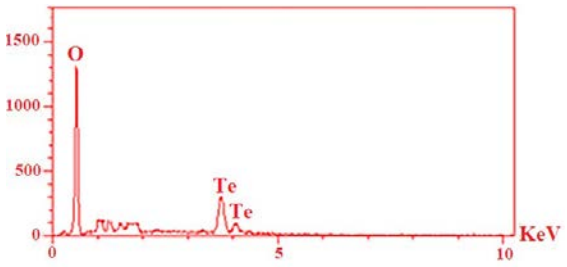
شکل ٥. تصویر سطح مقطع لایه نازک TeO_2

شکل ٦، تصویر SEM دید از بالای[1] سطح لایه نازک TeO_2 به ضخامت ۲۳۰ نانومتر را در دو حالتِ قبل و بعد از بازپخت در دمای ٤٠٠ درجه سلسیوس، نشان می‌دهد. همان طور که مشاهده می‌شود لایه TeO_2 قبل از بازپخت (شکل ٦ (الف))، ریخت‌شناسی پیوسته، صاف، بی‌شکل و بدون دانه‌های بلوری دارد. ولی سطح لایه TeO_2 بعد از بازپخت، به‌دلیل رشد دانه‌های بلوری در نمونه، دارای مرز بین‌دانه‌ای می‌شود (شکل ٦ (ب)). بنابراین، می‌توان نتیجه گرفت که بعد از بازپخت، لایه TeO_2، ساختار بلوری پیدا می‌کند. البته، طیف XRD (شکل ٤) هم این موضوع را به‌خوبی تأیید می‌کند. به‌عبارت دقیق‌تر، با گرمایش طی فرایند بازپخت، هسته‌بندی شکل می‌گیرد و دانه‌ها شروع به رشد می‌کنند و تغییر فاز لایه نازک، از حالت بی‌شکل به حالت بلوری، اتفاق می‌افتد [۱۰].

شکل ۷، آنالیز EDX نمونه‌ایی از لایه نازک TeO_2 با ضخامت ۲۳۰ نانومتر را نشان می‌دهد. همان طور که مشاهده می‌شود لایه TeO_2، از عناصر Te و O، بدون وجود ناخالصی‌های دیگر، تشکیل یافته است. درصد وزنی و اتمی عناصر Te و O، به‌ترتیب، ٥٦/١١، ١٣/٨٢و ٤٣/٨٩، ٨٦/١٨ است.



شکل ٦. تصویر دید از بالای سطح لایه نازک TeO_2 (الف) قبل از بازپخت و (ب) بعد از بازپخت در دمای ٤٠٠ درجه سلسیوس



شکل ۷. آنالیز EDX لایه نازک TeO_2 به ضخامت ۲۳۰ نانومتر

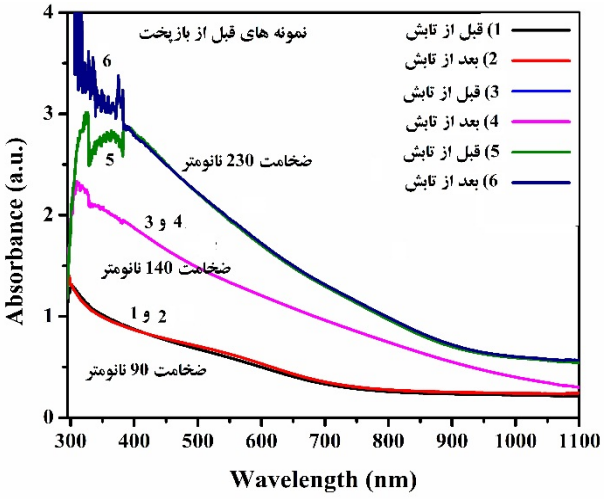
۳-٤- خواص اپتیکی

۳-٤-۱- جذب نوری

شکل ۸، جذب نوری لایه نازک TeO_2 به ضخامت‌های مختلف را قبل از بازپخت و بعد از تابش در دُز ۲۰ گری، در محدوده طول موج ۳۰۰ تا ۱۱۰۰ نانومتر نشان می‌دهد. میزان جذب در ناحیه طول موج‌های بالا، کم است؛ ولی هرچه به سمت طول موج‌های کوتاه می‌رویم، مقدار آن به آرامی افزایش می‌یابد. همان طور که مشاهده می‌شود شدت جذب، با افزایش ضخامت نمونه‌ها افزایش می‌یابد. با افزایش ضخامت، اندازه

[1] Plan View

دانه‌ها بزرگ می‌شود و تعداد حامل‌ها افزایش می‌یابد و درنتیجه، میزان جذب نیز افزایش می‌یابد.



شکل ۸. طیف جذب لایه‌های نازک TeO_2 قبل از بازپخت و بعد از تابش در دُز ۲۰ گری

البته، باتوجه به رابطه ضریب جذب:

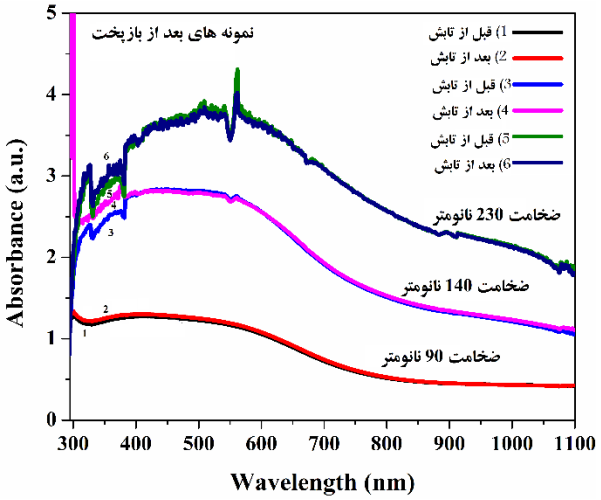
$$\alpha = \frac{2.303\ A}{d} \qquad (۲)$$

می‌توان گفت که میزان جذب، (A)، با ضخامت لایه (d) رابطه مستقیم دارد. یعنی، با افزایش ضخامت، میزان جذب نیز افزایش می‌یابد. شایان ذکر است که براساس قانون بیر[1]، میزان جذب (A) به‌صورت:

$$A = \mathrm{Log}\left(\frac{I_0}{I}\right) \qquad (۳)$$

تعریف می‌شود که I_0، شدت نور فرودی و I، شدت نور عبوری است. بعد از تابش با پرتو گاما، مقدار جذب در ناحیه طول موج ۳۵۰-۳۰۰ نانومتر، به‌ویژه برای نمونه با ضخامت ۲۳۰ نانومتر، افزایش می‌یابد و این تغییر در مقدار جذب را می‌توان به تغییر در نوارهای انرژی لایه نازک، بعد از تابش پرتو گاما، مربوط دانست [۱۷].

شکل ۹، جذب نوری لایه نازک TeO_2 با ضخامت‌های مختلف را بعد از بازپخت در دمای ٤۰۰ درجه سلسیوس به‌مدت یک ساعت و بعد از تابش در دُز ۲۰ گری، در محدوده طول موج ۳۰۰ تا ۱۱۰۰ نانومتر نشان می‌دهد. مشاهده می‌شود که بعد از بازپخت نمونه‌ها نیز، شدت جذب، به‌طور پیوسته، با افزایش ضخامت، افزایش می‌یابد. در این حالت نیز، بعد از تابش، مقدار جذب تغییر می‌کند که این تغییر، در مقایسه با حالت قبل از بازپخت و به‌دلیل تغییرات ساختاری چشمگیر بعد از بازپخت، بسیار ناچیز است. بنابراین، تابش گاما نمی‌تواند تغییرات محسوسی در ساختار ایجاد کند. با مقایسه شکل‌های ۸ و ۹، مشاهده می‌شود که بعد از بازپخت، به‌دلیل بلوری شدن لایه‌ها و ایجاد دانه‌های بلوری، میزان جذب افزایش می‌یابد. بعد از بازپخت، در ضخامت‌های بیشتر، رفتاری غیرعادی در طیف جذبی در طول موج ۵۵۰ نانومتر مشاهده می‌شود که به احتمال قوی با نقایص سطحی به‌وجودآمده و تغییر فاز بلوری بعد از بازپخت و همچنین افزایش ناهمواری سطحی با افزایش ضخامت، ارتباط دارد [۳، ۱۰ و ۲۵].



شکل ۹. طیف جذب لایه نازک TeO_2 بعد از بازپخت در دمای ٤۰۰ درجه سلسیوس و بعد از تابش در دُز ۲۰ گری

۳-٤-۲- گاف نواری

در حالت بلوری، به‌دلیل تقارن گذار، به‌راحتی می‌توان ساختار نواری و چگالی حالت‌ها را پیدا کرده و گاف نواری را تعریف کرد. اما، در حالت بی‌شکل، تقارن گذاری نداریم و بنابراین، نمی‌توان ساختار نواری و چگالی حالت‌ها و بالطبع گاف انرژی را به‌راحتی محاسبه کرد. در نیمه‌رساناهای بی‌شکل، برای محاسبه گاف انرژی، لبه‌های نواری که در نزدیکی نوار ظرفیت و رسانش جای‌گزیده شده‌اند، مد نظر قرار می‌گیرند.

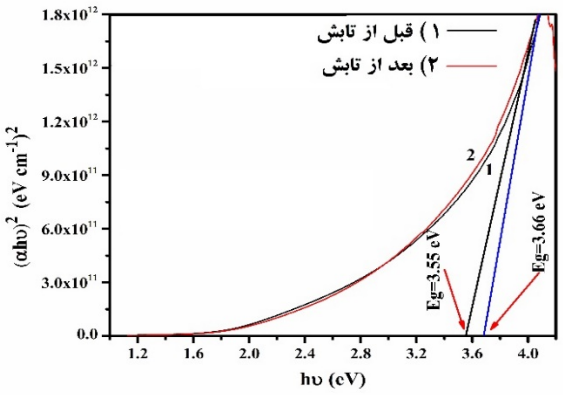
[1] Beer's Law

با استفاده از رابطه (۲)، می‌توان ضریب جذب را باتوجه‌به داده‌های تجربی میزان جذب محاسبه کرد که d، ضخامت فیلم و A، میزان جذب را نشان می‌دهند. براساس تئوری موت و داویس[1] [۲٦] یا مدل تاک[2] [۲۷]، ضریب جذب را می‌توان با کمک رابطه زیر

$$(\alpha h\vartheta) = B(h\vartheta - E_g)^n \ cm^{-1} \qquad (٤)$$

نیز محاسبه کرد که $n = \frac{1}{2}$، گذارهای مستقیم، B، ثابت و E_g، گاف انرژی را نشان می‌دهند. با رسم $(\alpha h\vartheta)^2$ بر حسب $(h\vartheta)$ و قراردادن $\alpha = 0$، گاف انرژی نمونه‌ها محاسبه شد. شایان ذکر است که برای گذارهای غیرمستقیم، $n = 2$ قرار داده می‌شود. البته، رابطه فوق برای هرکدام از حالت‌های گذار مستقیم یا غیر مستقیم خطی باشد آن گذار مورد استفاده قرار می‌گیرد [۹].

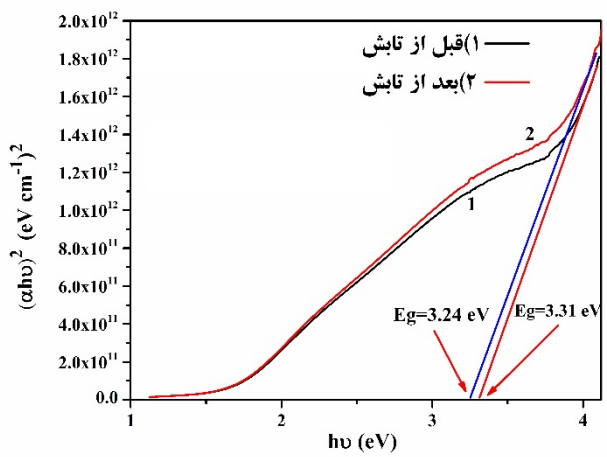
در شکل ۱۰، گاف انرژی لایه نازک TeO_2 با ضخامت ۲۳۰ نانومتر، قبل از بازپخت و قبل و بعد از تابش در دُز ۲۰ گری که با استفاده از طیف جذبی شکل ۸ محاسبه شده، ارائه شده است. گاف انرژی نمونه، قبل از تابش، ۳/٦٦ الکترون‌ولت و بعد از تابش، ۳/۵۵ الکترون‌ولت است. مشاهده می‌شود که گاف انرژی، بعد از تابش، کاهش می‌یابد که می‌توان این کاهش را براساس مدل ساده انتقال بار توضیح داد؛ بر این اساس، ترازهای فرمی، در نمونه‌های بعد از تابش، در مقایسه با نمونه‌های قبل از تابش، بالا می‌آیند و این امر، به کاهش گاف انرژی نوری منجر می‌شود [۵].



شکل ۱۰. گاف انرژی لایه نازک TeO_2 با ضخامت ۲۳۰ نانومتر قبل از بازپخت (الف) قبل از تابش و (ب) بعد از تابش در دُز ۲۰ گری

در شکل ۱۱، گاف انرژی لایه نازک TeO_2 با ضخامت ۲۳۰ نانومتر که به‌مدت یک ساعت در دمای ٤۰۰ درجه سلسیوس بازپخت شده، قبل از تابش و بعد از تابش در دُز ۲۰ گری که با استفاده از طیف جذبی شکل ۹ محاسبه شده، ارائه شده است. گاف انرژی نمونه، قبل از تابش، ۳/۳۱ الکترون‌ولت و بعد از تابش، ۳/۲٤ الکترون‌ولت است. مشاهده می‌شود که در این حالت نیز، گاف انرژی، بعد از تابش، کاهش می‌یابد. همچنین، در شکل ۱۱، مشاهده می‌شود که گاف انرژی نمونه بعد از بازپخت، در مقایسه با نمونه قبل از بازپخت، به‌دلیل تغییر استوکیومتری و ترکیب شیمیایی فیلم بعد از بلوری‌شدن، کاهش می‌یابد [۱۰ و ۲۵]. به‌عبارت دقیق‌تر، بعد از بازپخت، نسبت فلز تلوریم، از اکسیژن بیشتر شده و فاز بلوری، در مقایسه با فاز بی‌شکل، غالب می‌شود [۱۰]. توضیحات بیشتر درباره خواص اپتیکی، در پژوهش قبلی ما ارائه شده است [۲۸].

در مقالات، داده‌های گزارش‌شده فراوانی در خصوص گاف انرژی لایه‌های نازک TeO_2 ارائه شده است که به احتمال قوی، با استوکیومتری لایه‌ها ارتباط دارد و خود این امر نیز، به ماده اولیه و سازوکار رشد در روش‌های گوناگون لایه‌نشانی وابسته است [۲۹].



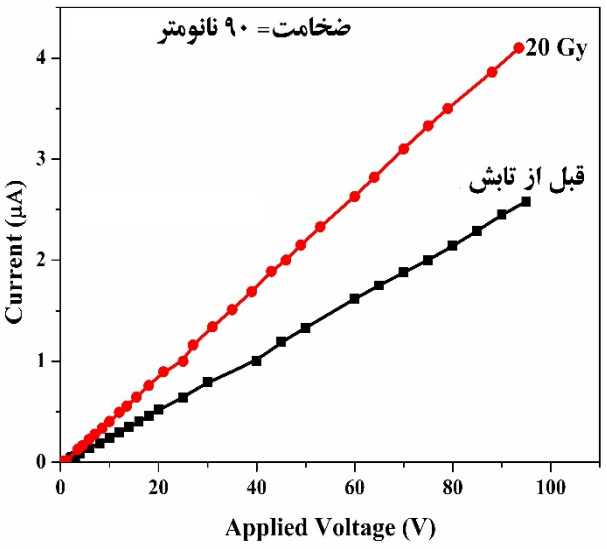
شکل ۱۱. گاف انرژی لایه نازک TeO_2 با ضخامت ۲۳۰ نانومتر بعد از بازپخت در دمای ٤۰۰ درجه سلسیوس (الف) قبل از تابش و (ب) بعد از تابش در دُز ۲۰ گری

۳-۵- خواص الکتریکی

شکل ۱۲، منحنی جریان-ولتاژ لایه نازک TeO_2 با ضخامت ۹۰ نانومتر را قبل و بعد از تابش در دُز ۲۰ گری،

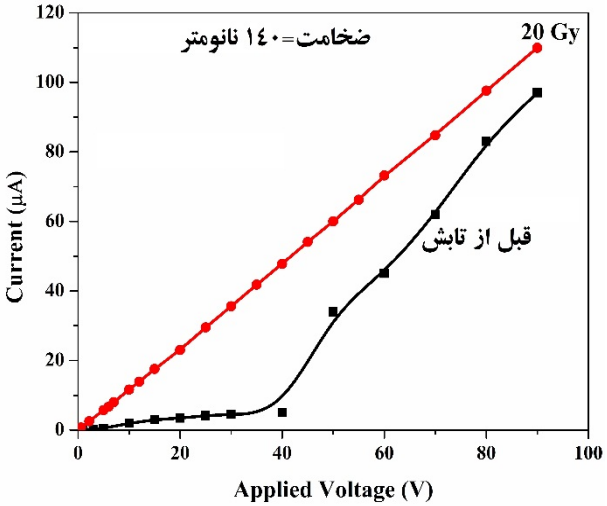
[1] Mott and Davis Theory
[2] Tauc Model

نشان می‌دهد. با مقایسه منحنی‌ها، مشاهده می‌شود که دُز تابشی در جریان نمونه‌ها تأثیر دارد و با اعمال تابش، جریان به‌صورت خطی افزایش یافته است.



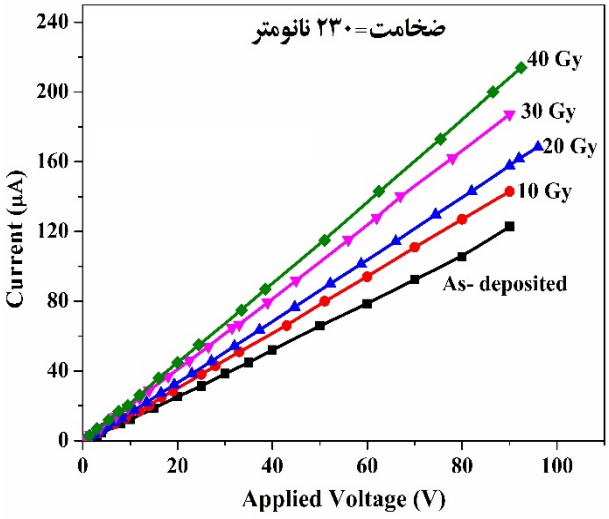
شکل ۱۲. منحنی ولتاژ–جریان لایه قبل از بازپخت با ضخامت ۹۰ نانومتر قبل و بعد از تابش در دُز ۲۰ گری

در شکل ۱۳، منحنی ولتاژ–جریان لایه با ضخامت ۱۴۰ نانومتر، قبل و بعد از تابش در دُز ۲۰ گری، رسم شده است. با مقایسه منحنی‌ها مشاهده می‌شود که تابش گاما در جریان نمونه‌ها تأثیر دارد و با اعمال تابش، جریان افزایش می‌یابد. همچنین، با مقایسه دو شکل، مشاهده می‌شود که با افزایش ضخامت لایه از ۹۰ به ۱۴۰ نانومتر، مقدار جریان افزایش می‌یابد و پس از ۴۰ ولت، نمودار خطی می‌شود.



شکل ۱۳. منحنی ولتاژ–جریان لایه قبل از بازپخت با ضخامت ۱۴۰ نانومتر قبل و بعد از تابش در دُز ۲۰ گری

در شکل ۱۴، منحنی ولتاژ–جریان لایه با ضخامت ۲۳۰ نانومتر، قبل و بعد از تابش در دُزهای مختلف، رسم شده است. با مقایسه منحنی‌ها، مشاهده می‌شود که با افزایش دُز تابشی از ۱۰ گری تا ۴۰ گری، جریان نمونه‌ها افزایش می‌یابد. البته، با افزایش ضخامت نیز، جریان افزایش می‌یابد که می‌توان آن را به کاهش مقاومت در اثر افزایش ضخامت نسبت داد. افزایش ضخامت، موجب بزرگ‌شدن اندازه دانه‌ها و اندازه دانه‌ها، باعث افزایش تعداد حامل‌های بار و کاهش مرز دانه‌ها شده و درنتیجه، به افزایش رسانایی و کاهش مقاومت منجر می‌شود. میتی و همکاران [۲۱]، در پژوهش خود، تأیید کردند که افزایش ضخامت لایه نازک TeO_2 موجب افزایش جریان می‌شود.



شکل ۱۴. منحنی ولتاژ–جریان لایه با ضخامت ۲۳۰ نانومتر، قبل و بعد از تابش در دُزهای مختلف و قبل از بازپخت

خواص اکسیدهای فلزی، مستقیم یا غیرمستقیم، به حضور نقص‌ها و به‌خصوص تهی‌جاهای اکسیژن بستگی دارد. تهی‌جاهای اکسیژن، به‌طور طبیعی، در همه اکسیدها، به شکل نقص‌های شاتکی یا فرنکل حضور دارند و تعداد آن‌ها با روش‌های مختلف می‌تواند افزایش یا کاهش یابد. این باور وجود دارد که تابش‌های یونده[1] یا یون‌ساز باعث به‌وجودآمدن نقص‌های ساختاری می‌شود (اثر ترمیمی)[2] و با قرارگرفتن در معرض تابش گاما، حتی چگالی آن‌ها نیز تغییر می‌کند [۵ و ۳۰].

[1] Ionizing Radiation
[2] Healing Effect

طی لایه‌نشانی فیلم، بعضی از نقص‌های بلوری ذاتی پدید می‌آیند. برهم‌کنش[1] تابش گاما با فیلم، باعث ایجاد نقص شده و درنتیجه، در ریزساختار فیلم تغییر به‌وجود می‌آید. در دُزهای پایین، فیلم دارای ساختار دانه‌ای یکنواخت، بدون تخلخل بزرگ بوده و تعداد نقص‌ها بعد از تابش (القا شده به علاوه ذاتی باقی‌مانده)، به‌دلیل بازترکیب نقص‌ها، کمتر از تعداد نقص‌های ذاتی اولیه است. بازترکیب نقص‌ها، مقاومت فیلم را کاهش می‌دهد و باعث افزایش جریان می‌شود. با افزایش دُز تا حد معین، بسته به ضخامت فیلم، مقاومت، کاهش و جریان، افزایش می‌یابد [۱۳ و ۲۱].

در شکل ۱۵، منحنی جریان بر حسب دُزهای مختلف پرتو گاما، در ولتاژ ثابت ۹۰ ولت، برای نمونه با ضخامت ۲۳۰ نانومتر، به همراه برازش منحنی نشان داده شده است. معادله خط راست با خطای ۰/۱۳۵۵۲ به‌صورت زیر است:

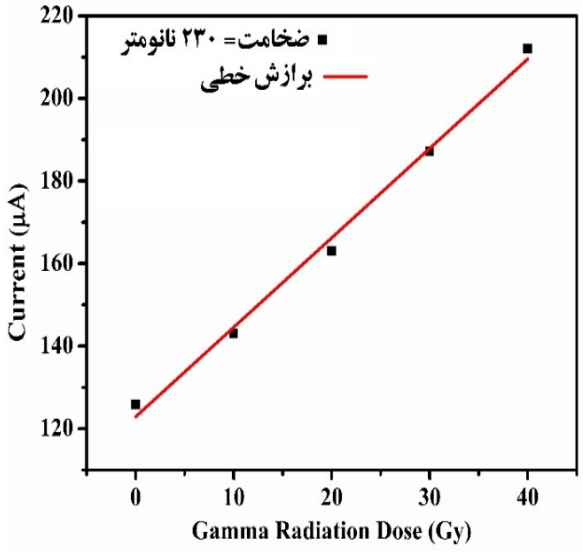
$$I = 2.166\,D + 122.88 \qquad (۵)$$

در این رابطه، I، جریان بر حسب میکرو آمپرمتر و D، دُز بر حسب گری است. باتوجه‌به این معادله، حساسیت برابر رابطه زیر است که مقدار قابل‌قبولی است.

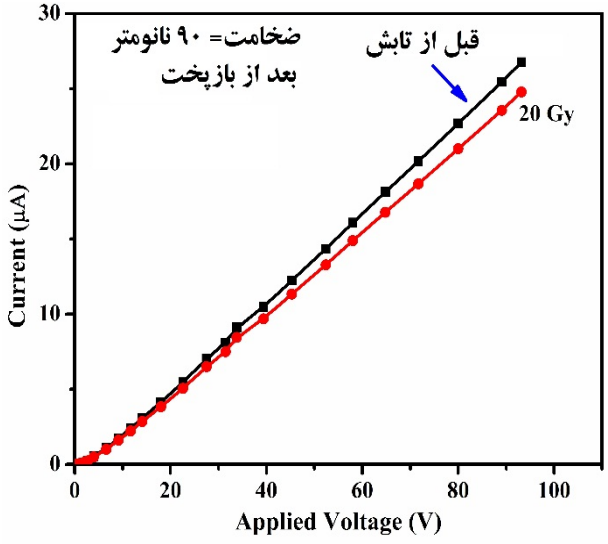
$$S = \frac{\partial I}{\partial D} = 2.166\left(\frac{\mu A}{Gy}\right) \qquad (٦)$$

بنابراین، نمونه، با ضخامت ۲۳۰ نانومتر، مناسب محدوده دُز ۱۰ تا ٤۰ گری است.

در شکل‌های ۱٦ تا ۱۸، منحنی ولتاژ–جریان لایه‌های با ضخامت‌های مختلف، قبل از تابش و بعد از تابش، در دُز ۲۰ گری نشان داده شده است؛ البته، این نمونه‌ها در دمای ٤۰۰ درجه سلسیوس، به‌مدت یک ساعت، در کوره مافل، بازپخت شده‌اند. با مقایسه جریان این نمونه‌ها با نمونه‌های قبل از بازپخت (شکل‌های ۱۲ تا ۱٤)، مشاهده می‌شود که با بازپخت نمونه‌ها، جریان به مقدار قابل توجهی افزایش یافته است به‌طوری که در نمونه‌های با ضخامت‌های ۱٤۰ و ۲۳۰ نانومتر، به حد میلی آمپر رسیده است. در این حالت، با تابش پرتو گاما، تغییر قابل توجهی در جریان مشاهده نمی‌شود و حتی مقداری کاهش هم نشان می‌دهد. دلیل این مسئله این است که بعد از بازپخت، تغییر ساختار و مورفولوژی لایه نازک TeO_2، نسبت به حالتی که در معرض تابش گاما قرار می‌گیرد، زیاد است. بنابراین، بعد از بازپخت، تابش گاما با دُز کم، تأثیر چندانی در خواص لایه نخواهد داشت و برای تغییر در خواص لایه نازک بعد از بازپخت، باید از تابش با دُز بالا استفاده کرد که می‌تواند به‌عنوان دُزیمتر در دُزهای بالا مورد استفاده قرار گیرد.

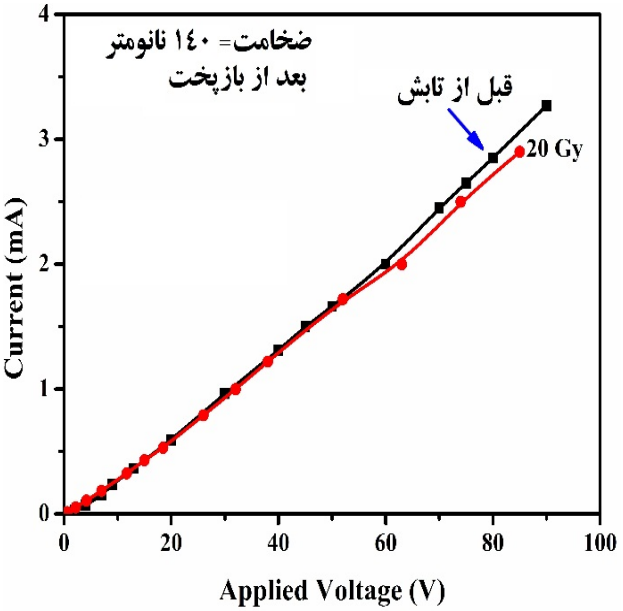


شکل ۱۵. منحنی جریان بر حسب دُز پرتو گاما لایه با ضخامت ۲۳۰ نانومتر در ولتاژ ثابت ۹۰ ولت

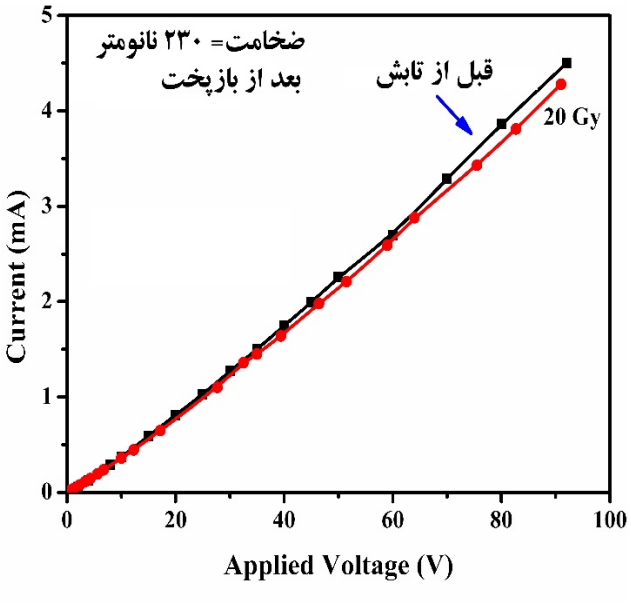


شکل ۱٦. منحنی ولتاژ–جریان لایه بازپخت‌شده در دمای ٤۰۰ درجه سلسیوس، با ضخامت ۹۰ نانومتر، قبل و بعد از تابش در دُز ۲۰ گری

[1] Interaction



شکل ۱۷. منحنی ولتاژ–جریان لایه بازپخت‌شده در دمای ٤۰۰ درجه سلسیوس، با ضخامت ۱٤۰ نانومتر، قبل و بعد از تابش در دُز ۲۰ گری



شکل ۱۸. منحنی ولتاژ–جریان لایه بازپخت‌شده در دمای ٤۰۰ درجه سلسیوس، با ضخامت ۲۳۰ نانومتر، قبل و بعد از تابش، در دُز۲۰ گری

٤- نتیجه‌گیری

در این پژوهش، لایه‌های نازک TeO_2، به روش لایه‌نشانی تبخیر حرارتی در خلأ، با موفقیت تهیه و پس از تابش گاما بررسی شدند. آنالیز EDX لایه TeO_2، عناصر Te و O را بدون وجود ناخالصی‌های دیگر نشان داد. نتایج XRD نشان داد لایه‌های بدون بازپخت، ساختاری بی‌شکل دارند که پس از بازپخت، ساختاری بلوری می‌یابند. ریخت‌شناسی سطح فیلم قبل از بازپخت، صاف، بدون وجود دانه‌های بلوری و بی‌شکل بود؛ اما در نمونه بعد از بازپخت، ساختار بلوری و وجود مرز دانه‌های ناشی از رشد دانه‌های بلوری، آشکار بود. بعد از بازپخت و بعد از تابش پرتو گاما، شدت جذب به‌طور پیوسته، افزایش و گاف انرژی، کاهش یافت. با مقایسه منحنی‌های ولتاژ–جریان، مشاهده شد که افزایش ضخامت لایه‌ها، افزایش دُز (در نمونه‌های قبل از بازپخت) و فرایند بازپخت، جریان نمونه‌ها را افزایش داد که این پایه و اساس تابش‌سنجی برای تابش گاما با لایه‌های نازک اکسیدی است. منحنی تغییرات دُز نسبت به جریان در نمونه با ضخامت ۲۳۰ نانومتر، خطی بود. ازاین‌رو، حساسیت دیود، عددی ثابت به‌دست آمد که نشانگر مناسب‌بودن تابش‌سنجی در محدوده ۱۰ تا ٤۰ گری بود.

۵- سپاسگزاری

نویسنده لازم می‌داند از جناب آقای دکتر یگانه، رئیس محترم مجتمع پژوهشی شمال‌غرب کشور که امکانات لازم برای انجام این پژوهش را فراهم کردند و نیز از جناب آقای مهندس مهدی تقوی، مسئول محترم دستگاه لایه‌نشانی که همکاری مفیدی در لایه‌نشانی نمونه‌ها انجام دادند، تقدیر و تشکر کند.

مراجع

1. Rashidi, M., Tamizifar, M., Boutorabi, S. M. A., "Characterization of nanostructure coatings of Ti-Al-C-N system deposited using plasma assisted chemical vapor deposition", ***Journal of Advanced Matrrials and Technologies***, Vol. 9, No. 1, (2020), 19-31. (In Farsi). https://doi.org/10.30501/jamt.2020.106192
2. Nourmohammadi, A., "Synthesis of lead zirconate titanate nanostructured thin films using polyols", ***Journal of Advanced Matrrials and Technologies***, Vol. 8, No. 2, (2019), 69-76. (In Farsi). https://doi.org/10.30501/jamt.2019.94187
3. Arshak, K., Korostynska, O., ***Advanced Materials and Techniques for Radiation Dosimetry***, Artech House, London, (2006). https://uk.artechhouse.com/Advanced-Materials-and-Techniques-for-Radiation-Dosimetry-P910.aspx
4. Arshak, K., Korostynska, O., "Thin- and thick-film real-time gamma radiation detectors", ***IEEE Sensors Journal***, Vol. 5, No. 4, (2005), 574-580. https://doi.org/10.1109/JSEN.2005.850992
5. Arshak, K., Korostynska, O., "Response of metal oxide thin film structures to radiation", ***Materials Science and Engineering B***, Vol. 133, No. 1-3, (2006), 1-7. https://doi.org/10.1016/j.mseb.2006.06.012
6. Phillips, G. W., Readshaw, A. K., Brown, G. O., Weiss, R. G., Guardala, N. A., Price, J. L., Mueller, S. C., Moscovitch, M.,

"Observation of radiation effects on three-dimensional optical random-access-memory materials for use in radiation dosimetry", ***Applied Radiation and Isotopes***, Vol. 50, No. 5 (1999), 875-881. https://doi.org/10.1016/S0969-8043(98)00139-0

7. Shpotyuk, O. I., "Amorphous chalcogenide semiconductors for dosimetry of high-energy ionizing radiation", ***Radiation Physics and Chemistry***, Vol. 46, No. 4-6, (1995), 1279-1282. https://doi.org/10.1016/0969-806X(95)00369-9
8. Uchida, N., Ohmachi, Y., "Elastic and photoelastic properties of TeO_2 single crystal", ***Jounal of Applied Physics***, Vol. 40, No. 12, (1969), 4692-4695. https://doi.org/10.1063/1.1657275
9. Siciliano, T., Di Giulio, M., Tepore, M., Filippo, E., Micocci, G., Tepore, A., "Ammonia sensitivity of rf sputtered tellurium oxide thin film", ***Sensors and Actuators B***, Vol. 138, No. 2, (2009), 550-555. https://doi.org/10.1016/j.snb.2009.02.068
10. Siciliano, T., Di Giulio, M., Tepore, M., Filippo, E., Micocci, G., Tepore, A., "Effect of thermal annealing time on optical and structural properties of TeO_2 thin films", ***Vacuum***, Vol. 84, No. 7, (2010), 935-939. https://doi.org/10.1016/j.vacuum.2009.12.017
11. Mivolil, D. S., Chee, F. P., Rasmidi, R., Alias, A., Salleh, S., Mohd Salleh, K. A., Jalal Bayar, A. M., "Gamma ray and neutron radiation effects on the electrical and structural properties of n-ZnO/p-$CuGaO_2$ Schottky diode", ***ECS Journal of Solid State Science and Technology***, Vol. 9, No. 4, (2020), 045019. https://doi.org/10.1149/2162-8777/ab8f19
12. Akay, D., Karadeniz, S., Birkan Selçuk, A., Bilge Ocak, S., "Effect of gamma-ray irradiation on the electrical characteristics of Al/$C_{24}H_{12}$/p-Si nano-structure", ***Physica Scripta***, Vol. 93, (2018), 095301. https://doi.org/10.1088/1402-4896/aad2a7
13. Sharma, S. L. and Maity, T. K., "Effect of gamma radiation on electrical and optical properties of $(TeO_2)_{0.9}$ $(InO_3)_{0.1}$ thin films", ***Bulletin of Materials Science***, Vol. 34, No. 1, (2011), 61-69. https://www.ias.ac.in/describe/article/boms/034/01/0061-0069
14. Abhirami, K. M., Sathyamoorthy, R., Asokan, K., "Structural, optical and electrical properties of gamma irradiated SnO thin films", ***Radiation Physics and Chemistry***, Vol. 91, (2013), 35-39. https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2013.05.030
15. Mucka, V., Podlaha, J., Silber, R., "NiO–ThO_2 mixed catalysts in hydrogen peroxide decomposition and influence of ionizing radiation", ***Radiation Physics and Chemistry***, Vol. 59, No. 5-6 (2000), 467-475. https://doi.org/10.1016/S0969-806X(00)00307-8
16. Arshak, K., Korostynska, O., Fahim, F., "Various structures based on nickel oxide thick films as gamma radiation sensors", ***Sensors***, Vol. 3, No. 6, (2003), 176-186. https://doi.org/10.3390/s30600176
17. Arshak, K., Korostynska, O., "Gamma radiation dosimetry using tellurium dioxide thin film structures", ***Sensors***, Vol. 2, No. 8, (2002), 347-355. https://doi.org/10.1109/ICSENS.2002.1037155
18. Arshak, K., Korostynska, O., Molloy, J., Harris, J., "Optical radiation sensing properties of MnO/TeO_2 thin films", ***IEEE Sensors Journal***, Vol. 6, No. 3, (2006), 656-660. https://doi.org/10.1109/JSEN.2006.874016
19. Almatari, M., "Gamma radiation shielding properties of glasses within the TeO_2-TiO_2-ZnO system", ***Radiochimica Acta***, Vol. 107, No. 6, (2019) 517-522. https://doi.org/10.1515/ract-2018-3058
20. Sayyed, M. I., Qashou, S. I., Khattari, Z. Y., "Radiation shielding competence of newly developed TeO_2-WO_3 glasses", ***Journal of Alloys and Compounds***, Vol. 696, (2017), 632-638. https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2016.11.160
21. Maity, T. K., Sharma, S. L., Chourasiy, G., "The real-time gamma radiation dosimetry with TeO_2 thin films", ***Radiation Measurements***, Vol. 47, No. 2, (2012), 145-148. https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2011.11.008
22. Arshak, K., Korostynska, O., "Effect of gamma radiation onto the properties of TeO_2 thin films", ***Microelectronics International***, Vol. 19, No. 3, (2002), 30-34. https://doi.org/10.1108/13565360210445023
23. Arshak, K., Korostynska, O., "Gamma radiation-induced changes in the electrical and optical properties of tellurium dioxide thin films", ***IEEE Sensors***, Vol. 3, No. 6, (2003), 717-721. https://doi.org/10.1109/JSEN.2003.820327
24. Sudha, A., Maity, T. K., Sharma, S. L., Gupta, A. N., "Gamma irradiation effect on the optical properties of tellurium dioxide films", ***Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B***, Vol. 461, (2019), 171–174. https://doi.org/10.1016/j.nimb.2019.09.050
25. Kumar, S., Mansingh, A., "Fabrication and characterization of tetragonal and orthorhombic TeO_2 films", ***Proceedings of IEEE 7th international symposium on Applications of ferroelectrics***, USA, (6-8 June, 1990), 717-719. https://doi.org/10.1109/ISAF.1990.200356
26. Mott, N. F., Davis, E. A., ***Electronic Processes in Non-Crystalline Materials***, 2nd ed., Oxford University Press, New York, (1979). https://global.oup.com/academic/product/electronic-processes-in-non-crystalline-materials 9780199645336?cc=ro&lang=en&#
27. Tauc, J., ***Amorphous and liquid semiconductors***, Plenum, London and New York, (1974). http://dx.doi.org/10.1007/978-1-4615-8705-7
28. Tohidi, T., "Investigation of gamma irradiation effect on optical properties of TeO_2 films", ***Proceeding of Annual Physics Conference of Iran***, Tabriz University, (2019), 441-417. (In Farsi). https://www.psi.ir/farsi.asp?page=physics98
29. Dewan, N., Sreenivas, K., Gupta, V., "Comparative study on TeO_2 and TeO_3 thin films for γ-ray sensor application", ***Sensors and Actuators A: Physical***, Vol. 147, No. 1, (2008), 115-120. https://doi.org/10.1016/j.sna.2008.04.011
30. Zhu, R. Y., "Radiation damage in scintillating crystals", ***Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment***, Vol. 413, No. 2–3, (1998), 297-311. https://doi.org/10.1016/S0168-9002(98)00498-7

فصلنامه مواد و فناوری‌های پیشرفته

Journal Homepage: www.jamt.ir

پژوهشگاه مواد و انرژی

مقاله کامل پژوهشی

اثر ساچمه‌زنی پرانرژی بر خواص پوشش استلایت ٦ اعمال‌شده روی فولاد زنگ‌نزن ۳۱٦ به روش لایه‌نشانی جرقه الکتریکی

مهدی غلام‌پور [۱*]، محمدحسن عامری [۲]

[۱] استادیار، گروه فیزیک، دانشکده علوم پایه، دانشگاه امام علی، تهران، تهران، ایران

[۲] کارشناسی ارشد، گروه فیزیک، دانشکده علوم پایه، دانشگاه امام علی، تهران، تهران، ایران

تاریخچه مقاله:

ثبت اولیه: ۱۳۹۹/۰٦/۲٤

دریافت نسخهٔ اصلاح‌شده: ۱۳۹۹/۰۸/۲۰

پذیرش قطعی: ۱٤۰۰/۰۷/۱۲

کلیدواژه‌ها:

لایه‌نشانی جرقه الکتریکی،

ساچمه‌زنی پرانرژی،

استلایت ٦،

فولاد زنگ‌نزن آستنیتی ۳۱٦

چکیده آلیاژ استلایت ٦، به روش لایه‌نشانی جرقه الکتریکی، روی زیرلایه‌ای از جنس فولاد زنگ‌نزن آستنیتی، لایه‌نشانی شد. نتیجه‌ی لایه‌نشانی، پوششی چسبنده به ضخامت ۱۰ ± ۱۰۰ میکرون بود. به‌منظور بهبود ویژگی‌های پوشش استلایت ٦ ایجادشده به روش جرقه الکتریکی، از فرایند ساچمه‌زنی پرانرژی، استفاده شد. ریزساختار پوشش، تغییرات ترکیب شیمیایی از سطح تا عمق، رفتار سایشی پوشش، ریزسختی و عیوب لایه پوشش قبل و بعد از فرایند ساچمه‌زنی پرانرژی، با استفاده از تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی نشر میدانی و میکروسکوپ نوری، آنالیز عنصری خطی و ارزیابی سایشی پین روی دیسک، بررسی شد و تأثیر فرایند ساچمه‌زنی روی پوشش استلایت، مورد مطالعه قرار گرفت. نتایج نشان می‌دهد که ساچمه‌زنی پرانرژی بر سطح پوشش استلایت ٦ (ایجادشده به روش لایه‌نشانی جرقه الکتریکی) سبب می‌شود که مشخصه زبری سطح پوشش از ۱٤ به ٤/٥ میکرون کاهش یابد و سختی آن از ٤٥۰ به ٥٤۰ ویکرز افزایش پیدا کند؛ از طرفی خواص سایشی پوشش بهبود یابد، میزان عیوبی نظیر تخلخل‌ها، کم شده و میکروترک‌ها و نقص در ذوب شدگی‌ها در اثر تنش‌های پسماند فشاری و تغییر شکل موم‌سان شدید، کور شوند.

https://doi.org/10.30501/jamt.2021.243604.1115 URL: https://www.jamt.ir/article_126419.html

Original Research Article

Journal of Advanced Materials and Technologies (JAMT): Vol. 10, No. 2, (Summer 2021), 83-96

Effect of High Energy Shot Peening on Properties of Stellite 6 Layer Coated on AISI 316 Using Electro-Spark Deposition

Mahdi Gholampour [1*], Mohammad Hassan Ameri [2]

[1] *Assistant Professor, Department of Physics, Faculty of Basic Sciences, Imam Ali University, Tehran, Tehran, Iran*

[2] *M. Sc., Department of Physics, Faculty of Basic Sciences, Imam Ali University, Tehran, Tehran, Iran*

Paper History:

Received: 2020-09-14

Revised in revised form: 2020-11-10

Accepted: 2021-10-04

Abstract Stellite-6 alloy was deposited on a SS316 stainless steel substrate by Electro-Spark Deposition; subsequently, the thickness of deposition layer was around 100 ± 10 micron. High Energy Shot Peening process was applied to improve coated layer properties. Microstructure, chemical composition, micro hardness variation in cross sections, wear properties and visual check for discontinuities of coated layer were

***عهده دار مکاتبات**

نشانی: ایران، تهران، تهران، دانشگاه امام علی، دانشکده علوم پایه، گروه فیزیک، **تلفن:** -، **دورنگار:** ۰۲۱-٦۱۰٤۸٤۲٦

پیام نگار: mahdi.gholampoor@gmail.com

Please cite this article as: Gholampour, M., Ameri, M. H., "Effect of high energy shot peening on properties of stellite 6 layer coated on AISI 316 using electro-spark deposition", ***Journal of Advanced Materials and Technologies (JAMT)***, Vol. 10, No. 2, (2021), 83-96. (https://doi.org/10.30501/jamt.2021.243604.1115).

2783-0829/© 2021 The Author(s). Published by MERC.

This is an open access article under the CC BY license (https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/).

Keywords:
Electro-Spark Deposition,
High Energy Shot Peening,
Stellite 6,
Austenitic Stainless Steel 316

studied by employing Field Emission Scanning Electron Microscopy, Optical Microscopy, EDS line scan and pin on disk wear test, before and after the high energy shot peening process. The results show decreasing the surface roughness from 14 to 4.5 micron and improving the micro-hardness of coated layer from 450 to 540 HVN due to High Energy Shot Peening process on the Electro-Spark Deposition coated layers. On the other hand, the wear properties of the coating are improved, the number of defects such as porosities is reduced, and micro-cracks and defects in melts are healed due to compressive residual stress and severe wax deformation.

https://doi.org/10.30501/jamt.2021.243604.1115 URL: https://www.jamt.ir/article_126419.html

۱- مقدمه

استلایت ٦[1] یک آلیاژ پایه کبالت است که به‌دلیل خواص سایشی و فرسایشی مطلوب و جوش‌پذیری مناسب، کاربرد وسیعی در صنایع دارد. استفاده از این آلیاژ به‌صورت پوشش، بسیار معمول است [٤-۱]. پوشش‌دهی استلایت روی سطح فولادها به روش‌های مختلفی انجام و بررسی شده است که از آن میان می‌توان به روش‌های پاشش حرارتی[2] [۵]، پاشش سرد[3] [٦]، پاشش حرارتی سوخت اکسیژن با سرعت بالا (HVOF)[4] [۵ و ۷]، روکش‌کاری جوش آرگون [۹ و ۱۰]، روکش‌کاری لیزری [۲ و ۱۱] و روکش‌کاری به روش لایه‌نشانی جرقه الکتریکی[5] [۱۲] یا به‌اختصار ESD اشاره کرد. یکی از کاربردهای شناخته‌شده برای روکش‌کاری استلایت روی سطح، تقویت خواص سایشی قطعاتی است که در معرض سایش و یا فرسایش قرار دارند؛ پره‌های توربین و پمپ [۱۳ و ۱٤]، قالب‌های ریخته‌گری تحت فشار[6]، اجزای داخلی شیرآلات صنعتی[7] [۱۲ و ۱۵] و برخی از قطعات نظامی نظیر این قطعات هستند. طی دهه گذشته، روش لایه‌نشانی جرقه الکتریکی به‌خاطر قابلیت بالایی که در روکش‌کاری فلزی و تعمیر قطعات با مواد و هندسه پیچیده دارد، جذابیت پیدا کرده است [۱۳ و ۱٦].

لایه‌نشانی جرقه الکتریکی یک فرایند میکروجوشکاری (لایه‌نشانی نازک) است که گرمای فرایندی بسیار پایینی دارد. در این روش از الکترود مصرفی چرخان با جریان الکتریکی قوی و ضربانی، با دوره تکرار کوتاه برای ایجاد لایه پوشش استفاده می‌شود. در این فرایند، ضربان جریان الکتریکی در دوره‌ای بسیار کوتاه و گذرا سبب ایجاد یک چرخه گرمایی بسیار سریع می‌شود. در اثر این چرخه گرمایی، قطرات ریز مذاب، روی نوک الکترود مصرفی شکل گرفته و توسط قوس الکتریکی و چرخش الکترود به سمت زیرلایه شتاب می‌گیرند و در ادامه با برخورد به سطح سرد لایه زیرین، به‌دلیل نسبت بسیار پایین حجم قطرات مذاب به حجم کل قطعه، با سرعت بسیار زیادی منجمد می‌شوند و یک لکه نشست‌داده‌شده را شکل می‌دهند. در اثر تکرار این فرایند و نشست قطرات متعدد روی هم، درنهایت یک روکش فلزی چندلایه تشکیل می‌شود [۲۰-۱۷]. فرایند لایه‌نشانی جرقه الکتریکی در قیاس با دیگر فرایندهای جوشکاری، سرعت انجماد بسیار بالایی دارد که این مسئله امکان تشکیل ریزساختارهای بی‌شکل (آمورف[8]) را برای ترکیبات شیمیایی خاص فلزی فراهم می‌کند [۲۱]. بازیابی و تعمیر برخی آلیاژهای پیشرفته با استفاده از فرایند لایه‌نشانی جرقه الکتریکی به‌طور موفقی انجام شده است که می‌توان به تعمیر پره‌های توربین از جنس IN713[9] اشاره کرد [۱۳]. روکش‌های فلزی ایجادشده به این روش به‌دلیل گرمای فرایندی بسیار پایین، تغییرات بسیار کمی در ماده زیرلایه ایجاد می‌کنند و در این روش برخلاف دیگر روش‌های جوشکاری، اعوجاج در زیرلایه بسیار ناچیز است [۲۲]. در روش لایه‌نشانی جرقه الکتریکی به‌دلیل پیوند متالورژیکی بین پوشش و زیرلایه، چسبندگی پوشش بالاست [۱۷, ۲۱ و ۲۳]. از طرفی این فرایند قادر است پوششی نازک با ضخامت میکرونی ایجاد کند [۲۱]. پوشش‌دهی استلایت ٦ روی سطح فولاد زنگ‌نزن آستنیتی در مقاوم‌سازی و یا بازیابی قطعات داخلی شیرآلات صنعتی که دارای ابعاد کوچک و هندسه نسبتاً پیچیده هستند، کاربرد دارد [۱٤ و ۱۵] که می‌توان به توپی[10] در شیرهای توپی[11] و دیسک[12] در شیرهای پروانه‌ای[13] اشاره کرد. این قطعات گاهی

[1] Stellite-6
[2] Thermal Spray
[3] Cold Spray
[4] High Velocity Oxy-Fuel
[5] Electro Spark Deposition
[6] Die Cast Mold
[7] Valve Trim Part

[8] Amorphous
[9] Inconel 718
[10] Ball
[11] Ball Valves
[12] Disk
[13] Butterfly Valves

در اثر عبور سیال دمابالا مثل بخار فوق‌داغ[1] و یا سیالات نفتی حاوی ذرات ساینده، دچار فرسایش می‌شوند. با ایجاد پوشش استلایت ٦ روی سطح قطعات یادشده، می‌توان فرسایش آن‌ها را تا حد زیادی به تعویق انداخت. یکی از مهم‌ترین عیوب گزارش‌شده در اثر فرایندهایی نظیر پاشش حرارتی، پاشش سرد، HVOF، روکش‌کاری با لیزر و یا لایه‌نشانی جرقه الکتریکی، میکروترک‌ها و تخلخل‌هایی هستند که در پوشش ایجاد می‌شوند و می‌توانند به منزله محل جوانه‌زنی ترک‌ها باشند و تخریب پوشش را تسریع کنند [٦, ١١ و ٢٤]. از طرفی در فرایند لایه‌نشانی جرقه الکتریکی، به‌دلیل ذوب و انجماد سریع قطرات ریز مذاب، حجم بالایی از تنش‌های کششی در پوشش ایجاد می‌شود که سبب تسریع در رشد ترک‌ها خواهد شد [١٨ و ٢٣]. به‌طورکلی گزارش شده است که می‌توان تأثیر این میکروترک‌ها و عیوب مشابه را در پوشش‌های اعمالی، با ضربه‌زنی[2] سطح و ایجاد تنش‌های پسماند فشاری ناشی از آن، کاهش داد و یا آثار تخریبی آن‌ها را کم کرد [٢٤ و ٢٦]. در پژوهشی که کالنتیک[3] و همکارانش [٢٤ و ٢٥] انجام دادند از فرایند ضربه‌زنی شوک لیزری[4] برای ایجاد تنش‌های پسماند فشاری در پوشش لیزری ایجادشده استفاده کردند. نتایج آن پژوهش نشان داد که به‌کارگیری تنش‌های پسماند فشاری سبب کاهش میزان تخلخل و کور شدن ترک‌ها و عیوب می‌شود که می‌تواند در افزایش خواص و یا بهبود عملکرد قطعه بسیار مؤثر باشد. فرایند ساچمه‌زنی پرانرژی[5] یا به‌اختصار HESP، تأثیری شبیه به ضربه‌زنی شوک لیزری دارد و با ایجاد تنش‌های پسماند فشاری در سطح، ضمن آزاد کردن تنش پسماند کششی ناشی از فرایند لایه‌نشانی جرقه الکتریکی، باعث بهبود خواص مکانیکی پوشش می‌شود [٢٥]. مطالعه علیخانی و همکارانش [٢٧] نشان می‌دهد که ساچمه‌زنی روی سطح تیتانیوم خالص تجاری به روش عملیات ضربه‌زنی مکانیکی (SMAT)[6]، سبب فوق‌ریزدانه[7]شدن ریزساختار سطح، کاهش ضریب اصطکاک و بهبود خواص سایشی سطح می‌شود.

در این پژوهش از فرایند ساچمه‌زنی مکانیکی پرانرژی با نیرو و بسامد برخورد بالا به‌منظور بهبود خواص سایشی پوشش استلایت ٦ ایجادشده به روش لایه‌نشانی جرقه الکتریکی، استفاده شد و تأثیر آن بر ویژگی‌های سطح، مورد بررسی قرار گرفت.

۲- روش تحقیق

۲-۱- مواد

جدول (۱)، ترکیب شیمیایی فولاد زنگ‌نزن آستنیتی SS316 و آلیاژ استلایت ٦ را که در این پژوهش به‌ترتیب به‌عنوان زیرلایه و فلز پوششی به‌کار رفته‌اند، نشان می‌دهد.

جدول ۱. ترکیب شیمیایی فولاد زنگ‌نزن آستنیتی و آلیاژ پایه کبالت استفاده‌شده در این پژوهش

درصد وزنی		C	Cr	W
استلایت ٦		۱	۲۷	٤/٥
Fe	Mn	Ni	Si	Co
۲/٥	۱/۱	۲/٥	۱	Bal
درصد وزنی		C	Cr	Mo
SS 316		۰/۰٥	۱۸/٥	۱/۹
Fe	Mn	Ni	Si	Co
Bal	۱/٤	۱۱/۱	۰/٤٦	۰/۰٦

۲-۲- لایه‌نشانی جرقه الکتریکی

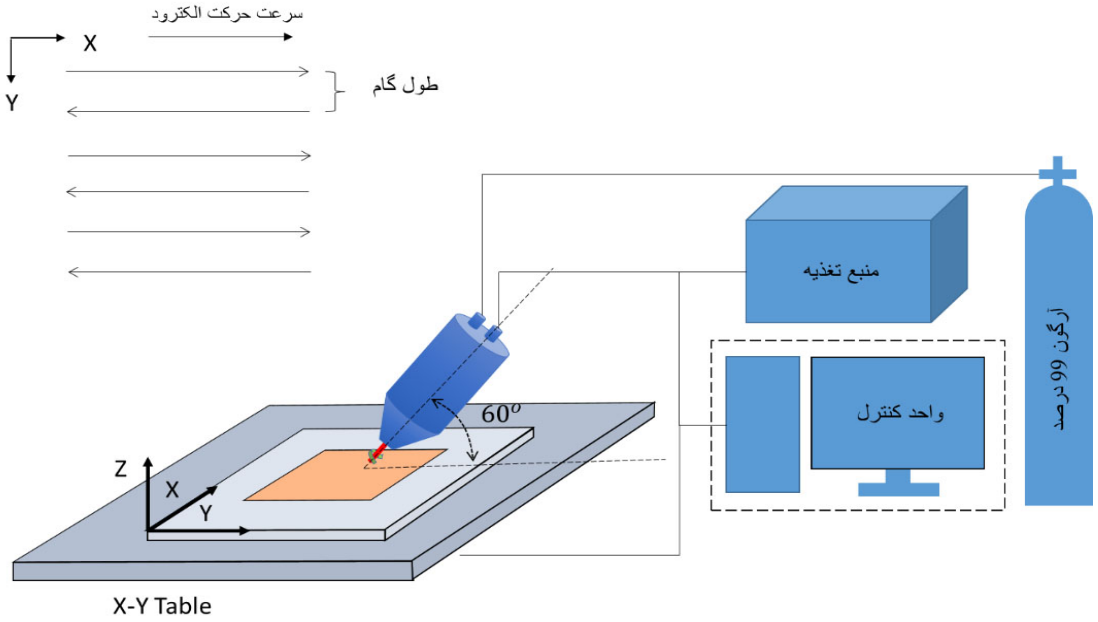
از روش لایه‌نشانی جرقه الکتریکی برای ایجاد پوشش استلایت ٦ روی فولاد زنگ‌نزن آستنیتی SS316 استفاده شد. در این پژوهش سطح یک ورق فولادی زنگ‌نزن آستنیتی SS316 به ضخامت ۲ میلی‌متر با سنباده شماره ٦۰۰ سنباده‌زنی شد و سپس به‌وسیله محلول استون، چربی‌زدایی گردید.

شکل (۱)، طرح‌واره فرایند لایه‌نشانی جرقه الکتریکی را روی سطح نشان می‌دهد. در این روش، از الکترود چرخان با زاویه ٦۰ درجه نسبت به سطح استفاده شد. جرقه‌های کنترل‌شده به‌وسیله منبع تغذیه با پتانسیل الکتریکی ۱۲۰ ولت و جریان متوسط ۳ آمپر تولید شدند. سرعت خطی دسته عملگر ٥۰ میلی‌متر بر دقیقه و سرعت دورانی الکترود ۳۰۰

[1] Super-Heated Steam
[2] Peening
[3] N. Kalentics
[4] Laser Shock Peening
[5] High Energy Shot Peening
[6] Surface Mechanical Attrition Treatment
[7] Ultrafine Grain

دور در دقیقه بود که طی آن نوک الکترود توسط جریان گاز محافظ آرگون با دبی ۱۵ لیتر بر دقیقه محافظت شد.

همان‌طور که در شکل (۱) مشاهده می‌شود، مسیر حرکت عملگر به‌صورت رفت و برگشتی است و پس از هر بار روبش مسیر در راستای X، به‌طور متوالی یک گام در مسیر Y حرکت می‌کند. جدول (۲)، مشخصه‌های فرایندی به‌کاررفته در لایه‌نشانی پوشش استلایت ٦ را روی سطح فولاد زنگ‌نزن نشان می‌دهد.



شکل ۱. طرح‌واره روش لایه‌نشانی جرقه الکتریکی

جدول ۲. مشخصه‌های به‌کاررفته در لایه‌نشانی آلیاژ استلایت ٦ روی فولاد زنگ‌نزن آستنیتی SS316

مشخصه‌های منبع تغذیه	پتانسیل الکتریکی (ولت)	۱۲۰
	شدت‌جریان (آمپر)	۳
	ظرفیت خازن (فاراده)	۱۰۰
عملگر	چرخش الکترود (دور بر دقیقه)	۳۰۰
	جریان گاز محافظ (لیتر بر دقیقه)	۱۵
	زاویه الکترود (درجه)	٦۰
	سرعت حرکت (میلی‌متر بر دقیقه)	۵۰
	طول گام (میلی‌متر)	۱/۲

۲-۳- ساچمه‌زنی پرانرژی

ساچمه‌زنی پرانرژی (به‌عنوان فرایند تکمیلی) برای بهبود خواص سطحی پوشش ایجادشده به روش لایه‌نشانی جرقه الکتریکی انجام شد. از ساچمه‌های فولادی مقاوم به سایش هاردکس[1]، استفاده شد. جدول (۳) مشخصه‌های به‌کاررفته در ساچمه‌زنی پرانرژی را نشان می‌دهد. در این فرایند ساچمه‌ها با نیرو و بسامد معین، به‌طور مکرر و در بازه زمانی مشخص به سطح برخورد می‌کنند. تفاوت عمده روش ساچمه‌زنی پرانرژی با روش ساچمه‌زنی معمولی، بالاتربودن انرژی برخورد ساچمه‌ها در این روش است [۲۹]. در این پژوهش، سطح پوشش استلایت لایه‌نشانی‌شده به روش ESD به‌مدت ٦۰ دقیقه با ساچمه‌های فولاد ضدسایش هاردکس (به قطر ۰/٤ میلی‌متر و سختی ٦۵۰ ویکرز[2]) با نیروی ۱۰۰۰ نیوتن عملیات ساچمه‌زنی شد و این کار ۱۵ بار در ثانیه تکرار شد.

۲-٤- متالوگرافی

به‌منظور بررسی ریزساختار پوشش و زیرلایه، از نمونه‌ها، برش عرضی تهیه و سپس سنباده‌زنی سطح مقطع انجام شد. در ادامه، با استفاده از پارچه پرداخت‌کاری و سوسپانسیون آلومینا با اندازه ذرات کمتر از ۰/۳ میکرون

[1] Hardex
[2] Vickers

(به‌عنوان ساینده)، پرداخت سطح مقطع برشی پوشش به‌خوبی صورت گرفت.

جدول ۳. مشخصه‌های به‌کاررفته در ساچمه‌زنی پرانرژی سطح

جنس ساچمه	نیرو (نیوتن)	فرکانس برخورد (هرتز)	قطر ساچمه (میلی متر)	زمان (دقیقه)
فولاد هاردکس	۱۰۰۰	۱۵	۰/٤	٦۰

۲-۵- ریزسختی سنجی

با استفاده از دستگاه مدل Buehler LTD و مطابق با استاندارد ASTM E384-99، ریزسختی نمونه‌ها ارزیابی شد. بار اعمالی ۱۰۰ گرم، زمان بارگذاری ۱۵ ثانیه و حداقل فاصله اثر فرورونده‌ها در تهیه پروفیل سختی، ۲۰ میکرون به‌صورت شعاعی بود. لازم به ذکر است برای افزایش دقت سختی‌سنجی، اندازه‌گیری قطر اثر به‌وسیله میکروسکوپ نوری مدل Olympus BX51M و با بزرگنمایی ۵۰۰ برابر انجام شد.

۲-٦- زبری‌سنجی سطحی

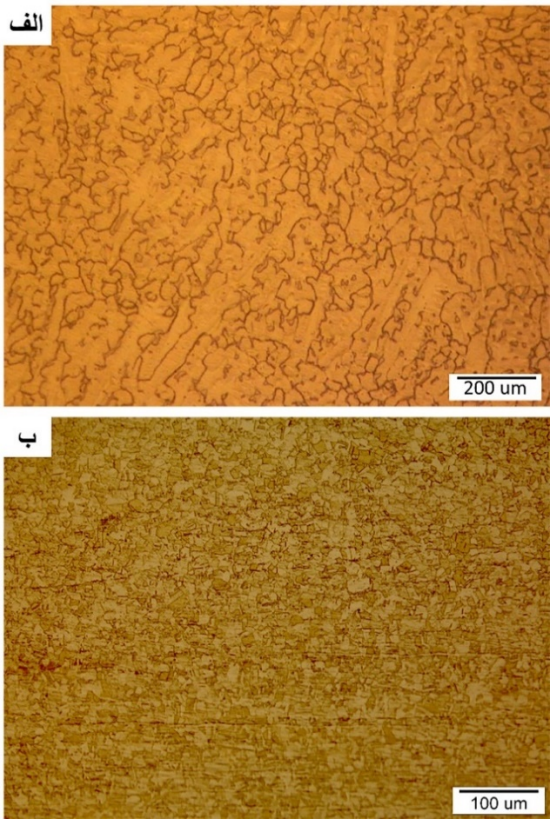
با استفاده از دستگاه زبری‌سنج لیزری پرتابل Surtonic25، زبری سطح پوشش براساس استاندارد ISO–4287 اندازه‌گیری شد. با هدف افزایش اطمینان از نتایج به‌دست‌آمده، روبش سطح در دو مسیر عمود بر هم در جهت x و y انجام شد.

۲-۷- ارزیابی خواص سایشی

ویژگی‌های سایشی استلایت در دمای محیط به روش سایش پین روی دیسک و براساس استاندارد ASTM G99-17 بررسی شد. در این پژوهش از ساچمه فولادی ضدسایش AISI52100 به‌عنوان ساینده با سختی ۸۵۰ ویکرز و قطر ۱ میلی‌متر استفاده شد. نیروی اعمالی، ۱۰ نیوتن و مسافت سایش، ٦۰۰ متر در مسیر دایره‌ای با سرعت خطی ۲۰ میلی‌متر بر ثانیه انتخاب شد. تصاویر ریزساختاری نمونه‌ها توسط یک دستگاه میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM[1]) مدل XI30 ساخت شرکت Philips کشور هلند انجام شده است. این میکروسکوپ مجهز به دستگاه طیف سنج توزیع انرژی پرتو ایکس (EDXS) مدل IS2300 ساخت شرکت SERON کشور کره جنوبی بوده که جهت آنالیز عنصری استفاده شده است. به دلیل رسانا بودن سطح نمونه‌ها، نیازی آماده سازی وجود نداشت. تمیز بودن سطح نمونه‌ها برای تصویر برداری از الزام‌ها می‌باشد.

۳- نتایج و بحث

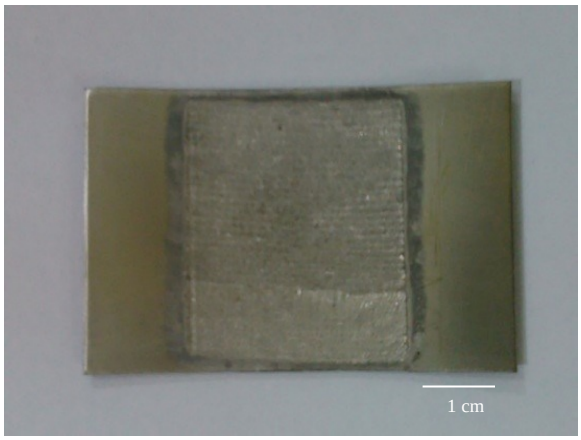
شکل (۲)، تصویر میکروسکوپی ریزساختار استلایت ٦ و فولاد زنگ‌نزن آستنیتی را که به‌ترتیب به‌عنوان فلز پوششی و زیرلایه به کار رفته‌اند، نشان می‌دهد. ریزساختار مفتول آلیاژ استلایت ٦ به‌طورکلی از دانه‌های فاز فریت تشکیل شده است (شکل ۲-الف) اما وجود عنصر کاربیدزای قوی مثل تنگستن در کنار درصد قابل‌توجهی از عنصر کرم و کربن، باعث تشکیل ساختارهای پرلیتی ظریف در نواحی مرزدانه‌ای فاز فریت می‌شود که شناسایی آن‌ها تنها در بزرگنمایی‌های خیلی بالا امکان‌پذیر است [۲]. شکل ۲-ب، ریزساختار فولاد زنگ‌نزن ۳۱٦ شامل دانه‌های فاز آستنیت را نشان می‌دهد.



شکل ۲. تصویر میکروسکوپی ریزساختار الف) سوپرآلیاژ استلایت ٦ و ب) فولاد زنگ‌نزن آستنیتی SS316

[1] Scanning Electron Microscopy

شکل (۳)، تصویر بررسی در مقیاس میکرونی از سطح پوشش ایجادشده را به روش لایه‌نشانی جرقه الکتریکی در ۵ لایه نشان می‌دهد. همان‌طور که در تصویر نیز مشخص است، ناحیه‌ای مربع‌شکل به ابعاد ۳×۳ سانتی‌متر از یک ورق فولاد زنگ‌نزن آستنیتی SS316 به روش لایه‌نشانی جرقه الکتریکی، پوشش‌دهی شده است.

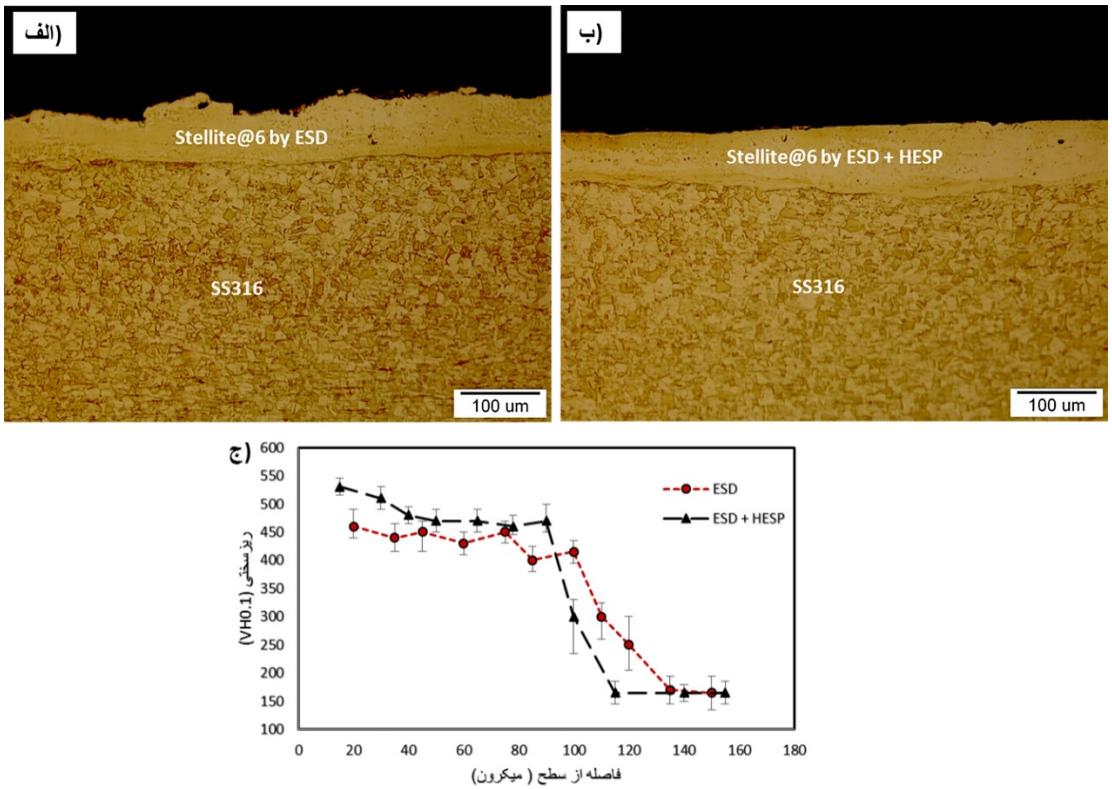


شکل ۳. تصویر سطح پوشش استلایت ٦ روی فولاد زنگ‌نزن ۳۱٦ اعمال‌شده به روش ESD

شکل ٤-الف و ب، به‌ترتیب مقطع برشی پوشش را در حالت لایه‌نشانی‌شده به روش ESD و ESD + HESP نشان می‌دهد.

مقایسه این دو شکل نشان می‌دهد که پوشش نوع دوم به‌دلیل برخورد ساچمه‌ها، سطح یکنواخت‌تری دارد و موجی شدن سطح در اثر فرایند ESD به‌دلیل روبش سطح در دو بُعد است که بعد از ساچمه‌زنی پرانرژی با نیرو و بسامد مشخص، به‌خوبی اصلاح و برطرف شده است؛ به‌طوری‌که سطح پوشش، یکنواخت شده است.

سطح پوشش ایجادشده به روش لایه‌نشانی جرقه الکتریکی، به‌طور معمول بافت‌دار است [۳۰]. این مسئله در برخی از کاربردها مطلوب است. به‌عنوان مثال ایجاد زبری و بافت کنترل‌شده روی سطح کاشتنی‌های پزشکی توصیه شده است [۳۳-۳۱]. اما در برخی دیگر از کاربردها، کاهش زبری سطح مرجح و مطلوب است؛ به این علت، به‌کارگیری روش‌هایی که بتوان به صافی و یکنواختی بهتری دست یافت، توصیه می‌شود.



شکل ٤. مقاطع برشی از پوشش استلایت ٦ روی فولاد زنگ‌نزن ۳۱٦ الف) لایه‌نشانی‌شده به روش ESD، ب) لایه‌نشانی‌شده به روش ESD+HESP. و ج) نمودار تغییرات عدد سختی از سطح تا عمق برای تصاویر الف و ب

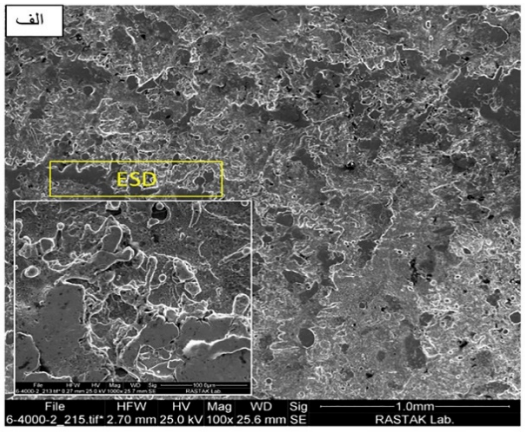
شکل ٤-ج، پروفیل ریزسختی از پوشش به سمت زیرلایه را نشان می‌دهد. نتایج ریزسختی مقطع پوشش

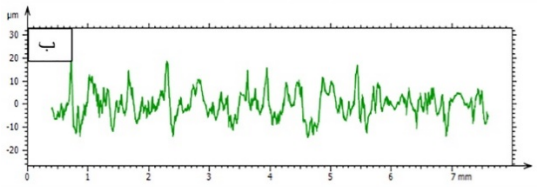
استلایت، عددی بیش از ۴۰۰ ویکرز را نشان می‌دهد؛ درحالی‌که عدد سختی مفتول آلیاژ استلایت به‌عنوان الکترود، ۳۸۰ ویکرز است. این مسئله را می‌توان به ذوب و انجماد سریع هنگام فرایند لایه‌نشانی، مرتبط دانست. همان‌طور که مشاهده می‌شود با افزایش فاصله از سطح، عدد سختی پوشش، با شیب بسیار ملایم کم می‌شود. علت آن می‌تواند ناشی از تأثیر حرارتی نشست لایه‌های رویی پوشش باشد. البته رقیق‌شدگی[1] پوشش نیز عامل مؤثر دیگر این مسئله است. در تصویر ٤-ج، پروفیل سختی نمونه پوشش‌دهی‌شده به روش ESD + HESP[2] نیز نشان داده شده است. از مقایسه پروفیل سختی‌ESD + HESP با نمونه ESD درمی‌یابیم که میانگین سختی از سطح تا عمق ۳۵ میکرون در روش ESD + HESP درحدود ۷۰ ویکرز بالاتر است. علت این مسئله را می‌توان به تأثیر کارسختی، ناشی از فرایند ساچمه‌زنی پرانرژی، مرتبط دانست [۲۵, ۲۸]. همان‌طور که پیشتر نیز اشاره شد، ریزساختار فلز استلایت ٦ حاوی دانه‌های فاز فریت است [٤]. سختی و استحکام این نوع ریزساختار در اثر کارسختی، افزایش می‌یابد [۳٤]. نتایج به‌دست‌آمده در عمق ۳۵ تا ۱۰۰ میکرون، میانگین سختی بالاتری را برای منحنی ESD + HESP نسبت به ESD نشان می‌دهد؛ اما بنا به داده‌های به‌دست‌آمده و دقت اندازه‌گیری آن‌ها، این سختی بیشتر، معنی‌دار و قابل استناد نیست. دامنه تغییرات سختی در فاصله ۹۰ تا ۱۱۵ میکرون از سطح پوشش، گسترده است. این مسئله می‌تواند ناشی از رقیق‌شدگی در اثر فرایند ESD باشد که در ادامه نیز با روبش عنصری خطی[3]، به‌طور دقیق نشان داده شده است. رقیق‌شدگی سبب می‌شود که عدد سختی در این نواحی در محدوده میانی بین پوشش و زیرلایه قرار گیرد [۳۵]. نتایج پروفیل ریزسختی، عدد سختی زیرلایه را ۱٦۰ تا ۱۷۰ ویکرز نشان می‌دهد. در فاصله ۹۵ میکرون از سطح، دو منحنی پروفیل سختی یکدیگر را قطع کرده‌اند. علت آن، کاهش ضخامت پوشش در ESD + HESP نسبت به ESD در شرایط لایه‌نشانی مشابه است؛ چراکه در اثر فرایند ساچمه‌زنی پرانرژی، ضخامت ماده لایه‌نشانی‌شده در اثر کار مکانیکی و فرسایش سطح، کاهش می‌یابد. مشاهدات نشان می‌دهد که مقدار این کاهش درحدود ۱۰ میکرون است.

شکل ۵-الف و ٦-الف، به‌ترتیب تصویر میکروسکوپی الکترونی از سطح نمونه ESD و ESD + HESP را در حالت شناسایی الکترون ثانویه و با دو بزرگنمایی متفاوت نشان می‌دهد. مقایسه این دو شکل نشان می‌دهد که سطح پوشش ESD به‌ظاهر زبرتر از ESD + HESP است. به‌منظور صحت‌سنجی مشاهدات، ویژگی زبری سطح به روش زبری‌سنجی غیرتماسی لیزری اندازه‌گیری شد. شکل ۵-ب و ٦-ب، به ترتیب پروفیل زبری سطح پوشش استلایت ٦ را در حالت ESD و ESD + HESP نشان می‌دهد. نتایج بیانگر این است که میانگین انحراف پروفیل زبری از خط متوسط، یا همان مشخصه زبری سطح (R_a)، از عدد ٤/۵۳ میکرون (در ESD) به ۱/۹ میکرون (در ESD + HESP) کاهش یافته است. همچنین از مقایسه پروفیل زبری دو پوشش مشاهده می‌شود که در اثر ساچمه‌زنی پرانرژی، ارتفاع بیشینه قله در سطح (R_p)، از عدد ۱۳/۹ (در ESD) به ٤/۳ (در ESD + HESP) کاهش یافته و شکل قله‌ها نیز از حالت تیز افزایشی و کاهشی شدید به حالت نرم و پهن درآمده است. قابل‌ذکر است که فرایند HESP اثر قابل‌توجهی روی عمق دره نداشته است؛ به این شکل که عمق بیشینه دره (R_v)، تغییرات محسوسی را نشان نمی‌دهد و عدد آن برای قبل و بعد از HESP به ترتیب ۱۲/٤ و ۱۱ میکرون است. پیش‌بینی می‌شود که فرایند HESP تعدادی از دره‌ها را کور کرده باشد، بااین‌وجود درصد قابل‌توجهی از این دره‌ها، مشخصه خود را حفظ کرده‌اند. لازم به ذکر است که موج و شیب سطح پوشش در روش زبری‌سنجی لیزری با استفاده از امکانات دستگاه، تصفیه شده است و پروفیل‌های قابل‌مشاهده در تصویر ۵-ب و ٦-ب، صرفاً زبری سطح را نشان می‌دهند.

یکنواختی و کاهش زبری سطح پوشش در اثر فرایند ساچمه‌زنی پرانرژی (HESP)، علاوه‌بر کاهش تمرکز تنش در اثر کاهش زبری، سبب ایجاد تنش پسماند فشاری در سطح و نیز کور شدن میکروترک‌ها و آزاد شدن تنش‌های پسماند کششی در پوشش می‌شود که ممکن است در اثر آن‌ها تخریب تشدید شود [۲۵ و ۲٦].

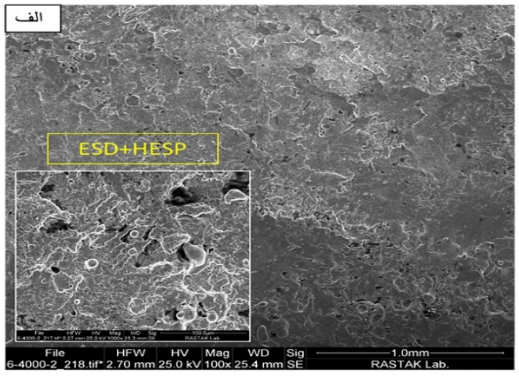
[1] Dilution
[2] Electro Spark Position + High Energy Shot Peening
[3] Line Scan

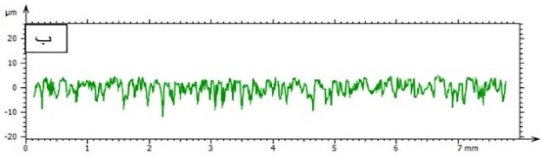




Rp	13.9 micron
Rv	12.4 micron
Ra	4.53 micron

شکل ۵. مشخصه‌های زبری سطح پوشش استلایت لایه‌نشانی‌شده به روش لایه‌نشانی جرقه الکتریکی (ESD) الف) تصویر SEM از سطح پوشش در دو بزرگنمایی و ب) منحنی زبری‌سنجی لیزری سطح به همراه مشخصه‌های سنجش زبری





Rp	4.3 micron
Rv	11 micron
Ra	1.9 micron

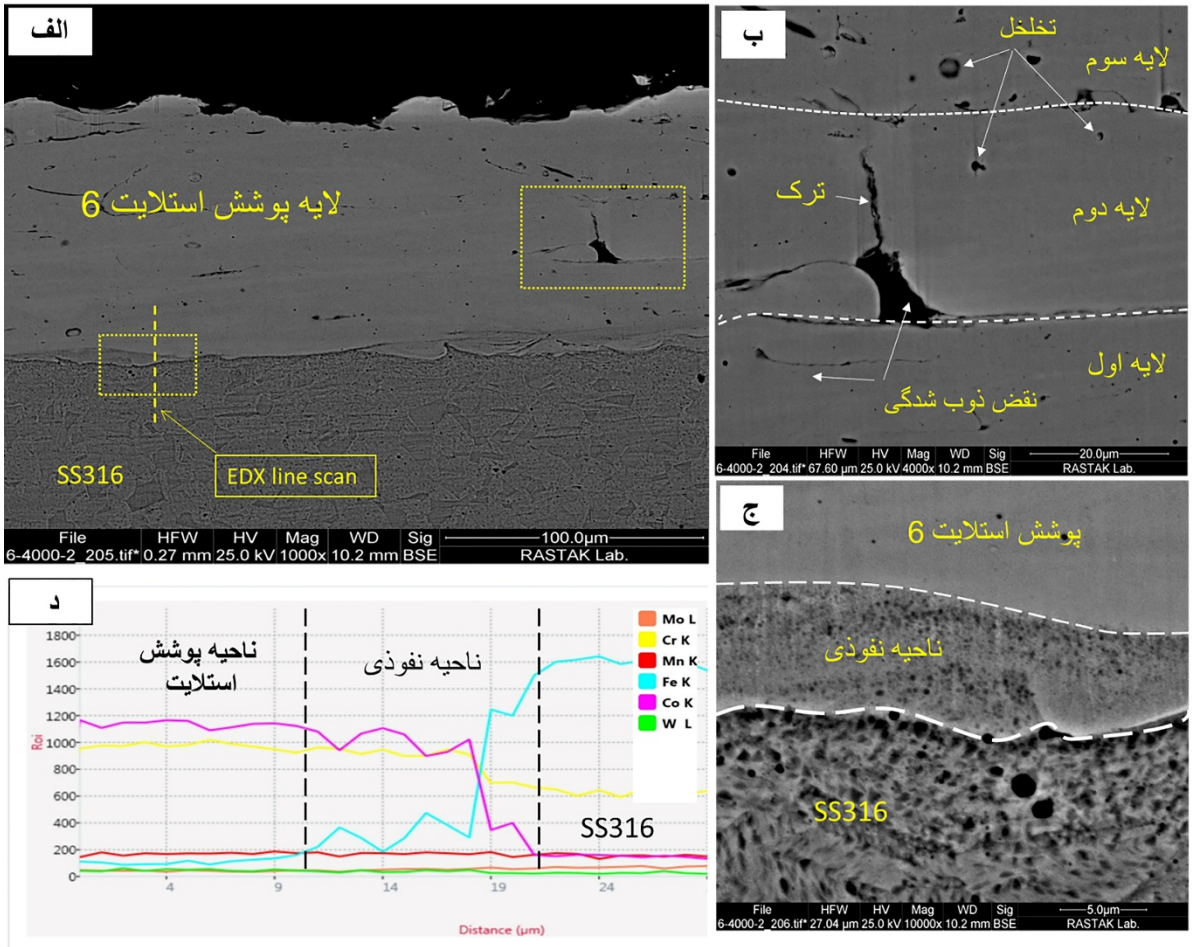
شکل ٦. مشخصه‌های زبری سطح پوشش استلایت لایه‌نشانی‌شده به روش لایه‌نشانی جرقه الکتریکی به همراه ساچمه‌زنی پرانرژی سطح (ESD + HESP) الف) تصویر SEM از سطح پوشش در دو بزرگنمایی و ب) منحنی زبری‌سنجی لیزری سطح به همراه مشخصه‌های سنجش زبری

شکل (۷)، تصاویر SEM مقطع برشی پوشش استلایت ٦ را روی زیرلایه فولاد زنگ‌نزن آستنیتی SS316 نشان می‌دهد. شکل ۷-الف، تصویر کلی مقطع برش و شکل ۷-ب، تصویر مقطع پوشش استلایت در بزرگنمایی بالاتر را نشان می‌دهد. در شکل‌های ۷-الف و ب، ناپیوستگی‌هایی مثل تخلخل[1]، نقص در ذوب‌شدگی[2] و ترک[3] قابل‌مشاهده است. هرکدام از این عیوب می‌تواند منشأ تخریب پوشش و کاهش عملکرد آن باشد. نقص در ذوب‌شدگی، ناپیوستگی خطرناک و مخربی است. این عیب، زمانی اتفاق می‌افتد که قطره مذاب که از سر الکترود جدا و به سمت سطح پرتاب می‌شود، دمای لازم را برای امتزاج و ایجاد پیوند متالورژیکی با لایه‌های زیرین نداشته باشد و یا این‌که آلودگی سطح زیر لایه ناشی از عدم حفاظت صحیح از سطح پوشش، امکان امتزاج را سلب نماید [۱۷]. این عیب، به‌دلیل شکل کشیده‌ایی که دارد، باعث تمرکز تنش در نوک ناحیه ناپیوسته شده و نسبت به بارگذاری کششی حساس است و سبب تسریع در تخریب پوشش می‌شود. عیب دیگری که در این پوشش قابل‌مشاهده است، ترک است. به‌دلیل ماهیت کشیده و تمرکز تنش در رأس آن و در راستای عمود بر سطح پوشش، از عیوب بسیار مخرب محسوب می‌شود. به‌دلیل ماهیت ترک و منشأ متالورژیکی آن، معمولاً این عیب در روش ESD در جهت انجماد اتفاق می‌افتد [۱۸]. ابراهیم‌نیا و همکارانش [۱۷] در پژوهشی مرتبط نشان دادند که جهت انجماد مرجح در ESD در راستای کشش گرمایی و عمود بر سطح پوشش است. از طرفی عنوان شده است که عیب ترک در راستای جدایش‌های عنصری ناشی از انجماد است.

یکی دیگر از راهکارهای مناسب برای کاهش این عیوب، چکش‌کاری سطح پس از هر مرحله از پوشش‌دهی است. این روش نیز توسط پژوهشگران و توسعه‌دهندگان متعددی توصیه شده است و از اصطلاح پینینگ[4] برای آن استفاده می‌شود. لازم به ذکر است که این شیوه، ضمن کور کردن ترک‌ها و نقص در ذوب‌شدگی، باعث چگال‌تر شدن پوشش شده و با نشست تنش‌های پسماند فشاری در سطح، تنش‌های پسماند کششی ناشی از فرایند ESD را آزاد می‌کند و

[1] Porosity
[2] Lack of Fusion
[3] Crack
[4] Peening

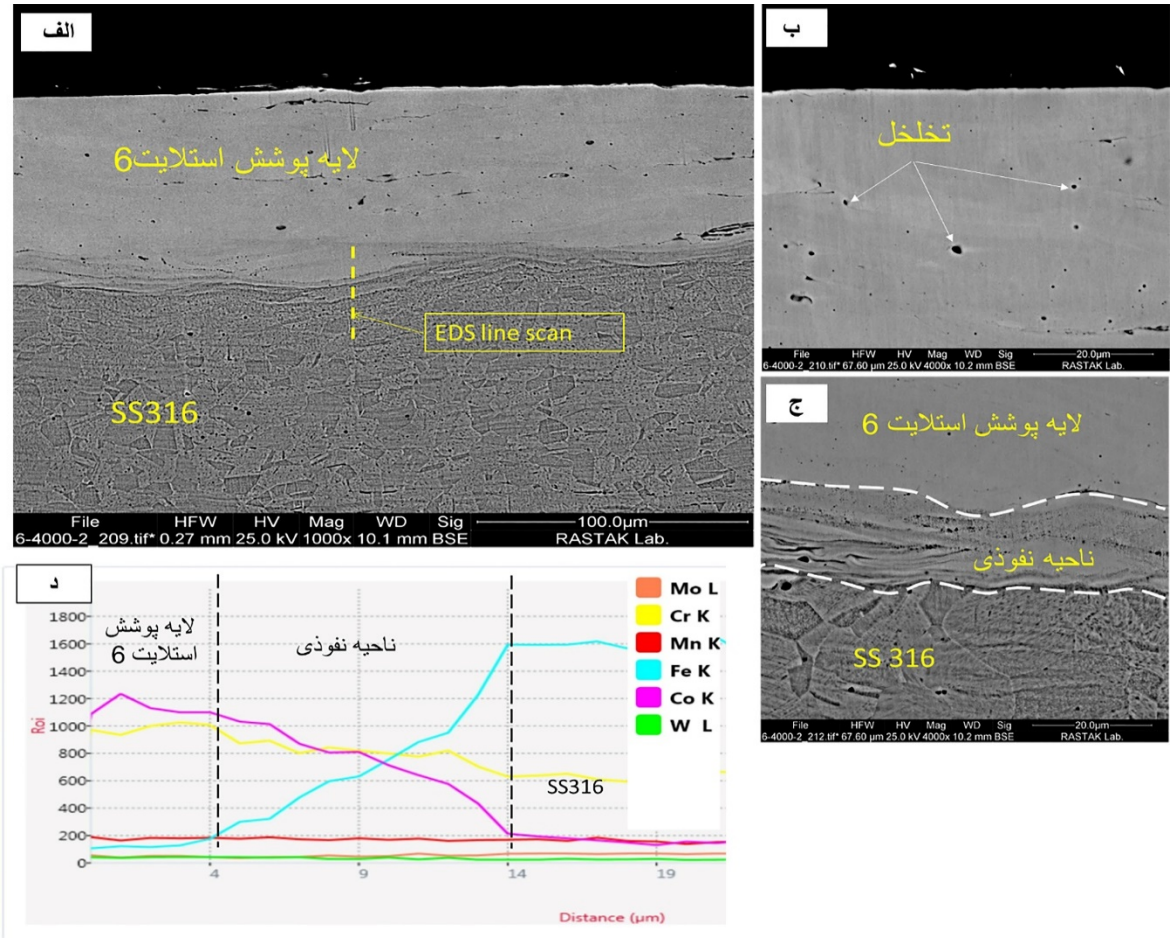
تا حدود قابل توجهی ناپیوستگی‌ها را کاهش می‌دهد. یکی از اصلی‌ترین مزیت‌های روش ESD به‌عنوان یک روش پوشش‌دهی فلز روی فلز، ایجاد پیوند متالورژیکی بین پوشش و زیرلایه است که باتوجه‌به گرمای محتوای ذاتی فرایند ESD، این پیوند متالورژیکی با رقیق‌شدگی کمی همراه است و ناحیه گذار در آن، ضخامت بسیار کمی دارد. شکل ۷-ج، نشان‌دهنده تصویر نزدیک‌تری از شکل ۷-الف است و ناحیه‌گذار و رقیق‌شدگی را به‌طور متمرکزتری نشان می‌دهد. به‌منظور درک بهتر رقیق‌شدگی در ناحیه گذار، آنالیز عنصری خطی آن در شکل ۷-د، نمایش داده شده است. همان‌طور که در این تصاویر قابل‌مشاهده است، طول ناحیه گذار در بیشینه حالت خود درحدود ۱۰ میکرون است. مزیت کوچک بودن ناحیه گذار این است که حداقل نفوذ عناصر آلیاژی از پوشش به زیرلایه و برعکس اتفاق می‌افتد. این مسئله به‌ویژه برای ایجاد پوشش‌های غیرهمجنس که ترکیبات شیمیایی آن‌ها در کنار هم قابلیت تشکیل ترکیبات بین‌فلزی ترد را دارند، بسیار مناسب است؛ چراکه احتمال ایجاد این ترکیبات مضر را کاهش می‌دهد [۱۷]. لازم به ذکر است که ترکیبات بین‌فلزی به‌دلیل ساختارهای ترد و شکننده‌ای که دارند، می‌توانند سبب تردشدگی و کاهش جوش‌پذیری بین دو آلیاژ فلزی غیرهمجنس شوند؛ بنابراین به‌حداقل رساندن رقیق‌شدگی به‌وسیله فرایند لایه‌نشانی جرقه الکتریکی می‌تواند بسیار مؤثر باشد.



شکل ۷. تصاویر SEM پوشش استلایت لایه‌نشانی‌شده به روش ESD روی سطح فولاد زنگ‌نزن آستنیتی الف) تصویر کلی مقطع عرضی پوشش و زیرلایه، ب) پوشش و عیوب آن، ج) لایه نفوذی بین پوشش و فلز پایه و د) آنالیز عنصری خطی EDS در ناحیه گذار از پوشش به زیرلایه

شکل (۸)، تصویر برش عرضی پوشش را در حالت ESD + HESP نشان می‌دهد. در شکل ۸-الف، بعد از ساچمه‌زنی پرانرژی، عیوب ناشی از فرایند ESD مانند تخلخل و نقص در ذوب‌شدگی، از بین نرفته است و همچنان

قابل‌مشاهده است؛ بااین‌وجود بررسی و مقایسه شکل ۸-الف و ۷-الف، نشان می‌دهد که عیوبی همچون نقص در ذوب‌شدگی، به‌اصطلاح کور شده‌اند. فرایند پینینگ قادر است تا میزان تأثیر تخریبی تخلخل و دیگر عیوب پوشش‌ها را کاهش دهد. فرایندهای متعددی با هدف پینینگ به‌کار می‌رود که می‌توان به ضربه‌زنی با شوک لیزری و ساچمه‌زنی مکانیکی اشاره کرد [۲۵]. از طرفی لازم به ذکر است که میزان تأثیرگذاری فرایند ساچمه‌زنی در این پژوهش بسیار قابل‌ملاحظه است و همان‌طور که نتایج نیز نشان می‌دهند، درصد عیوب و تأثیر مخرب آن‌ها کاهش یافته است. این مسئله در کنار کاهش زبری سطح، افزایش سختی و استحکام پوشش، درمجموع امکان بهبود خواص پوشش را فراهم می‌کند که در عملکرد سایشی آن قابل‌ملاحظه است. شکل ۸-ب، نشان‌دهنده تصویری با بزرگنمایی بیشتر از شکل ۸-الف است. شکل ۸-ج، لایه نفوذی بین پوشش و فلز پایه و شکل ۸-د، شرایط ناحیه گذار و نفوذ بین پوشش و زیرلایه را در ESD + HESP نشان می‌دهد. تفاوت قابل‌ملاحظه‌ای با شرایط ESD وجود ندارد و شرایط ناحیه نفوذی و رقیق‌شدگی در هر دو فرایند مشابه است. تصویر ۸-د، روبش عنصری خطی را نشان می‌دهد و همان‌طور که در این تصویر نیز مشاهده می‌شود، بیشینه ناحیه رقیق‌شدگی در فرایند ESD + HESP همانند فرایند ESD، ۱۰ میکرون است و ناحیه متأثر از حرارت و تغییرات متالورژیکی در زیرلایه، قابل‌شناسایی نیست.

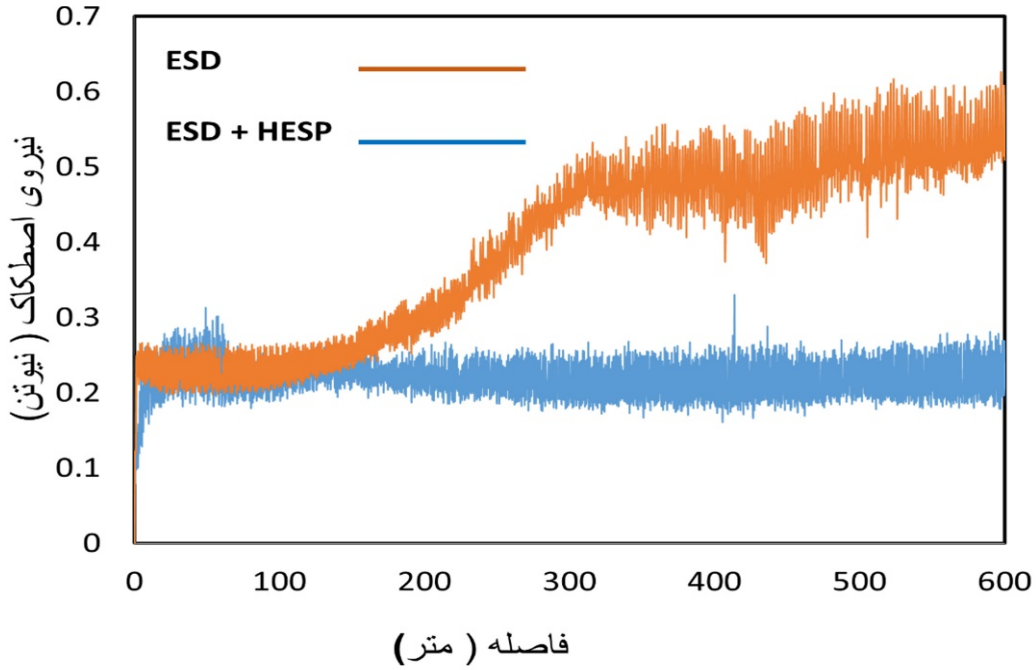


شکل ۸ تصاویر SEM برش عرضی پوشش استلایت لایه‌نشانی‌شده به روش ESD روی سطح فولاد زنگ‌نزن آستنیتی بعد از ساچمه‌زنی پرانرژی سطح الف) تصویر کلی مقطع عرضی پوشش و زیرلایه در نمای ۱۰۰۰ برابر، ب) پوشش و عیوب آن، ج) لایه نفوذی بین پوشش و فلز پایه و د) آنالیز عنصری خطی EDS در ناحیه گذار از پوشش به زیرلایه

شکل (۹)، نمودار تغییرات ضریب اصطکاک نسبت به مسافت سایش را در ارزیابی سایشی پوشش استلایت ٦ اعمال‌شده به روش ESD و ESD + HESP نشان می‌دهد. نیروی اصطکاک درحین سایش سطح پوشش ایجادشده به

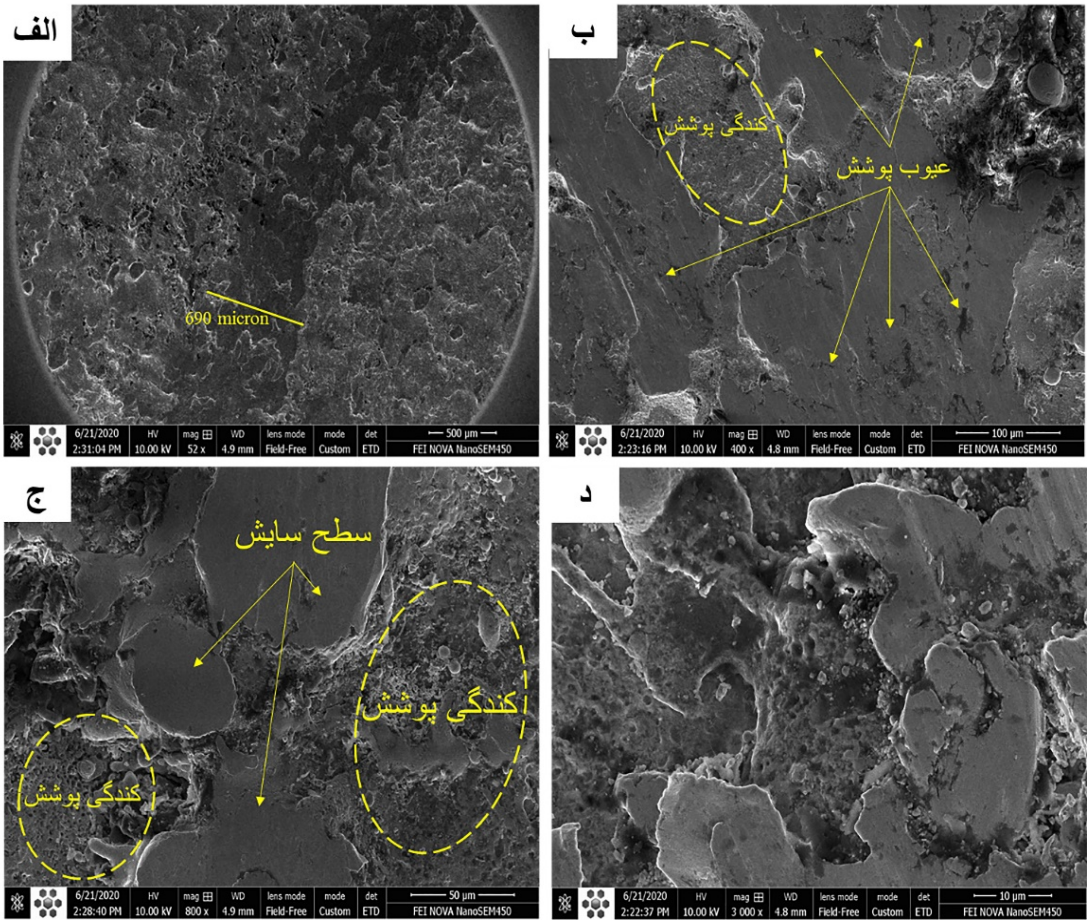
روش ESD + HESP، به‌طور متوسط ۰/۲۲ نیوتن است و دامنه نوسان پایداری دارد. به‌طورکلی پوشش ESD + HESP، رفتار سایشی پایداری را تا فاصله ۶۰۰ متر نشان می‌دهد.

در شکل (۹)، نتایج حاصل از اندازه‌گیری نیروی اصطکاک روی سطح پوشش اعمالی به روش ESD، نشان می‌دهد که نیروی اصطکاک از لحظه شروع تا فاصله ۱۷۰ متری از مسیر سایش، مشابه با نمونه ESD + HESP است. این نیرو در فاصله ۱۷۰ تا ۳۰۰ متری از مسیر سایش با شیب مشخصی از ۰/۲۲ به ۰/۴۸ نیوتن افزایش یافته و درادامه، در فاصله ۳۰۰ تا ۶۰۰ متری نیز اعدادی بیش از ۰/۴۸ نیوتن را نشان می‌دهد که با شیبی ملایم، در فاصله ۶۰۰ متری از مسیر سایش، این عدد به ۰/۶ نیوتن می‌رسد. دامنه نوسان نقطه‌ای نیروی اصطکاک یکی دیگر از مشخصه‌های نمودار ESD است. این دامنه از شروع تا ۳۰۰ متری مسیر سایش، محدود است؛ درحالی‌که از فاصله ۳۰۰ تا ۶۰۰ متری به شکل قابل‌ملاحظه‌ای افزایش می‌یابد و گاهی به ۰/۱ نیوتن نیز می‌رسد. نوسانات گسترده نیروی اصطکاک معمولاً به سازوکار سایش چسبان و یا کندگی پوشش حین سایش، ارتباط داده می‌شود [۳۶ و ۳۷].



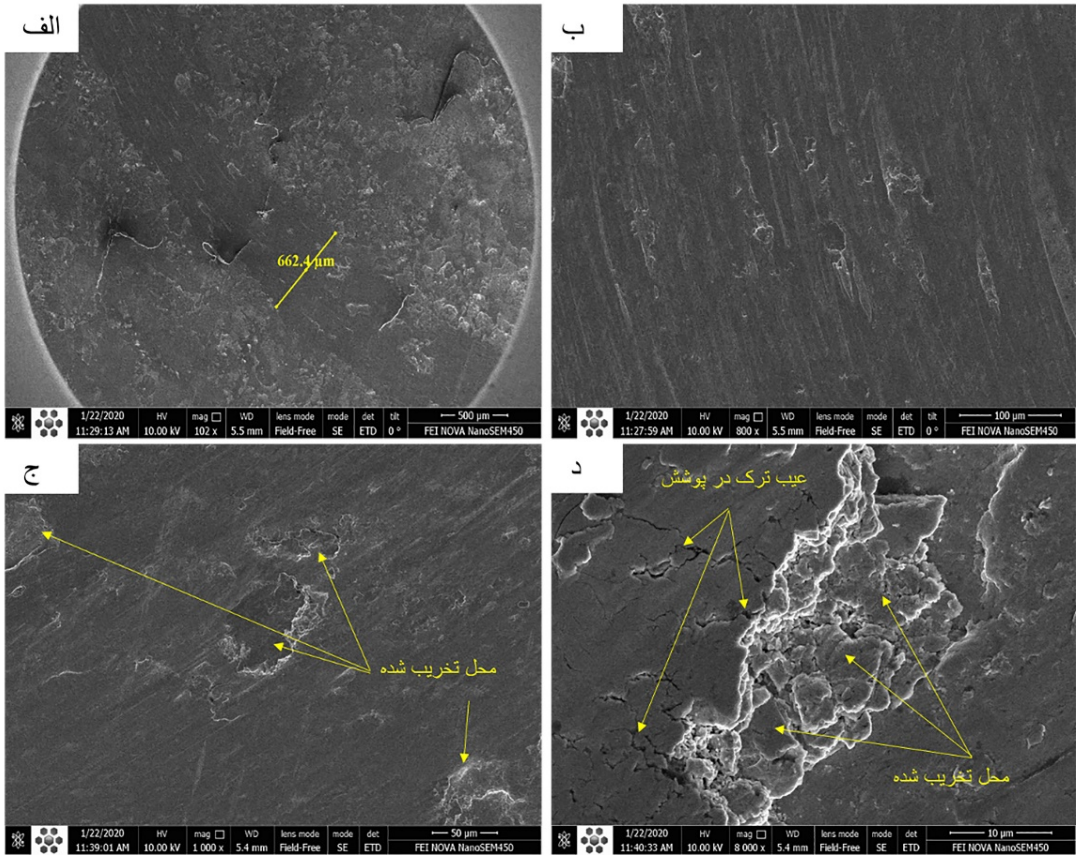
شکل ۹. نمودار نیروی اصطکاک اندازه‌گیری‌شده در مسافت‌های سایشی متفاوت برای سطح پوشش استلایت ۶ اعمال‌شده روی سطح فولاد زنگ‌نزن آستنیتی به روش‌های لایه‌نشانی جرقه الکتریکی ESD و لایه‌نشانی جرقه الکتریکی به همراه ساچمه‌زنی پرانرژی سطح

شکل (۱۰)، سطح سایش پوشش استلایت ۶ اعمال‌شده به روش ESD را نشان می‌دهد. شکل ۱۰-الف، تصویر کلی از ناحیه تحت سایش را نمایش می‌دهد. عرض مسیر سایش، ۶۹۰ میکرون اندازه‌گیری شده است. شکل ۱۰-ب، بررسی‌های دقیق‌تری از سطح مسیر سایش را نشان می‌دهد که در نمونه پوشش استلایت اعمالی به روش ESD میزان کندگی‌ها در اثر سایش بسیار زیاد است. ترد بودن ساختار پوشش استلایت ۶ در کنار عیوب متعدد موجود در پوشش اعمال‌شده به روش ESD، عامل مؤثری در افزایش کندگی‌هاست؛ به‌نحوی‌که قسمت‌های متعددی در مسیر سایش دچار کندگی شده‌اند. این کندگی‌ها را می‌توان به گسترش نوسانات نیروی اصطکاک در نمودار شکل (۹)، در ناحیه ۳۰۰ تا ۶۰۰ متر از نمودار ESD مرتبط دانست. به‌طورکلی در توضیح رفتار سایشی پوشش ESD می‌توان گفت که افزایش نیروی اصطکاک در فاصله ۱۷۰ تا ۳۰۰ متری از مسیر سایش، نشان از شروع این کندگی‌هاست که در اثر آن، زبری افزایش چشمگیری یافته و سبب افزایش نیروی اصطکاک بین ساینده و سطح سایش می‌شود. درنهایت نرخ این کندگی‌ها در مسافت ۳۰۰ متر به‌شدت کاهش یافته و شیب افزایش نیروی اصطکاک کند می‌شود.



شکل ۱۰. تصویر میکروسکوپ الکترونی روبشی SEM از سطح مسیر سایش پوشش استلایت ٦ اعمال‌شده به روش ESD، الف) تصویر کلی سطح و مسیر سایش، ب و ج) مواضع تحت سایش و د) محل کنده شدن پوشش استلایت در اثر فرایند سایش

شکل (۱۱)، تصویر میکروسکوپ الکترونی سطح سایش پوشش اعمالی به روش ESD + HESP را نشان می‌دهد. عرض مسیر سایش در شکل ۱۱-الف، ٦٦۳ میکرون اندازه‌گیری شده است. تصویر ۱۱-ب و ج، به‌ترتیب مسیر سایش را با بزرگنمایی ۸۰۰ و ۱۰۰۰ برابر نشان می‌دهد. وجود شیارهای کشیده در مسیر حرکت ساینده، نشان از وجود سایش‌خراشان در این نمونه است. از طرفی کندگی‌هایی در سطح مسیر دیده می‌شود که این مسئله را می‌توان به عیوب موجود در پوشش استلایت ایجادشده به روش ESD + HESP ارتباط داد. با هدف درک بهتر این مسئله، تصویری با بزرگنمایی ۸۰۰۰ برابر، از یکی از این نواحی که شکل تخریبی آن با شکل شیار کشیده در مسیر سایش متفاوت است و شکلی لکه‌ای دارد، تهیه شد. شکل ۱۱-د، نمای ۸۰۰۰ برابر از مسیر سایش را نشان می‌دهد. همان‌طور که در تصویر به‌خوبی قابل‌مشاهده است، این نواحی دارای ترک‌های ریز متعدد هستند. وجود این عیوب در کنار ماهیت ترد پوشش استلایت ٦، سبب کندگی پوشش به‌صورت موضعی در سطح مسیر سایش شده است که این مسئله می‌تواند توجیه‌کننده نوسانات نیروی اصطکاک در نمودار شکل ۱۰ نیز باشد. به‌طور معمول وجود این نوع عیوب در سطح پوشش، عملکرد سطح سایش را کاهش می‌دهد. تصویر ۱۱-د، به‌طور مشخص ناحیه‌ای از پوشش را نشان می‌دهد که طی فرایند سایش دچار کندگی شده است. مقایسه کاهش وزن بین پوشش استلایت ٦ اعمال‌شده به روش ESD و ESD + HESP نشان می‌دهد که میزان کاهش وزن نمونه ESD (۰/۱۸٤ گرم) بیشتر از نمونه ESD + HESP (۰/۰۷۳ گرم) است که این مسئله نیز گواه بر تحلیل صورت‌گرفته بر رفتار سایشی این دو پوشش است. به‌طورکلی پوشش استلایت ٦ ایجادشده به روش ESD + HESP رفتار سایشی مناسب‌تری را نسبت به روش ESD نشان می‌دهد.



شکل ۱۱. تصویر میکروسکوپ الکترونی روبشی از سطح مسیر سایش پوشش استلایت ٦ اعمال‌شده به روش ESD + HESP، الف) تصویر کلی سطح و مسیر سایش، ب و ج) مواضع تحت سایش و د) محل کنده شدن پوشش استلایت در اثر فرایند سایش

٤- نتیجه‌گیری

روش لایه‌نشانی جرقه الکتریکی (ESD) قادر است تا لایه پوششی استلایت ٦ را با ضخامت‌های چند ده میکرون روی سطح فولاد زنگ‌نزن آستنیتی لایه‌نشانی کند؛ اما به‌طور کلی، پوشش ایجادشده با محدودیت‌هایی نظیر تخلخل، نقص در ذوب‌شدگی و ترک مواجه است. به‌کارگیری روش ساچمه‌زنی پرانرژی در شرایط کنترل‌شده، ضمن کاهش آثار تخریبی عیوب موجود در پوشش اعمال‌شده به روش جرقه الکتریکی، باعث بهبود خواص سایشی، افزایش سختی و کاهش زبری سطح پوشش استلایت می‌شود.

٥- سپاسگزاری

نویسندگان مقاله از حمایت دانشگاه افسری امام علی، به‌ویژه جناب آقای دکتر عبدالرضا محمدی، تشکر و قدردانی می‌کنند.

مراجع

1. Gao, W., Lian, Y., Xie, G., Huang, J., Zhang, L., Ma, M., Zhao, C., Zhang, Z., Liu, K., Zhang, S., Zhang, J., "Study of dry sliding wear characteristics of stellite 6B versus AISI M2 steel at various sliding velocities", ***Wear***, Vol. 402-403, (2018), 169-178. https://doi.org/10.1016/j.wear.2018.02.015
2. Bartkowski, D., Bartkowska, A., "Wear resistance in the soil of Stellite-6/WC coatings produced using laser cladding method", ***International Journal of Refractory Metals and Hard Materials***, Vol. 64, (2017), 20-26. https://doi.org/10.1016/j.ijrmhm.2016.12.013
3. Wood, P. D., Evans, H. E., Ponton, C. B., "Investigation into the wear behaviour of Stellite 6 during rotation as an unlubricated bearing at 600 °C", ***Tribology International***, Vol. 44, (2011), 1589-159. https://doi.org/ 10.1016/j.triboint.2011.02.011
4. Gülsoy, H. Ö., Zgün, Ö. Ö., Bilketay, S., "Powder injection molding of Stellite 6 powder: Sintering, microstructural and mechanical properties", ***Materials Science and Engineering: A***, Vol. 651, (2016), 914-924. https://doi.org/10.1016/j.msea.2015.11.058
5. Houdková, Š., Pala, Z., Smazalová, E., Vostřák, M., Česánek, Z., "Microstructure and sliding wear properties of HVOF sprayed, laser remelted and laser clad Stellite 6 coatings", ***Surface and Coatings Technology***, Vol. 318, (2017), 129-141. https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2016.09.012
6. Cinca, N., López, E., Dosta, S., Guilemany, J. M., "Study of stellite-6 deposition by cold gas spraying", ***Surface and Coatings Technology***, Vol. 232, (2013), 891-898. https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2013.06.120
7. Sassatelli, P., Bolelli, G., Lassinantti Gualtieri, M., .Heinonen, E., Honkanen, M., Lusvarghi, L., Manfredini, T., Rigon, R., Vippola, M., "Properties of HVOF-sprayed Stellite-6 coatings", ***Surface***

21. Pliszka, I., Radek, N., "Corrosion resistance of WC-Cu coatings produced by electrospark deposition", ***Procedia Engineering***, Vol. 192, (2017), 707-712. https://doi.org/10.1016/j.proeng.2017.06.122
22. Salmaliyan, M., Malek Ghaeni, F., Ebrahimnia, M., "Effect of electro spark deposition process parameters on WC-Co coating on H 13 steel", ***Surface and Coatings Technology***, Vol. 321, (2017), 81-89. https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2017.04.040
23. Lima, C. R. C., Belém, M. J. X., Fals, H. D. C., Rovere, C. A. D., "Wear and corrosion performance of Stellite 6® coatings applied by HVOF spraying and GTAW hotwire cladding", ***Journal of Materials Processing Technology***, Vol. 284, (2020), 116734. https://doi.org/10.1016/j.jmatprotec.2020.116734
24. Kalentics, N., Sohrabi, N., Tabasi, H. G., Griffiths, S., Jhabvala, J., Leinenbach, C., Burn, A., Logé, R. E., "Healing cracks in selective laser melting by 3D laser shock peening", ***Additive Manufacturing***, Vol. 30, (2019), 100881. https://doi.org/10.1016/j.addma.2019.100881
25. Kalentics, N., de Seijas, M. O. V., Griffiths, S., Leinenbach, C., Logé, R. E., "3D laser shock peening–A new method for improving fatigue properties of selective laser melted parts", ***Additive Manufacturing***, Vol. 33, (2020), 101112. https://doi.org/10.1016/j.addma.2020.101112
26. Bikdeloo, R., Farrahi, G. H., Mehmanparast, A., Mahdavi, S. M., "Multiple laser shock peening effects on residual stress distribution and fatigue crack growth behaviour of 316L stainless steel", ***Theoretical and Applied Fracture Mechanics***, Vol. 105, (2020), 102429. https://doi.org/10.1016/j.tafmec.2019.102429
27. Alikhani Chamgordani, S., Miresmaeili, R., Aliofkhazraei, M., "Improvement in tribological behavior of commercial pure titanium (CP-Ti) by surface mechanical attrition treatment (SMAT)", ***Tribology International***, Vol. 119, (2018), 744-752. https://doi.org/10.1016/j.triboint.2017.11.044
28. Farzan, F., Shahverdi, H. R., Malek Ghaeni, F., "Effect of wet and dry conditions on wear behavior of amorphous coating of Fe-Cr-Mo-Nb-C-B", ***Iranian Journal of Materials Science & Engineering***, Vol. 15, (2018), 76-87. https://doi.org/10.22068/ijmse.l5.2.76
29. Riveiro, A., Maçon, A. L. B., del Val, J., Comesaña, R., Pou, J., "Laser surface texturing of polymers for biomedical applications", ***Frontiers in Physics***, Vol. 6, (2018), 149-157. https://doi.org/10.3389/fphy.2018.00016
30. Ebrahimi, A., Esfahani, H., Fattah-alhosseini, A., Imantala, O., "Study on ceramic composite TiB/TiB2 coating mechanism on commercial pure titanium and its osteoconduction", ***Journal of Advanced Materials and Technologies (JAMT)***, Vol. 7, (2018), 35-42. https://doi.org/10.30501/jamt.2018.91740
31. Farnoush, H., "Corrosion and bonding strength enhancements in bioglass coating on CP-Ti by using a combination of micro-arc oxidation and electrophoretic deposition", ***Journal of Advanced Materials and Technologies (JAMT)***, Vol. 6, (2017), 61-69. https://doi.org/10.30501/jamt.2017.70356
32. Fereiduni, E., Ghasemi Banadkouki, S. S., "Improvement of mechanical properties in a dual-phase ferrite–martensite AISI4140 steel under tough-strong ferrite formation", ***Materials & Design***, Vol. 56, (2014), 232-240. https://doi.org/10.1016/j.matdes.2013.11.005
33. Yao, J., Li, Z., Li, B., Yang, L., "Characteristics and bonding behavior of Stellite 6 alloy coating processed with supersonic laser deposition", ***Journal of Alloys and Compounds***, Vol. 661, (2016), 526-534.https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2015.11.077

and Coatings Technology, Vol. 338, (2018), 45-62. https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2018.01.078
8. Brownlie, F., Anene, C., Hodgkiess, T., Pearson, A., Galloway, A. M., "Comparison of hot wire TIG Stellite 6 weld cladding and lost wax cast Stellite 6 under corrosive wear conditions", ***Wear***, Vol. 404-405, (2018), 71-81. https://doi.org/10.1016/j.wear.2018.03.004
9. Rajeev, G. P., Rahul, M. R., Kamaraj, M., Bakshi, S. R., "Microstructure and high temperature mechanical properties of wire arc additively deposited Stellite 6 alloy", ***Materialia***, Vol. 12, (2020), 100724. https://doi.org/10.1016/j.mtla.2020.100724
10. Apay, S., Gulenc, B., "Wear properties of AISI 1015 steel coated with Stellite 6 by microlaser welding", ***Materials & Design***, Vol. 55, (2014), 1-8. https://doi.org/10.1016/j.matdes.2013.09.056
11. Kreivaitis, R., Žunda, A., Kupčinskas, A., Jankauskas, V., "A study of tribological behaviour of W-Co and Cu electro-spark alloyed layers under lubricated sliding conditions", ***Tribology International***, Vol. 103, (2016), 236-242. https://doi.org/10.1016/j.triboint.2016.07.010
12. Xie, Y. J., Wang, M. C., "Microstructural morphology of electrospark deposition layer of a high gamma prime superalloy", ***Surface and Coatings Technology***, Vol. 201, (2006), 691-698. https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2005.12.034
13. Ruizhu, Z., Jingrui, L., Dakao, Y., Yuanyuan, Z., "Mechanical properties of WC-8Co wear-resistant coating on pump impellers surface by electro-spark", ***Rare Metal Materials and Engineering***, Vol. 44, (2015), 1587-1590. https://doi.org/10.1016/S1875-5372(15)30097-7
14. Ding, Y., Liu, R., Yao, J., Zhang, Q., Wang, L., "Stellite alloy mixture hardfacing via laser cladding for control valve seat sealing surfaces", ***Surface and Coatings Technology***, Vol. 329, (2017), 97-108. https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2017.09.018
15. Durdu, S., Aktuğ, S. L., Korkmaz, K., "Characterization and mechanical properties of the duplex coatings produced on steel by electro-spark deposition and micro-arc oxidation", ***Surface and Coatings Technology***, Vol. 236, (2013), 303-308. https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2013.10.004
16. Baghjari, H., Malek Ghaini, F., Shahverdi, H., Mapelli, C., Barella , S., Ripamonti, D., "Laser welding of niobium to 410 steel with a nickel interlayer produced by electro spark deposition", ***Materials & Design***, Vol. 107, (2016), 45-51. https://doi.org/10.1016/j.matdes.2016.06.022
17. Ebrahimnia, M., Malek Ghaini, F., Xie, Y. J., Shahverdi, H., "Microstructural characteristics of the built up layer of a precipitation hardened nickel based superalloy by electrospark deposition", ***Surface and Coatings Technology***, Vol. 258, (2014), 515-523. https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2014.08.045
18. Liu, D., Gao, W., Li, Z., Zhang, H., Hu, Z., "Electro-spark deposition of Fe-based amorphous alloy coatings", ***Materials Letters***, Vol. 61, (2007), 165-16. https://doi.org/10.1016/j.matlet.2006.04.042
19. Rastkerdar, E., Aghajani, H., Kianvash, A., Sorrell, C. C., "Parametric optimization of electro spark microwelding of aluminum clad steel", ***International Journal of Engineering***, Vol. 31, (2018), 1151-1146. https://doi.org/10.5829/ije.2018.31.07a.20
20. Fakoori Hasanabadi, M., Malek Ghaini, F., Ebrahimnia, M., Shahverdi, H. R., "Production of amorphous and nanocrystalline iron based coatings by electro-spark deposition process", ***Surface and Coatings Technology***, Vol. 270, (2015), 95-101. https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2015.03.016

ISSN: 2783-0810; e-ISSN: 2783-0829

Journal of Advanced Materials and Technologies (JAMT): Vol. 10, No. 2, (Summer 2021), 1-96

CONTENTS

The Effect of Cooling Rate After Full Solution and Aging Time on Microstructure and Hardness of IN718 Superalloy Fabricated via SLM **1-11**
Habib Hematzadeh Dastgerdi, Mohsen Ostadshabani, Yazdan Shajari, Mohsen Samiee

Electrochemical Synthesis of Yttrium Aluminum Garnet Nanostructures in the Presence of Cationic Surfactant: CTAB **13-19**
Mojtaba Hosseinifard, Hassan Goldooz, Alireza Badiei, Asghar Kazemzadeh, Kamran Ahmadi

Fabrication of Nanostructured Apatite Scaffolds by Freeze-Casting Method for Bone Tissue Engineering **21-31**
Shokoufeh Borhan, Javad Esmaeilzadeh

The Effect of 304 Stainless Steel Substrate Surface Preparation Method on Coating Process of Polypyrrole/Polyaniline Conductive Polymers and Corrosion Resistance Improvement **33-44**
Niyoosha Panahi, M.Reza Afshar, Hadi Adelkhani

Investigation on the Microstructure and Tensile Properties of Al5083-TiB_2 Nanocomposites Produced by Stir Casting Method **45-57**
Ali Alizadeh, Mehdi Abdollahi Azghan

Design and Simulation of AlGaN/GaN High Electron Mobility Field-Effect Diode **59-69**
Tara Ghafouri, Negin Manavizadeh, Matineh Sadat Hosseini Gheidari

Comparison of Optical and Electrical Properties of TeO_2 Nanostructure Thin Films Before and After Gamma Radiation **71-82**
Tavakkol Tohidi

Effect of High Energy Shot Peening on Properties of Stellite 6 Layer Coated on AISI 316 Using Electro-Spark Deposition **83-96**
Mahdi Gholampour, Mohammad Hassan Ameri

Journal of Advanced Materials and Technologies

Vol. 10, No. 2, Summer 2021

ISSN : 2783-0810
e-ISSN : 2783-0829

The Effect of Cooling Rate After Full Solution and Aging Time on Microstructure and Hardness of IN718 Superalloy Fabricated via SLM 1-11
Habib Hematzadeh Dastgerdi, Mohsen Ostadshabani, Yazdan Shajari, Mohsen Samiee

Electrochemical Synthesis of Yttrium Aluminum Garnet Nanostructures in the Presence of Cationic Surfactant: CTAB 13-19
Mojtaba Hosseinifard, Hassan Goldooz, Alireza Badiei, Asghar Kazemzadeh, Kamran Ahmadi

Fabrication of Nanostructured Apatite Scaffolds by Freeze-Casting Method for Bone Tissue Engineering 21-31
Shokoufeh Borhan, Javad Esmaeilzadeh

The Effect of 304 Stainless Steel Substrate Surface Preparation Method on Coating Process of Polypyrrole/Polyaniline Conductive Polymers and Corrosion Resistance Improvement 33-44
Niyoosha Panahi, M.Reza Afshar, Hadi Adelkhani

Investigation on the Microstructure and Tensile Properties of Al5083-TiB_2 Nanocomposites Produced by Stir Casting Method 45-57
Ali Alizadeh, Mehdi Abdollahi Azghan

Design and Simulation of AlGaN/GaN High Electron Mobility Field-Effect Diode 59-69
Tara Ghafouri, Negin Manavizadeh, Matineh Sadat Hosseini Gheidari

Comparison of Optical and Electrical Properties of TeO_2 Nanostructure Thin Films Before and After Gamma Radiation 71-82
Tavakkol Tohidi

Effect of High Energy Shot Peening on Properties of Stellite 6 Layer Coated on AISI 316 Using Electro-Spark Deposition 83-96
Mahdi Gholampour, Mohammad Hassan Ameri