

## تأثیر مقدار نانوذرات کاربید سیلیسیم بر خواص نانوکامپوزیت‌های متخلخل کاربید سیلیسیم اتصال کوردیریت-مولایتی تهیه شده به روش اتصال-واکنشی

سید حسین بدیعی<sup>۱\*</sup>، ساسان اطرج<sup>۲</sup> و الهام صفابخش<sup>۲</sup>

۱- گروه مهندسی مواد، دانشگاه آزاد اسلامی، واحد شاهرود، شاهرود، ایران  
۲- دانشکده فنی، دانشگاه شهرکرد، شهرکرد

تاریخ ثبت اولیه: ۱۳۹۳/۰۸/۱۸، تاریخ دریافت نسخه اصلاح شده: ۱۳۹۳/۱۰/۰۲، تاریخ پذیرش قطعی: ۱۳۹۳/۱۱/۰۳

### چکیده

در این پژوهش نانوکامپوزیت‌های متخلخل بر پایه کاربید سیلیسیم دارای اتصال کوردیریتی-مولایتی توسط روش اتصال واکنشی ساخته شد. از نانوذرات کاربید سیلیسیم، تالک و کائولن به عنوان مواد اولیه و از گرافیت به عنوان عوامل ایجاد تخلخل برای ساخت این نوع نانوکامپوزیت‌ها استفاده شد. در این ارتباط تأثیر میزان نانوکامپوزیت بر خواص این نوع نانوکامپوزیت‌ها شامل میزان تخلخل، استحکام مکانیکی، مقاومت در برابر شوک حرارتی، دیرگدازی تحت بار، ترکیب فازی و ریزساختار پس از پخت در دمای  $1250^{\circ}\text{C}$  مورد بررسی قرار گرفت. نتایج نشان داد که میزان نانوکامپوزیت سیلیسیم تأثیر زیادی بر میزان فازهای مولایت و کوردیریت تشکیل شده دارد. با توجه به نتایج آنالیز فازی، کریستوبالیت و کوراندوم علاوه بر فازهای کوردیریت و مولایت در بدنه می‌توانند تشکیل شوند که مقدار آنها به درصد نانوکامپوزیت سیلیسیم وابسته است. همچنین با افزایش میزان نانوذرات کاربید سیلیسیم مقاومت در برابر شوک حرارتی افزایش ولی میزان دیرگدازی تحت بار کاهش می‌یابد. نتایج نشان داد که ترکیب نانوکامپوزیت حاوی ۶۰ درصد وزنی نانوذرات کاربید سیلیسیم از خواص مناسب‌تری برخوردار است. بررسی‌های ریزساختاری نیز تشکیل مناسب فاز اتصال کوردیریت به همراه مولایت را بین نانوذرات کاربید سیلیسیم تأیید کرد.

**واژه‌های کلیدی:** نانوکامپوزیت، متخلخل، کوردیریت، نانوکامپوزیت سیلیسیم، مولایت.

### ۱- مقدمه

بالا همراه با ضریب انبساط حرارتی پایینی دارد. استحکام مکانیکی بالایی را نشان می‌دهد که خواص مکانیکی آن تا محدوده  $1500-1300^{\circ}\text{C}$  پایدار می‌ماند [۱۰-۴]. اما کاربید سیلیسیم از مقاومت به شکست پایینی برخوردار است که کاربرد آن را محدود کرده است [۹-۷]. از طرف دیگر پخت سرامیک‌های بر پایه کاربید سیلیسیم در دماهای معمول بدلیل طبیعت پیوند کووالانت قوی Si-C

کاربید سیلیسیم بدلیل داشتن خواص شیمیایی، فیزیکی و مکانیکی بسیار مناسب در ساخت سرامیک‌های متخلخل همانند فیلترهای سرامیکی استفاده فراوانی دارد [۴-۱]. این ماده مقاوم در برابر خوردگی همه اسیدها، بازها و نمک‌های مذاب تا دمای  $800^{\circ}\text{C}$  است. هدایت حرارتی

\* عهده‌دار مکاتبات: سید حسین بدیعی

نشانی: شاهرود، دانشگاه آزاد اسلامی واحد شاهرود، گروه مهندسی مواد

تلفن: ۰۲۳-۳۲۳۹۴۲۸۳، دورنگار: ۰۲۳-۳۲۳۹۴۲۸۳، پست الکترونیکی: [drh\\_badiee@yahoo.com](mailto:drh_badiee@yahoo.com)

پایه کاربرد سیلیسیم با اتصال کوردیریت- مولایتی و بررسی تاثیر میزان نانوکاربید سیلیسیم بر خواص آن می‌باشد. برای ایجاد و تشکیل همزمان فازهای کوردیریت و مولایت به عنوان فازهای زمینه و عامل اتصال در هنگام پخت از کائولن و تالک استفاده شده است. همچنین تاثیر مقادیر مختلف نانوکاربید سیلیسیم نیز بر مقاومت در برابر شوک حرارتی، دیرگدازی تحت بار، ترکیب فازی و استحکام بدنه نانوکامپوزیت بررسی شده است. در نهایت ریزساختار این نوع کامپوزیت‌ها مورد بررسی قرار گرفته است.

## ۲- فعالیت‌های تجربی

### ۲-۱- مواد اولیه و ترکیب مورد استفاده

مواد اولیه مصرفی در این پژوهش شامل نانوذرات کاربرد سیلیسیم (شرکت نوبترینو)، کائولن زدلیتیز (جمهوری چک) به صورت فرآوری شده و بریکت شده و تالک لوزاناک (فرانسه) به صورت پودر ریزدانه می‌باشد که آنالیز شیمیایی کائولن و تالک در جدول ۱ ارائه شده است.

جدول ۱: آنالیز شیمیایی مواد اولیه مصرفی.

اکسید (درصد وزنی)	ماده اولیه	
	کائولن زدلیتیز	تالک لوزاناک
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	۴۸/۶	۰/۶۷
SiO <sub>2</sub>	۴۸/۳۴	۶۲/۷۰
MgO	۰/۲۸	۳۱/۳۰
Na <sub>2</sub> O	۰/۰۴	-
K <sub>2</sub> O	۱/۸۶	-
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	۰/۷۰	۰/۲۷
CaO	۰/۰۸	۰/۶۹
TiO <sub>2</sub>	۰/۰۴	-
L.O.I	۱۲/۱۴	۴/۸۲

در این پژوهش جهت تشکیل فازهای کوردیریت و مولایت به عنوان فاز اتصال زمینه نانوکامپوزیت از مخلوط کائولن و تالک استفاده شد. با توجه به آنالیز شیمیایی مواد اولیه و نسبت استوکیومتری کوردیریت، از نسبت ۷۰ درصد وزنی کائولن زدلیتیز به ۳۰ درصد وزنی تالک لوزاناک استفاده شد تا بیشترین مقدار فازهای کوردیریت و مولایت حاصل

مشکل می‌باشد. بنابراین سرامیک‌های متخلخل بر پایه کاربرد سیلیسیم برای پخت به دمای بالای ۲۰۰۰ °C نیاز داشته که این امر ساخت و کاربردهای عملی آنها را محدود کرده است [۱۵-۱۰]. از جمله راهکارهای مطرح در این مورد ایجاد فاز اتصال مناسب بین ذرات کاربرد سیلیسیم می‌باشد که هم به کاهش هزینه فرآوری منجر می‌شود و هم به حفظ خواص مناسب سرامیک متخلخل از جمله استحکام کمک می‌کند که در این ارتباط می‌توان به فازهای مولایت و کوردیریت به عنوان فازهای اتصال اشاره نمود [۱۸-۱۴]. بنابراین با ساخت کامپوزیتی از کاربرد سیلیسیم و فاز اتصال می‌توان به بدنه‌ای با خواص خوب همراه با چقرمگی مناسب دست یافت. در این ارتباط Ding و همکارانش سرامیک‌های متخلخل بر پایه کاربرد سیلیسیم با اتصال مولایت را پس از پخت در دمای ۱۴۵۰-۱۵۵۰ °C در اتمسفر هوا بصورت آزمایشگاهی تولید کردند [۱۵]. با توجه به اینکه در این نوع سرامیک‌های متخلخل با اتصال مولایتی، پایداری حرارتی بالاتر و مقاومت اکسیداسیون بهتری مشاهده شده ولی سعی شده است که از کوردیریت بدلیل ضریب انبساط حرارتی پایین‌تر ( $1/7-2/4 \times 10^{-6}/K$ ) در محدوده دمای ۷۰۰-۲۰ °C نسبت به مولایت ( $5/4 \times 10^{-6}/K$ ) در محدوده دمای ۷۰۰-۲۰ °C استفاده شود که منجر به افزایش مقاومت در برابر شوک حرارتی شود. کوردیریت نیز بدلیل ویژگی‌های جالب از جمله مقاومت به شوک حرارتی عالی، دیرگدازی بالا، مقاومت شیمیایی و مکانیکی مناسب در دماهای بالا و ضریب انبساط حرارتی پایین از جمله سرامیک‌های مطرح برای ساخت فیلترها می‌باشد. بنابراین در سال‌های اخیر ایجاد پیوند و اتصال کوردیریتی برای سرامیک‌های متخلخل بر پایه کاربرد سیلیسیم تحت شرایط دماهای نسبتاً پایین و اتمسفر هوای معمولی باعث توسعه این گروه از کامپوزیت‌ها شده است [۲۳-۱۵]. بطور کلی برای ایجاد تخلخل و تهیه کامپوزیت متخلخل از یک عامل سوختنی به همراه مواد اولیه استفاده می‌شود. در این ارتباط استفاده از گرافیت و اسفنج پلیمری متداول‌تر است که هر کدام تخلخل‌ها و در نتیجه ویژگی‌های خاصی را برای کامپوزیت فراهم می‌کنند [۳۳-۲۴، ۱۵]. هدف از انجام این تحقیق ساخت نانوکامپوزیت‌های متخلخل بر

بارگذاری سه نقطه‌ای و مطابق با روش استاندارد (ASTM-C1161-02) اندازه‌گیری شد. اندازه‌گیری مقاومت در برابر شوک حرارتی مطابق با استاندارد ASTM C1525-04 انجام شد. در این ارتباط نمونه‌های مکعب مستطیل ساخته شده در داخل کوره الکتریکی با دمای  $1250^{\circ}\text{C}$  به مدت ۱۵ دقیقه نگهداری شدند و بعد از کوره خارج و در داخل آب با دمای  $20^{\circ}\text{C}$  قرار داده شدند. پس از سرد شدن نمونه‌ها در داخل خشک‌کن با دمای  $110^{\circ}\text{C}$  به مدت ۲ ساعت استحکام خمشی آنها اندازه‌گیری شد. بطور کلی ایجاد شوک حرارتی باعث کاهش استحکام می‌شود. بنابراین میزان استحکام خمشی باقیمانده نمونه‌ها به عنوان معیاری از شوک حرارتی در نظر گرفته شد. دیرگذاری تحت بار (R.U.L) بدنه‌های کامپوزیت متخلخل ساخته شده نیز با استفاده از دستگاه Netzsch مدل CIC-421 و تحت اعمال بار ثابت  $0.2\text{ N/mm}^2$  ارزیابی شد. در این ارتباط از نمونه‌های ساخته شده به صورت استوانه‌ای با قطر و ارتفاع ۵ cm استفاده شد. بدین منظور دمایی که در آن کاهش ارتفاع نمونه‌ها به میزان  $0.5$  درصد اتفاق افتاده بود به عنوان دمای تحمل دیرگداز ( $T_{0.5}$ ) در نظر گرفته شد. همچنین شناسایی نوع فازهای تشکیل شده توسط روش آنالیز فازی (XRD) صورت گرفت و از نرم‌افزار این دستگاه (X'Pert Highscore Plus) برای آنالیز نیمه کمی و تعیین درصد فازهای تشکیل شده استفاده شد. بررسی‌های ریزساختاری نیز با استفاده از میکروسکوپ الکترونی روبشی مدل Stereo Scan 360-Leica Cambridge بر روی سطح شکست نمونه‌ها انجام شد.

### ۳- نتایج و بحث

#### ۳-۱- تأثیر میزان نانوذرات کاربید سیلیسیم بر

##### ترکیب فازی

در شکل ۱ تأثیر درصدهای مختلف نانوذرات کاربید سیلیسیم بر ترکیب فازی نانوکامپوزیت متخلخل کاربید سیلیسیم اتصال کوردپریت-مولایتی ارائه شده است. با توجه به نتایج شکل ۱ مشخص می‌شود که استفاده از کائولن و تالک در ترکیب و واکنش این مواد باهم باعث تشکیل فازهای  $\alpha$ -کوردپریت و  $\mu$ -کوردپریت (ایندیالیت)

شود [۲۵]. نانوذرات کاربید سیلیسیم نیز با اندازه ذرات متوسط ۲۱ nm مورد استفاده قرار گرفتند که ویژگی‌های نانوکاربید سیلیسیم مصرفی در جدول ۲ ارائه شده است.

جدول ۲: ویژگی‌های نانوذرات کاربید سیلیسیم مصرفی.

نوع فاز	متوسط اندازه ذرات	سطح ویژه ( $\text{m}^2/\text{g}$ )	خلوص (SiC wt.%)
آلفا	۵۰ nm	۸۴	۹۹

جهت بررسی اثر نانوذرات کاربید سیلیسیم از مقادیر ۴۰، ۵۰، ۶۰ و ۷۰ درصد وزنی آن استفاده شد و بقیه ترکیب نسبت ۷۰ به ۳۰ درصد کائولن به تالک رعایت شد. در این پژوهش برای ایجاد نانوکامپوزیت متخلخل از گرافیت استفاده شد. بدین منظور از گرافیت پولکی شکل (چین) و به صورت پودر حاوی ذرات با اندازه‌هایی کوچکتر از ۴۵ میکرومتر به عنوان عامل ایجاد تخلخل ناشی از سوختن آن استفاده شد و در این ارتباط مقدار ۳۰ درصد وزنی آن برای ایجاد تخلخل در نانوکامپوزیت استفاده شد [۲۵].

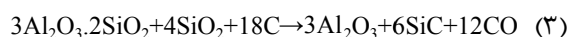
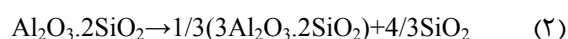
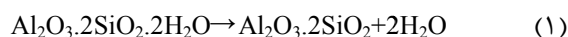
#### ۲-۲- روش ساخت نمونه‌ها

بدین منظور مواد اولیه با نسبت‌های مشخص توزین و سپس توسط بالمیل با گلوله‌های آلومینایی به مدت ۲ ساعت ترسب و مخلوط گردید. سپس دوغاب حاصل خشک و گرانوله شد و به کمک پرس تک محوره تحت فشار ۶۰ MPa نمونه‌هایی به صورت قرص‌هایی با ابعاد (۳۰ میلیمتر قطر  $\times$  ۱۰ میلیمتر ارتفاع) و استوانه‌هایی با قطر و ارتفاع ۵ cm و همچنین مکعب مستطیل‌هایی با ابعاد ( $5 \times 10 \times 50\text{ mm}^3$ ) تهیه شد. بطور کلی جهت سوختن گرافیت ابتدا تمامی نمونه‌ها در محدوده دمای  $400-800^{\circ}\text{C}$  با سرعت گرمایش کم  $5^{\circ}\text{C}/\text{min}$  در کوره الکتریکی حرارت داده شدند. سپس پخت نهایی در دمای  $1250^{\circ}\text{C}$  به مدت ۳ ساعت تحت اتمسفر هوای معمولی انجام شد.

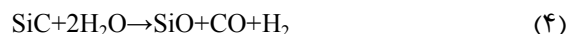
#### ۲-۳- روش‌های ارزیابی خواص

جهت تعیین چگالی و درصد تخلخل از روش غوطه‌وری مطابق با روش استاندارد (ASTM-C373-88) استفاده شد. همچنین استحکام خمشی نمونه‌ها نیز از طریق روش

افزایش دما و در  $980^{\circ}\text{C}$  متاکائولن مطابق واکنش ۲ به مولایت و سیلیس (کریستوبالیت) تجزیه می‌شود. وجود کربن ناشی از گرافیت در ترکیب به علت خاصیت احیاءکنندگی می‌تواند مطابق واکنش ۳ باعث احیاء مولایت و در نتیجه تشکیل فاز کوراندوم شود [۱۴-۸].



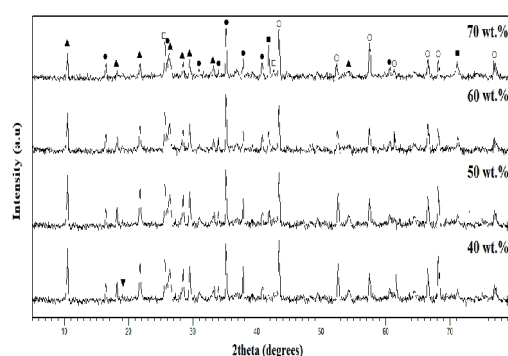
همچنین بخار آب خارج شده ناشی از تجزیه کائولن (واکنش ۱) می‌تواند طبق واکنش ۴ باعث تجزیه کاربرد سیلیسیم و تشکیل گاز هیدروژن شود که این گاز نیز می‌تواند در تشدید شرایط احیایی موثر باشد.



بنابراین حضور گرافیت به عنوان یک عامل کربنی و همچنین کاربرد سیلیسیم در این کامپوزیت‌ها می‌تواند باعث تشکیل فاز کوراندوم شود. اما با توجه به نتایج شکل ۱ مشخص می‌شود که با افزایش میزان نانوذرات کاربرد سیلیسیم از میزان فاز کورددیریت کاسته می‌شود و از طرف دیگر مقدار فاز مولایت افزایش می‌یابد. همچنین نتایج شکل ۱ نشان می‌دهد که با افزایش میزان نانوذرات کاربرد سیلیسیم در ترکیب نانوکامپوزیت، مقدار فاز کوراندوم تشکیل شده کاهش می‌یابد. از دلایل این امر می‌توان به کاهش میزان رس مصرفی در ترکیب اولیه نانوکامپوزیت با افزایش مقدار نانوکامپوزیت سیلیسیم اشاره کرد. همچنین فاز کوراندوم تشکیل شده نیز در حضور سیلیس (آمورف) ناشی از اکسیداسیون سطحی ذرات نانوذرات کاربرد سیلیسیم (واکنش ۵) می‌تواند باعث تشکیل بیشتر فاز مولایت سوزنی شکل (واکنش ۶) شود و از مقدار فاز کوراندوم در ترکیب نانوکامپوزیت کاسته شود.



و همچنین فازهای مولایت و کریستوبالیت شده است. بطور کلی در اثر واکنش بین کائولن با تالک در دمای مناسب ( $1300-1250^{\circ}\text{C}$ ) فاز کورددیریت می‌تواند تشکیل شود. در این ارتباط مواد اولیه مورد استفاده (تالک و کائولن) باید حاوی درصد مناسبی از اکسیدهای تشکیل دهنده همانند  $\text{MgO}$ ،  $\text{Al}_2\text{O}_3$  و  $\text{SiO}_2$  باشند تا واکنش‌ها بطور مناسب صورت گیرد و فازهای مناسب همانند کورددیریت با مقادیر مطلوب تشکیل شوند. بنابراین آنالیز شیمیایی مواد اولیه از اهمیت زیادی در این ارتباط برخوردار است.



شکل ۱: آنالیز فازی ترکیبات حاوی درصدهای

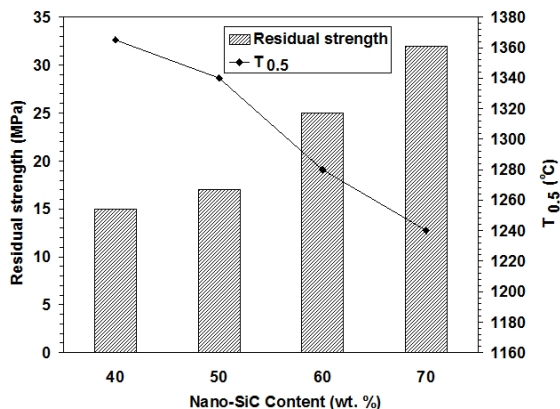
مختلف نانوکامپوزیت سیلیسیم.

(▲:  $\alpha$ -Cordierite, ▼:  $\mu$ -Cordierite, ●: Mullite,  
□: Cristobalite, ■:  $\alpha$ -SiC, ○: Corundum)

فازهای مولایت و کریستوبالیت نیز می‌تواند در اثر حرارت دادن کائولن تشکیل شود. بدلیل خواص نامناسب فاز کریستوبالیت از جمله ضریب انبساط حرارتی بالا ( $17/5 \times 10^{-6}/\text{K}$ ) در محدوده دمای  $20-700^{\circ}\text{C}$  به عنوان فاز نامناسب در این کامپوزیت‌ها محسوب شده و بر روی خواص بدنه کامپوزیت همانند مقاومت به شوک حرارتی و استحکام نهایی می‌تواند تاثیر نامناسب داشته باشد [۳]. فاز  $\alpha$ -SiC نیز ناشی از نانوذرات کاربرد سیلیسیم است که در ترکیب به عنوان ماده اولیه استفاده شده است. اما همانطور که مشاهده می‌شود علاوه بر فازهای مذکور فاز کوراندوم ( $\alpha$ -آلومینا) نیز شناسایی شده است که در ترکیب اولیه استفاده نشده و پس از پخت ترکیب تشکیل شده است. بطور کلی با افزایش دما در حدود  $550^{\circ}\text{C}$  کائولن مصرفی مطابق واکنش ۱ به متاکائولن تجزیه می‌شود و آب کریستالی خود را از دست می‌دهد. با

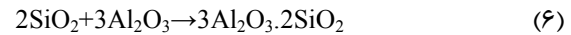
کاربید سیلیسیم باعث افزایش میزان فاز مولایت و همچنین فاز سیلیس آمورف ناشی از اکسیداسیون نانوذرات کاربید سیلیسیم می‌شود. تشکیل فاز مولایت بدلیل انبساطی بودن آن باعث افزایش فاصله بین ذرات و در نتیجه افزایش میزان تخلخل‌ها می‌شود. بنابراین با توجه به نتایج شکل ۲ با افزایش میزان نانوذرات کاربید سیلیسیم و افزایش میزان فاز مولایت در نتیجه میزان تخلخل‌های ساختاری نیز افزایش می‌یابد. همچنین علاوه بر افزایش میزان تخلخل‌ها، افزایش میزان فاز سیلیس آمورف بدلیل افزایش مقدار نانوکاربید سیلیسیم نیز می‌تواند باعث کاهش استحکام خمشی نانوکامپوزیت شود.

**۳-۳- تأثیر میزان نانوذرات کاربید سیلیسیم بر مقاومت در برابر شوک حرارتی و دیرگدازی تحت بار**  
در شکل ۳ تأثیر مقادیر مختلف نانوذرات کاربید سیلیسیم بر میزان مقاومت در برابر شوک حرارتی (استحکام باقیمانده) و همچنین دیرگدازی تحت بار ترکیب نانوکامپوزیت نشان داده شده است.



شکل ۳: تأثیر مقادیر مختلف نانوذرات کاربید سیلیسیم بر مقاومت در برابر شوک حرارتی و دیرگدازی تحت بار بدنه نانوکامپوزیت.

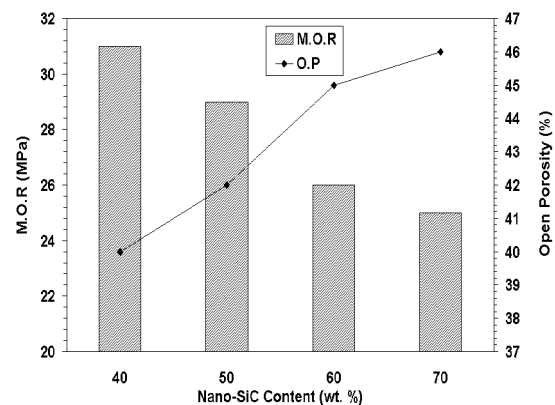
با توجه به نتایج شکل ۳ مشخص می‌شود که با افزایش میزان نانوذرات کاربید سیلیسیم مقاومت در برابر شوک حرارتی (میزان استحکام باقیمانده پس از اعمال شوک حرارتی) افزایش یافته و همزمان دیرگدازی تحت بار بدنه کاهش نشان می‌دهد. با توجه به نتایج ارائه شده در شکل ۱ می‌توان علت این تغییرات را به افزایش میزان فاز کوراندوم در ترکیب با افزودن نانوذرات کاربید سیلیسیم



بنابراین با افزایش مقدار نانوذرات کاربید سیلیسیم مقدار فاز مولایت نیز افزایش می‌یابد ولی در هر صورت بخشی از سیلیس تشکیل شده ناشی از اکسیداسیون نانوذرات کاربید سیلیسیم در واکنش شرکت نمی‌کند و به صورت فاز سیلیس آمورف در ترکیب نهایی دیده می‌شود. بدلیل سوزنی بودن فاز مولایت ثانویه تشکیل آن می‌تواند به افزایش استحکام کمک کند.

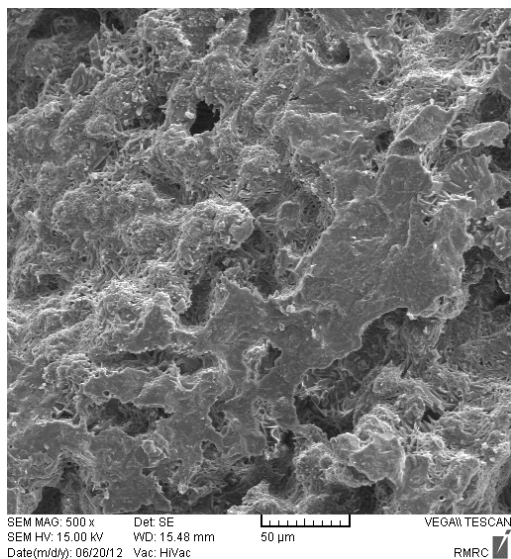
### ۲-۳- تأثیر میزان نانوکاربید سیلیسیم بر میزان تخلخل و استحکام خمشی

در شکل ۲ تأثیر درصدهای مختلف نانوکاربید سیلیسیم بر استحکام خمشی و میزان تخلخل ترکیب نانوکامپوزیت ارائه شده است.

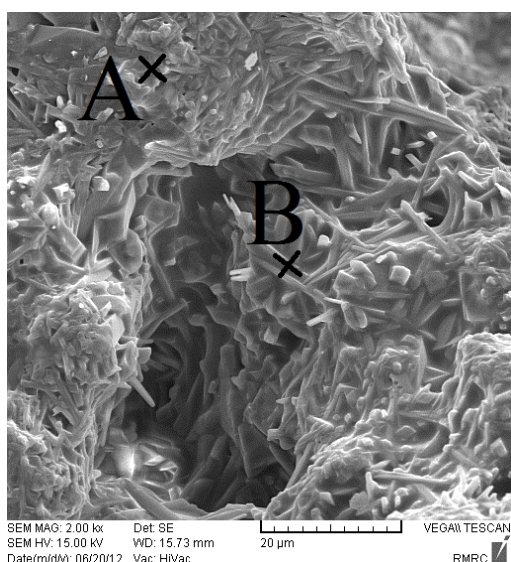


شکل ۲: تأثیر میزان نانوکاربید سیلیسیم بر استحکام خمشی و درصد تخلخل نانوکامپوزیت.

با توجه به نتایج شکل ۲ افزایش میزان نانوکاربید سیلیسیم باعث افزایش درصد تخلخل و در نتیجه کاهش استحکام خمشی این نوع نانوکامپوزیت‌ها می‌شود. بطور کلی شکل، نوع و میزان تخلخل‌های ریزساختار تأثیر زیادی بر استحکام مکانیکی بدنه سرامیکی دارد بطوریکه با افزایش میزان تخلخل استحکام مکانیکی کاهش قابل ملاحظه‌ای می‌یابد. در نتایج ارائه شده در شکل ۲ نیز مشخص می‌شود که میزان تخلخل تأثیر زیادی بر استحکام خمشی این نوع نانوکامپوزیت‌ها دارد. اما همانطور که در نتایج شکل ۱ مشخص شد، افزایش میزان نانوذرات



شکل ۴: تصویر SEM از سطح شکست نانوکامپوزیت تهیه شده با ۶۰ درصد وزنی نانوکاربید سیلیسیم.



شکل ۵: تصویر SEM از سطح شکست نانوکامپوزیت تهیه شده با ۶۰ درصد وزنی نانوکاربید سیلیسیم.

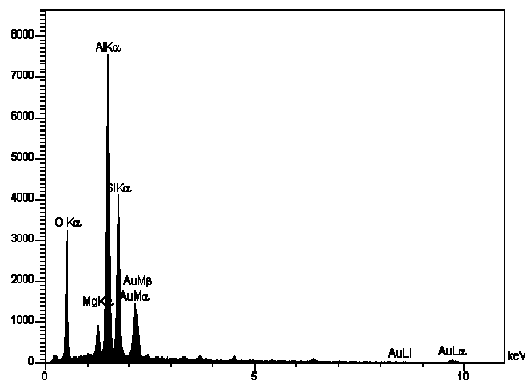
نسبت داد. فاز کوراندوم دارای نقطه ذوب بالایی است ( $2072^{\circ}\text{C}$ ) بنابراین با تشکیل آن در بدنه باعث افزایش دیرگدازی تحت بار ترکیب می‌شود. بدین ترتیب بدنه کامپوزیت دارای ۴۰ درصد نانوکاربید سیلیسیم بدلیل داشتن مقدار فاز کوراندوم بالاتر در مقایسه با دیگر ترکیبات از دیرگدازی تحت بار بالاتری برخوردار است. اما از طرف دیگر فاز کوراندوم دارای ضریب انبساط حرارتی بالاتری ( $8/1 \times 10^{-6}/\text{K}$ ) در محدوده دمایی ( $20-700^{\circ}\text{C}$ ) نسبت به فازهای کوردیریت ( $1/7-2/4 \times 10^{-6}/\text{K}$ ) در محدوده دمایی ( $20-700^{\circ}\text{C}$ ) و مولایت ( $5/4 \times 10^{-6}/\text{K}$ ) در محدوده دمایی ( $20-700^{\circ}\text{C}$ ) است و بنابراین با تشکیل آن از مقاومت در برابر شوک حرارتی بدنه کاسته خواهد شد. نتایج شکل ۳ نیز نشان می‌دهد ترکیب نانوکامپوزیت ساخته شده با ۷۰ درصد نانوکاربید سیلیسیم از بالاترین مقاومت در برابر شوک حرارتی و ترکیب نانوکامپوزیت ساخته شده با ۴۰ درصد نانوکاربید سیلیسیم از بیشترین مقدار دیرگدازی تحت بار برخوردار هستند. با توجه به نتایج شکل ۳ مقدار ۶۰ درصد نانوذرات کاربید سیلیسیم به همراه ۴۰ درصد زمینه نانوکامپوزیت انتخاب گردید تا بدنه نانوکامپوزیت از دیرگدازی تحت بار و مقاومت در برابر شوک حرارتی مناسبی بطور همزمان برخوردار شود. در این ارتباط نسبت‌های مشابهی نیز در کارهای تحقیقاتی Liu [۲۵] و همچنین Ding و همکارانش [۱۵] استفاده شده است که می‌تواند تایید کننده نتایج حاصل باشد.

### ۳-۴- بررسی‌های ریزساختاری

شکل‌های ۴ و ۵ تصویر SEM از سطح شکست ترکیب نانوکامپوزیت تهیه شده با ۶۰ درصد وزنی نانوذرات کاربید سیلیسیم را نشان می‌دهند. در تصاویر میکروسکوپی ارائه شده یک ساختار متخلخل و دارای تخلخل‌های نسبتاً پیوسته دیده می‌شود. بطور کلی سه نوع تخلخل در ساختار دیده می‌شود. یک نوع تخلخل شامل تخلخل‌های کوچکی می‌باشند که می‌توانند از تجمع و آگلومره شدن نانوذرات کاربید سیلیسیم در ترکیب ناشی شده باشند [۱۵]. تجمع و آگلومره شده نانوذرات کاربید سیلیسیم می‌تواند بدلیل سطح ویژه بالای آنها در ترکیب به هنگام مخلوط کردن ایجاد شود.

تخلخل‌های ناشی از تجمع نانوذرات کاربید سیلیسیم تا حدودی پس از پخت در دمایی  $1250^{\circ}\text{C}$  می‌توانند ناپدید شوند [۱۵]. این امر می‌تواند بدلیل تشکیل لایه آمورف اکسید سیلیسیم بر روی سطح نانوذرات کاربید سیلیسیم در دمایی بالا باشد. نوع دیگر تخلخل‌ها شامل تخلخل‌های بزرگی می‌باشد که ناشی از سوختن ذرات گرافیت مورد استفاده (با متوسط اندازه ذرات کمتر از  $45\ \mu\text{m}$ ) ایجاد شده‌اند. همچنین نوع سوم تخلخل‌ها مربوط به تخلخل‌های تشکیل شده بین کریستال‌های سوزنی شکل

محاسبات می‌باشد. فاز کوردیریت بین نانوذرات کاربرد سیلیسیم تشکیل و باعث برقراری اتصال بین آنها می‌شود. در شکل ۷ و همچنین جدول ۴، نتایج آنالیز نقطه‌ای مربوط به نقطه B در شکل ۵ ارائه شده است. بطور کلی فرمول فاز مولایت  $Al_{(4+2x)}Si_{(2-2x)}O_{(10-x)}$  است که مقدار x بین ۰/۱۷ تا ۰/۵۹ متغیر است. بر اساس مقدار متوسط x در فرمول شیمیایی مولایت، درصد عناصر تشکیل دهنده آن شامل آلومینیوم، سیلیسیم و اکسیژن به ترتیب ۳۸، ۱۳/۱۸ و ۴۸/۸۲ درصد می‌باشد. با مقایسه این نسبت‌ها و نتایج ارائه شده و نسبت وزنی عناصر شناسایی شده در جدول ۴ می‌توان بیان کرد که فاز مشخص شده در نقطه B نشان دهنده فاز مولایت می‌باشد. همانطوریکه اشاره شد اختلاف جزئی در درصد عناصر ناشی از خطای اندازه‌گیری و دستگامی و در نظر گرفتن عنصر طلا در محاسبات می‌باشد. فاز مولایت نیز در دمای پخت می‌تواند بین نانوذرات کاربرد سیلیسیم تشکیل و باعث برقراری اتصال بین آنها و دیگر فازهای ترکیب همانند کوردیریت و کوراندوم شود.



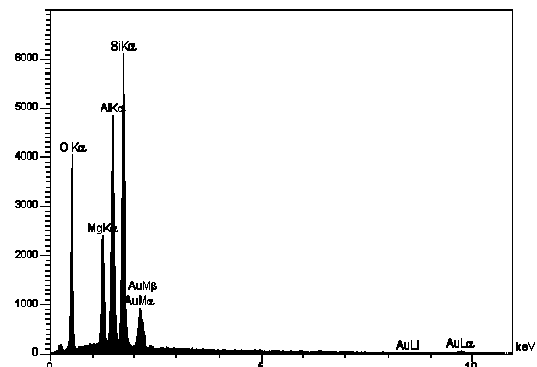
شکل ۷: نتایج آنالیز EDX مربوط به نقطه B در شکل ۵.

جدول ۴: نتایج آنالیز عنصری مربوط به نقطه B در شکل ۵.

Element	Line	Intensity	ZAF	W %	A %
O	Ka	۵۸۰/۱	۰/۴۱۷۵	۳۸/۸۳	۶۳/۲۱
Mg	Ka	۱۵۱/۱	۰/۶۹۶۲	۲/۱۶	۲/۳۲
Al	Ka	۱۶۲۸/۷	۰/۷۶۷۸	۳۰/۷۷	۲۰/۰۵
Si	Ka	۸۵۱/۹	۰/۷۴۰۶	۱۱/۷۸	۱۰/۹۳
Au	La	۱۵/۱	۰/۶۱۹۲	۲۶/۴۵	۳/۵

با توجه به تصاویر ارائه شده در شکل‌های ۴ و ۵، اتصال گردنه‌ای مناسبی بین نانوذرات کاربرد سیلیسیم و فاز

مولایت می‌باشد. با توجه به تصویر ارائه شده در شکل ۵ که بزرگنمایی بالاتری را ارائه می‌کند مشخص می‌گردد بین ذرات ترکیب کامپوزیت فاز سوزنی شکل مولایت به خوبی تشکیل شده و رشد یافته و در همه جای ساختار نیز حضور دارد. تشکیل این کریستال‌های سوزنی شکل باعث از هم فاصله گرفتن ذرات و ایجاد انبساط در ساختار شده است که نتیجه آن افزایش میزان تخلخل‌های ریزساختار می‌باشد. در شکل ۶ و همچنین جدول ۳، نتایج آنالیز نقطه‌ای مربوط به نقطه A در شکل ۵ ارائه شده است.



شکل ۶: نتایج آنالیز EDX مربوط به نقطه A در شکل ۵.

جدول ۳: نتایج آنالیز عنصری مربوط به نقطه A در شکل ۵.

Element	Line	Intensity	ZAF	W %	A %
O	Ka	۷۵۲/۷	۰/۴۴۷۶	۴۵/۲۹	۶۴/۶۱
Mg	Ka	۵۱۶/۷	۰/۶۸۹۵	۷/۲۱	۶/۷۶
Al	Ka	۱۰۹۲/۴	۰/۷۱۹۷	۱۴/۳۳	۱۲/۱۲
Si	Ka	۱۳۵۱/۶	۰/۷۳۴۶	۱۸/۱۶	۱۴/۷۶
Au	La	۸/۳	۰/۵۷۹۴	۱۵/۰۲	۱/۷۴

بطور کلی فرمول فاز کوردیریت  $Mg_2Al_4Si_5O_{18}$  است که درصد عناصر تشکیل دهنده آن شامل منیزیم، آلومینیوم، سیلیسیم و اکسیژن به ترتیب ۸/۳۱، ۱۸/۴۵، ۲۴/۰۱ و ۴۹/۲۳ درصد می‌باشد. با مقایسه این نسبت‌ها و نتایج ارائه شده و نسبت وزنی عناصر شناسایی شده در جدول ۳ می‌توان بیان کرد که فاز مشخص شده در نقطه A نشان دهنده فاز کوردیریت می‌باشد. اختلاف موجود در درصد عناصر نیز ناشی از خطای اندازه‌گیری و دستگامی و همچنین در نظر گرفتن عنصر طلا بکار رفته به عنوان پوشش نمونه‌ها جهت انجام بررسی میکروسکوپی در



مولایت ثانویه بین ذرات بدنه می‌تواند به بهبود استحکام مکانیکی کمک کند. با توجه به نتایج با افزایش مقدار نانوذرات کاربید سیلیسیم مقاومت در برابر شوک حرارتی افزایش اما دیرگدازی تحت بار ترکیب نانوکامپوزیت کاهش می‌یابد. در این ارتباط مناسب‌ترین مقدار نانوکاربید سیلیسیم برای ایجاد خواص بهینه در نانوکامپوزیت، مقدار ۶۰ درصد وزنی تعیین شد. بررسی‌های ریزساختاری نیز تشکیل مناسب فاز اتصال کوردیریت-مولایت را بین نانوذرات کاربید سیلیسیم تایید کرد.

### مراجع

- [1] A. Benhammou, Y.E. Hafiane, L. Nibou, A. Yaacoubi, J. Soro, A. Smith, J.P. Bonnet, B. Tanouti, *Ceramics International*, **39**, 2013, 21.
- [2] C.Y. Bai, X.Y. Deng, J.B. Li, Y.N. Jing, W.K. Jiang, *Materials Characterization*, **90**, 2014, 81.
- [3] O. Ebrahimpour, C. Dubois, J. Chaouki, *Journal of the European Ceramic Society*, **34**, 2014, 237.
- [4] S. Akpınar, I.M. Kusoglu, O. Ertugrul, K. Onel, *Ceramics International*, **38**, 2012, 6163.
- [5] F.C. Zhang, H.H. Luo, T.S. Wang, M. Zhang, Y.N. Sun, *Journal of Science and Technology*, **68**, 2008, 3245.
- [6] K.T. Wang, L.Y. Cao, J.F. Huang, J. Fei, *Journal of the European Ceramic Society*, **33**, 2013, 191.
- [7] O. Montes, R. Moreno, C. Baudin, *Journal of the European Ceramic Society*, **30**, 2010, 857.
- [8] K.Y. Lim, Y.W. Kim, I.H. Song, *Ceramics International*, **39**, 2013, 6827.
- [9] J. Li, H. Lin, J. Li, *Journal of the European Ceramic Society*, **31**, 2011, 825.
- [10] G. Parciannello, E. Bernardo, P. Colombo, *Ceramics International*, **39**, 2013, 8893.
- [11] R. Riedel, L. Toma, C. Fasel, G. Miehe, *Journal of the European Ceramic Society*, **29**, 2009, 3079.
- [12] N. Montoya, F.J. Serrano, M.M. Reventos, J.M. Amigo, J. Alarcon, *Journal of the European Ceramic Society*, **30**, 2010, 839.
- [13] P.M. Souto, R.R. Menezes, R.H. Kiminami, *Journal of Materials Processing Technology*, **209**, 2009, 548.
- [14] H. Majidian, T. Ebadzadeh, E. Salahi, *Materials Science and Engineering*, **A530**, 2011, 585.
- [15] Y.Z. Ding, J. Gao, J. Yang, *Journal of the European Ceramic Society*, **29**, 2009, 1101.
- [16] M.F. Zawrah, M.H. Aly, *Ceramics International*, **32**, 2006, 21.
- [17] S. Gustafsson, L.K. Falk, E. Liden, E. Carlstrom, *Ceramics International*, **35**, 2009, 1293.
- [18] S. Akpınar, I.A. Altun, K. Onel, *Journal of the European Ceramic Society*, **30**, 2010, 2727.
- [19] M. Dimitrijevic, M. Posarac, J. Majstorovic, T. Volkov-Husovic, B. Matovic, *Ceramics International*, **35**, 2009, 1077.
- [20] A. Dey, N. Kayal, O. Chakrabarti, *Ceramics International*, **37**, 2011, 223.
- [21] A. Srivastava, V.K. Singh, V. Kumar, P.H. Kumar, H. Tripathi, A. Chaudhary, K. Asiwal, R. Pandey, S.K. Suman, *Journal of Alloys and Compounds*, **586**, 2014, 581.
- [22] Q. Liu, F. Ye, Z. Hou, S. Liu, Y. Gao, H. Zhang, *Journal of the European Ceramic Society*, **33**, 2013, 2421.
- [23] M. Posarac-Markovic, D. Veljovic, A. Devecerski, B. Matovic, T. Volkov-Husovic, *Materials and Design*, **52**, 2013, 295.

اتصال زمينه دیده می‌شود که تشکیل مناسب فاز اتصال کوردیریت به همراه مولایت را تایید می‌کند. طبق پژوهش Ding و همکارانش [۱۵] مولایت سوزنی شکل از نفوذ ذرات ریزدانه  $\alpha$ -آلومینا در فاز شیشه ویسکوز (کریستوبالیت) در دمای بالای  $1400^{\circ}\text{C}$  شروع به تشکیل می‌کند، در حالیکه در این تحقیق مولایت به همراه فاز کوردیریت در  $1250^{\circ}\text{C}$  تشکیل شده است. از دلایل این امر می‌توان به استفاده از نانوذرات کاربید سیلیسیم اشاره کرد که در دمای پایین‌تر فاز شیشه‌ای فعال برای تشکیل مولایت فراهم می‌کند. همانطوریکه اشاره شد گرافیت به همراه کاربید سیلیسیم می‌تواند رس را احیاء کنند و باعث تشکیل فاز کوراندوم شوند. با افزایش دما فاز کوراندوم تشکیل شده می‌تواند با سیلیس آمورف ناشی از اکسیداسیون سطحی کاربید سیلیسیم وارد واکنش شود و تشکیل مولایت سوزنی دهد. تشکیل مولایت سوزنی بین ذرات سیستم می‌تواند به افزایش استحکام مکانیکی کمک کند. بطور کلی مولایت در دماهای بالا، استحکام مکانیکی خود را حفظ می‌کند. از طرف دیگر فاز کوردیریت خواص مکانیکی مناسبی بویژه در دماهای بالا ندارد. بدین ترتیب تشکیل فاز مولایت در کنار فاز کوردیریت به عنوان فاز اتصال زمينه می‌تواند شرایط مناسب‌تری را به لحاظ خواص مکانیکی برای این نوع نانوکامپوزیت‌ها فراهم کند.

### ۴- نتیجه‌گیری

در این پژوهش نانوکامپوزیت‌های متخلخل بر پایه کاربید سیلیسیم با اتصال کوردیریت-مولایتی ساخته شد و تاثیر مقادیر مختلف نانوذرات کاربید سیلیسیم بر خواص آنها مورد ارزیابی قرار گرفت. نتایج نشان داد که فازهای کریستوبالیت و مولایت اولیه علاوه بر کوردیریت در بدنه می‌توانند تشکیل شوند که مقدار آنها به میزان نانوکاربید سیلیسیم وابسته است. با توجه به نتایج آنالیز فازی استفاده از گرافیت به همراه کاربید سیلیسیم باعث تشکیل فاز کوراندوم در ترکیب می‌گردد، تشکیل فاز کوراندوم را می‌توان به خاصیت احیاء کنندگی گرافیت نسبت داد. با افزایش دما فاز کوراندوم می‌تواند با سیلیس آمورف ناشی از اکسیداسیون سطحی ذرات کاربید سیلیسیم وارد واکنش شود و تشکیل مولایت سوزنی شکل دهد. تشکیل



کوردپریتی تهیه شده به روش اتصال-واکنشی"، مجله مواد نوین، شماره ۴، ۱۳۹۳، ۷۰-۵۷.

- [28] K.G.K. Warriar, G.M.A. kumar, *Materials Chemistry and Physics*, **67**, 2001, 263.
- [29] A.K. Samanta, K.K. Dhargupta, S. Ghatak, *Ceramics International*, **27**, 2001, 195.
- [30] I.M. Low, *Matterials Science*, **24**, 1989, 926.
- [31] C.Y. Bai, X.Y. Deng, J.B. Li, Y.N. Jing, W.K. Jiang, Z.M. Liu, Y. Li, *Ceramics International*, **40**, 2014, 6225.
- [32] X. Xu, Z. Rao, J. Wu, Y. Li, Y. Zhang, X. Lao, *Solar Energy Materials and Solar Cells*, **130**, 2014, 257.
- [33] Y. Li, C.Y. Bai, X.Y. Deng, J.B. Li, Y.N. Jing, Z.M. Liu, *Ceramics International*, **40**, 2014, 16581.

[24] H. Wu, Y. Li, Y. Yan, J. Yin, X. Liu, Z. Huang, S.H. Lee, D. Jiang, *Journal of the European Ceramics Society*, **34**, 2014, 3469.

[25] Y. Liu, J. Men, W. Feng, L. Cheng, L. Zhang, *Ceramics International*, **40**, 2014, 11889.

[۲۶] امیرحسین جمشیدی، ابوالحسن نجفی، نجم‌الدین عرب، مهدی قهاری، "بررسی تأثیر عوامل مهم در ساخت فیلترهای فومی سرامیکی بر پایه کاربید سیلیسیم به منظور کاربرد در صنایع ریخته‌گری چدن"، مجله مواد نوین، شماره ۳، ۱۳۹۱، ۷۸-۶۹.

[۲۷] الهام صفابخش، ساسان اطرح، محمدرضا نیلفروشان، "بررسی عوامل موثر بر خواص کامپوزیت‌های متخلخل بر پایه کاربید سیلیسیم دارای اتصال