

## اتصال نفوذی بدنه های آلومینایی با استفاده از مخلوط نانوذره های هیدریدی بین لایه ای و بررسی ساختار و استحکام اتصال

نوید حسین آبادی<sup>۱</sup>، رسول صراف ماموری<sup>۲\*</sup> و علی محمد هادیان<sup>۳</sup>

### چکیده

در این پژوهش ابتدا مخلوطی از نانوذره های هیدرید آلومینیم و آلانیت منیزیم با استفاده از مواد اولیه کلریدی و به روش آسیای مکانیکی - شیمیایی تهیه گردید. سپس بدنه های صلب آلومینایی پس از اعمال لایه میانی هیدریدی، در چهار دمای ۳۰۰، ۳۵۰، ۴۰۰ و ۴۵۰ درجه سانتی گراد با استفاده از یک پرس داغ القایی متصل شدند. در حین اتصال، تجزیه نانوذره های هیدریدی در دمای اتصال، مخلوطی از نانوذره های آلومینیم و ترکیب بین فلزی آلومینیم - منیزیم بدون لایه اکسید سطحی را به گونه درجا در لایه میانی فراهم آورد. در انتها، ساختار فصل مشترک و استحکام پیوند در اتصال نفوذی بدنه ها مورد بررسی قرار گرفت. مشاهده شد که اتصال بدنه ها با تشکیل مجموعه ای از اکسیدهای مختلط (اسپینل) همراه بود که استحکام پیوندی در حد ۱۹۶ مگاپاسکال را ایجاد نمود.

واژه های کلیدی: اتصال نفوذی، آلومینا، هیدرید، نانوذره، پرس داغ القایی.

۱- دانشجوی دکتری، دانشگاه تربیت مدرس، گروه سرامیک.

۲- عضو هیئت علمی، دانشگاه تربیت مدرس، گروه سرامیک.

۳- عضو هیئت علمی، دانشگاه تهران، دانشکده فنی.

\*- نویسنده مسئول مقاله: rsarrafm@modares.ac.ir

## پیشگفتار

بتازگی کاربرد سرامیک‌های پیشرفته مهندسی در مقیاس میکرو و نانودر فرایندهای مهندسی، تولید، مهندسی زیستی و زیست‌فناوری بیش‌از پیش گسترش یافته است [۱ و ۲]. دستیابی به این پیشرفت‌ها نیازمند توسعه فرایندهای تولید بدنه‌های پیچیده، مرکب و یا لایه‌ای از سرامیک‌هاست. این فرایندها نیازمند اتصال سرامیک‌های با طبیعت مشابه یا بعضاً متناقض هستند. برخی از محدودیت‌های ساخت بدنه‌های سرامیکی یکپارچه سرامیکی در اشکال و ابعاد پیچیده نیز اهمیت توسعه فرایندهای اتصال بدنه‌های سرامیکی را دو چندان کرده است [۳]. عمده روش‌های اتصال بدنه‌های سرامیکی بر پایه اعمال فشار و دماهای بسیار بالا ایجاد شده‌اند که محدودیت‌های فناوری و هزینه‌های بسیاری به همراه دارند. روش‌های آسان‌تر شامل اتصال با استفاده از شیشه‌ها، فلزات و فلزات لحیم فعال به همراه واکنش‌های سطحی فاز مایع هستند که استحکام کمتری دارند. اتصال نفوذی شامل فرایندهای اتصال در فاز جامد با اعمال فشار و دماهای متوسط است که شامل مجموعه‌ای از فرایندهای فیزیکی هم‌زمان مانند خزش، نفوذ و تولید فراورده‌های واکنش در فصل مشترک اجزا می‌باشد. استفاده از مواد اتصال بین لایه‌ای با طبیعتی متفاوت از بدنه‌های سرامیکی، منجر به گسترش مصارف اتصال نفوذی در سال‌های اخیر شده است [۴ و ۳]. این مواد شامل ورقه‌های نازک فلزی (فویل)، لایه‌های پوششی به روش‌های فیزیکی و شیمیایی (CVD-PVD) و استفاده از اجزا ریزدانه (پودر) در فضای بین لایه‌ای است. با توجه به نقش مهم لایه میانی در ایجاد پیوند هم‌زمان با دو سطح اتصال و کنترل خواص بدنه اتصال یافته، بهینه‌سازی مواد لایه میانی موضوع بسیاری از پژوهش‌ها بوده است [۵]. بهبود ترکیب شیمیایی، چسبندگی، یکنواختی، و توانایی اعمال آسان از مهم‌ترین موضوع‌های این پژوهش‌ها هستند. از این میان، استفاده از مواد در مقیاس نانومتری از قبیل بدنه‌های با دانه‌های نانومتری و نانوذرات توجه بسیاری را به خود جلب نموده است [۷-۵]. نانوذره‌ها با داشتن سطح آزاد بیشینه و توانایی تف‌جوشی سریع، کاربردهای فراوانی در این زمینه پیدا کرده‌اند. مهم‌ترین محدودیت استفاده از

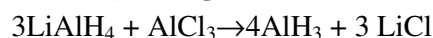
ذرات نانومتری فلزی در لایه میانی تشکیل لایه‌های اکسیدی سطحی است که به افزایش دمای مورد نیاز برای اتصال نفوذی می‌انجامد [۸]. در این پژوهش ایجاد درجای مواد اولیه فلزی/آلیاژی در ابعاد نانومتری بدون لایه اکسیدی و نقش آن در کاهش دمای اتصال و افزایش استحکام پیوند با استفاده از نانوذره‌های هیدریدی با دمای تجزیه در محدوده دماهای اتصال مورد بررسی قرار گرفته است.

## مواد و روش‌ها

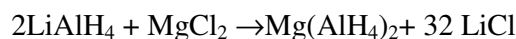
در مرحله تهیه مخلوط پودر، مواد اولیه شامل کلرید بی‌آب منیزیم ( $MgCl_2$ ) با خلوص بیش از ۹۸٪ - مرک آلمان با اندازه ذرات حدود ۳ میکرومتر) به عنوان تامین کننده منیزیم، کلرید آلومینیم ( $AlCl_3$ ) با خلوص بیش از ۹۸٪ - مرک آلمان با اندازه ذرات حدود ۳ میکرومتر)، و آلانیت لیتیم ( $LiAlH_4$ ) با خلوص بیش از ۹۹٪ - مرک آلمان با اندازه ذرات حدود ۱ میکرومتر) برای تامین آلومینیم و هیدروژن تهیه شد. سپس، کلرید منیزیم تحت اتمسفر آرگون و دمای ۱۷۵ درجه سانتی گراد به مدت ۶ ساعت رطوبت‌زدایی و خشک شد. تمامی مراحل نگهداری، بارگذاری و تخلیه در گلاوباکس با اتمسفر تحت خلا  $10^{-3}$  بار و تزریق گاز آرگون خالص انجام گردید. مواد اولیه با نسبت مورد نظر به همراه گلوله‌های فولادی به نسبت وزنی ۱:۲۰ در یک ظرف آسیای ساخته شده از فولاد کرم‌دار به حجم ۵۰۰ سی‌سی بارگذاری گردید. ظرف آسیا دارای دو شیر جهت تخلیه هوای ظرف با خلا  $10^{-3}$  بار و تزریق مخلوط ۵۰-۵۰ از گاز آرگون - هیدروژن خلوص بالا بود. عملیات آسیا با استفاده از آسیای پرانرژی مدل (Fritsch pluversitte 6) با چرخش ۳۰۰ دور بر دقیقه و به مدت ۳ ساعت انجام گردید. تماس‌های پرانرژی بین گلوله‌ها، مخلوط پودر، و دیواره ظرف انرژی مورد نیاز برای انجام واکنش در حین تجزیه مواد اولیه، مخلوط کردن آن‌ها، ایجاد تماس در مقیاس اتمی و تولید مخلوط هیدرید و آلانیت، بدون خطر تماس با اتمسفر محیط و یا محیط‌های آبی-آلی را فراهم می‌آورد که به تهیه فراورده با خلوص بالا کمک کرد. حذف مواد اولیه کلریدی باقی‌مانده و یا فراورده‌های کلریدی واکنش مثل کلرید لیتیم از راه

خالص آلومینا (<97%) برای ساخت قرص‌های آلومینیایی به قطر ۱۷ و ارتفاع ۵ میلی‌متر استفاده شد. تفجوشی بدون فشار قرص‌های شکل داده شده با فشار تک‌محوری ۳۰۰ مگاپاسکال در دمای ۱۶۵۰ درجه سانتی‌گراد به مدت ۲۴ ساعت انجام گردید. انتخاب این رژیم حرارتی برای اطمینان از تکمیل شدن فرایندهای تفجوشی و رشد دانه در بدنه‌ها و ایجاد بدنه‌های یکنواخت بوده است. ویژگی‌های فیزیکی و مکانیکی بدنه‌ها در جدول ۱ ارائه شده است. سطح اتصال بدنه‌های آلومینیایی با استفاده از سمباده‌های کاربرد سیلیسیم ۴۰۰، ۶۰۰، ۱۰۰۰ و ۱۲۰۰ سمباده‌زنی و با خمیر الماس و سوسپانسیون آلومینیایی پولیش گردید. زبری سطحی بدنه‌ها با استفاده از میکروسکوپ نیروی اتمی غیر تماسی (AFM, solver P47H instrument) در حد ۷۰ نانومتر اندازه‌گیری شد. عملیات شستشوی بدنه‌ها در دو مرحله انجام گردید: مرحله نخست براده‌زدایی در آب دی‌یونیزه و مرحله دوم چربی‌زدایی با مخلوط ۵۰-۵۰ الکل-استون تحت ارتعاش آلتراسونیک به مدت ۳۰ دقیقه. بدنه‌ها پیش از اتصال در گلاوباکس نگهداری گردید. اتمسفر گلاوباکس تحت خلا ۱۰<sup>-۳</sup> بار قرار گرفت و سپس تزریق گاز خالص آرگون با خلوص ۹۹/۹۹ انجام شد. لایه میانی مخلوط پودر هیدریدی به روش ریخته‌گری نواری خمیر بر روی سطح یکی از بدنه‌ها اعمال گردید. بدین منظور، خمیری از پودر سرامیکی و ۱۰ درصد وزنی نیترومتان تهیه شد. مجموعه قالب و تیغه بر اساس ابعاد بدنه‌های آلومینیایی از فولاد کرم‌دار طراحی و ساخته شد. قالب به گونه‌ای ساخته شد که امکان ایجاد لایه‌های میانی با ضخامت اولیه در حدود ۱۰۰ میکرومتر وجود داشته باشد. اعمال لایه میانی در گلاوباکس و تحت اتمسفر آرگون خلوص بالا انجام شد. مجموعه دو بدنه و لایه میانی در یک قالب گرافیتی با دو سمبه برای اعمال فشار دو محوره قرار داده شد [۹] و مجموعه بدنه و قالب به درون محفظه پرس‌داغ منتقل گردید. پرس‌داغ مدل KPFV-1500 بر اساس نیازهای پروژه طراحی و ساخته شد. نمای داخلی عملکرد و دستگاه پرس‌داغ در شکل ۱-الف نشان داده شده است. پرس‌داغ با دو محور اعمال فشار هیدرولیک خودکار توانایی اعمال نیرو تا ۲۰ تن در هر محور را داراست. محدوده دمای

شستشوی مخلوط در نیترومتان (CH<sub>3</sub>NO<sub>2</sub>) در سه مرحله انجام گردید. جدایش نانو ذره‌های آلانیت از محلول شستشو به روش سانتریفیوژ در ۲۰۰۰ دور بر دقیقه و به مدت ۳۰ دقیقه در ظروف دربسته پر شده از گاز آرگون انجام گردید. نانو ذره‌های هیدرید آلومینیم و آلانیت منیزیم (Mg(AIH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>) به روش آسیای مکانیکی-شیمیایی و بر اساس واکنش شیمیایی زیر انجام گردید:



و یا



واکنش ۱.

لایه میانی نانوذره‌های تولید شده بر اساس روش ریخته‌گری نواری بر بدنه‌های آلومینیایی اعمال گردید. مخلوط ۹۰٪ پودر و ۱۰٪ نیترومتان برای تهیه خمیر پودر انتخاب گردید. لایه‌های میانی به ضخامت ۵۰ میکرومتر بر سطح یکی از لایه‌ها اعمال گردید و بدنه دوم به مجموعه اضافه شد. اتصال نفوذی بدنه‌ها با اعمال همزمان فشار و دما به روش پرس داغ انجام گردید. بررسی ساختاری و فازی نمونه‌های نانوذره‌های تولیدی، مخلوط پودری حرارت داده شده و بدنه‌های اتصال نفوذی به وسیله روش بررسی فازی پراش اشعه ایکس (Philips MPD-XPERT  $\lambda\text{Cu}_{K\alpha} = 0.154\text{ nm}$ ) انجام شد. رفتار حرارتی نانوذره‌های آلانیت به روش TG-DSC استفاده از دستگاه‌های Netzsch404 و STA 1460 بررسی گردید و انرژی فعال‌سازی نمونه‌ها با سه نرخ گرمایش ۱، ۵، ۱۰ درجه سانتی‌گراد بر دقیقه و رسم منحنی کیسینجر محاسبه گردید. شیب منحنی نسبت نرخ گرمایش به مجذور دمای قله ( $C/T_p^2$ ) بر معکوس حاصل ضرب ثابت جهانی گاز در دمای قله ( $1/RT_p$ ) تعیین کننده انرژی فعال‌سازی واکنش ( $E_a$ ) بر اساس رابطه روبه‌رو است [۹].

$$\left(\frac{C}{T_p^2}\right) \propto -\frac{E_a}{RT_p}$$

اتصال نفوذی حالت جامد بدنه‌های چگال اکسید آلومینیم (آلومینا) با استفاده از نانو ذره‌های هیدریدی و آلانیت منیزیم مورد بررسی قرار گرفت. اتصال با اعمال فشار مناسب در محدوده دمایی پایین‌تر از دمای ذوب اجزا بویژه نانو ذره‌ها انجام شد. ماده اولیه‌ای از پودر بلوری

مکانیکی - شیمیایی طراحی شده بر پایه واکنش‌های دوگانه جانشینی نمکی منجر به تولید نمک لیتیم و جانشینی آلومینیم و منیزیم با لیتیم در ترکیب آلانیتی اولیه می‌گردد. شکل ۲ الگوهای پراش اشعه ایکس نمونه فرآورده فرایند آسیای مکانیکی - شیمیایی در دور آسیای ۳۰۰ دور بر دقیقه، زمان ۳ ساعت و نسبت وزنی گلوله به مخلوط پودری ۲۰ را در اتمسفر خلا - آرگون - هیدروژن و هم‌چنین همان نمونه پس از شستشوی فرآورده های جانبی و مواد اولیه باقی‌مانده احتمالی را نشان می‌دهد. مخلوط آسیا شده شامل فازهای فرآورده هایی مانند آلین  $(AlH_3)$ ، آلانیت منیزیم  $(Mg(AlH_4)_2)$ ، فرآورده‌های جانبی مانند کلرید لیتیم  $(LiCl)$ ، و مواد اولیه باقی‌مانده مانند کلرید منیزیم  $(MgCl_2)$  و کلرید آلومینیم  $(AlCl_3)$  است. حذف کامل آلانیت لیتیم  $(LiAlH_4)$  به عنوان تامین کننده هیدروژن در تولید مخلوط آلین و آلانیت به معنای پیشروی واکنش آسیای مکانیکی - شیمیایی است. مشاهده قله‌های مواد اولیه باقیمانده (کلریدهای آلومینیم و منیزیم) می‌تواند ناشی از تکمیل نشدن بعضی واکنش‌ها یا حتی تولید مجدد آنها در مخلوط پودری باشد که بعضا به ماهیت غیراستوکیومتری فرایند نسبت داده می‌شود. شدت بالای الگوهای پراش این مواد ناشی از اثر پراکندگی شدید کلر در ترکیب آن‌هاست. مقدار اندک این مواد با توجه به مشاهده تنها یک قله پراش از آن‌ها قابل نتیجه‌گیری است. مخلوط هیدرید آلومینیم و آلانیت منیزیم به همراه قله‌های با شدت بالای کلرید لیتیم تشکیل فرآورده های مورد نظر با حضور فرآورده جانبی واکنش جانشینی نمکی را تایید می‌کند. قله‌های مشخصه آلین در زاویه‌های نزدیک به ۲۷، ۳۸، ۴۰، ۵۰ و ۶۳ درجه قابل مشاهده است و قله‌های مشخصه آلانیت منیزیم در زاویه‌های نزدیک به ۲۵، ۳۲، ۳۵، ۳۶ و ۵۶ درجه دیده شد. تشکیل قله‌های با شدت بالا نشانه‌ای از حضور این فازها به عنوان فازهای اصلی با تبلور کامل است. نقش فرایند شستشو در حذف کامل مواد اولیه باقی‌مانده و فرآورده های جانبی واکنش در الگوی پراش شکل ۲ قابل مشاهده است. همان‌گونه که دیده می‌شود تمامی قله‌های مشخصه فازهای کلریدی پس از شستشو حذف گردیده و تنها نشانه‌های مخلوط هیدریدی-آلانیتی

کاری پرس‌داغ تا ۱۵۰۰ درجه سانتی‌گراد و با سرعت گرمایش تا ۳۰۰ درجه بر دقیقه از راه سامانه گرمایش القایی تامین گردید. محفظه پرس در طول تمامی آزمایش‌ها تحت خلا  $10^{-3}$  بار قرار داشت و به وسیله سامانه آب‌گرد خنک می‌شد. مجموعه قالب پس از قرارگرفتن در محدوده داغ پرس تا فشار ۲۰ مگاپاسکال فشرده گردید و سپس با سرعت گرمایش در حدود ۱۰۰ درجه سانتی‌گراد بر دقیقه تا دماهای ۳۰۰-۴۵۰ درجه سانتی‌گراد حرارت داده شد. دمای اتصال با دقتی در حد ۲ درجه سانتی‌گراد کنترل و ثابت نگه داشته شد. تغییرات ابعادی بدنه از راه ثبت جابه‌جایی سمبه‌های پرس در حین فرایند ثبت گردید. خنک کردن نمونه‌ها در اتمسفر خلا و با سرعت در حدود ۶۰ درجه سانتی‌گراد بر دقیقه انجام شد. اتصال بدنه‌ها در فشار ۲۰ مگاپاسکال و در دماهای ۳۰۰، ۳۵۰، ۴۰۰ و ۴۵۰ درجه سانتی‌گراد و به مدت ۳۰ دقیقه انجام شد. نمونه‌های اتصال پس از خارج شدن از مجموعه قالب از نظر انجام اتصال، استحکام اتصال و فرآورده های واکنش اتصال مورد بررسی قرار گرفتند. استحکام اتصال با اندازه‌گیری تنش برشی مورد نیاز برای جداکردن بدنه‌ها با استفاده از مجموعه جیگ و فیسکچر نشان داده شده در شکل ۱-ب و به وسیله دستگاه Instron5565, InstronCorp, انجام گردید. ویژگی ریزساختاری با استفاده از میکروسکوپ الکترونی روبشی در بررسی نمونه مخلوط نانوذره‌های لایه میانی (FE-SEMHitachi, 501xr) و بدنه‌های اتصال نفوذی (SEM-Philips, XL30) انجام گرفت.

## نتایج و بحث

### تولید نانوذره‌های هیدریدی

نانو ذره‌های آلانیت منیزیم تولید شده به روش آسیای مکانیکی - شیمیایی به عنوان تامین کننده مواد اصلی اتصال مورد استفاده قرار گرفتند. وارد شدن انرژی شدید در فرایند آسیای مکانیکی شیمیایی به وسیله تماس‌های پراثری بین گلوله‌ها، دیواره ظرف، و مواد اولیه با یک‌دیگر منجر به تجزیه مواد اولیه فرایند می‌گردد. این پدیده سبب تماس ذرات مواد اولیه در مقیاس اتمی با یک‌دیگر می‌شوند و زمینه تولید فرآورده ها را فراهم می‌کنند. فرایند

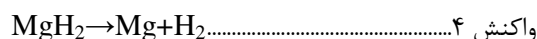
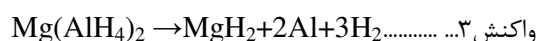
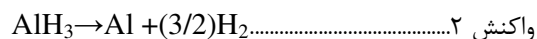
تجزیه آلین منجر به آشکار نشدن رفتار گرماگیر آلانیت در این محدوده دمایی می‌گردد. تجزیه مرحله دوم آلانیت منیزیم (واکنش ۴) با قله گرمازا در دماهای نزدیک به ۲۶۵ درجه سانتی گراد قابل مشاهده است. رفتار مشابهی در الگوهای TG مخلوط پودری مشاهده گردید. خروج تقریبی ۴/۵ مول هیدروژن در محدوده دمایی واکنش‌های ۲ و ۳ منجر به کاهش وزنی در حدود ۷/۵ درصد وزنی در مرحله نخست و در حدود ۱/۶ درصد وزنی در مرحله دوم می‌گردد. دماهای تجزیه در هر دو الگو مشابه است که نشان دهنده رفتار مخلوط پودری در واکنش‌های تجزیه است. مخلوط پودری بالا در حدود ۹/۱ درصد وزنی را در دو مرحله و با گرمایش تا دماهای حدود ۲۷۰ درجه سانتی گراد آزاد خواهد کرد. انرژی فعال‌سازی تجزیه مخلوط پودری هیدریدی - آلانیتی در حدود ۱۵۲ کیلوژول بر مول محاسبه گردید. مخلوط نانوذرهای هیدریدی - آلانیتی تحت رژیم حرارتی مشابه آنالیزهای حرارتی قرار گرفت و فرآورده‌های تجزیه از نظر ساختار بلوری بررسی گردید. الگوی پراش نمونه فوق در شکل ۲ قابل مشاهده است. فرآورده‌های گرمایش شامل مخلوطی از آلیاژ آلومینیم - منیزیم (Al(Mg)) و ترکیب بین فلزی پایه منیزیم (Mg<sub>2</sub>Al<sub>3</sub>) و بدون هرگونه اکسید مجزا یا مختلط دیده شد. تشکیل آلیاژ پایه آلومینیم با ساختار مکعبی با وجوه پرناشی از تجزیه آلین در حضور منیزیم است که با افزایش در ثابت شبکه‌ای و حجم سلول واحد نسبت به استاندارد آشکار می‌گردد. ترکیب بین‌فلزی دارای ساختار بلوری مشابه و ثابت شبکه‌ای و سلول واحد مشابه استاندارد متبلور می‌گردد که نشانه‌ای از تشکیل آن ناشی از تجزیه ترکیب آلانیت منیزیم است. اندازه بلورک فرآورده‌ها با استفاده از پهنای قله‌های XRD<sup>۱</sup> (FWHM) محاسبه و اندکی کوچک‌تر از مخلوط هیدریدی و در حدود ۱۱-۶ نانومتر مشخص گردید.

#### اتصال نفوذی بدنه‌های آلومینیایی

شکل ۴ مقدار انقباض بدنه‌ها حین فرایند اتصال نفوذی را در چهار دمای اتصال و به مدت ۳۰ دقیقه نشان

بین آلومینیم و منیزیم نمایان شده است. مشخصه‌های بلوری نانوذرهای تولیدی مانند ساختار بلوری، ثابت‌های بلوری، حجم سلول واحد و اختلاف آن‌ها با الگوی پراش استاندارد به همراه اندازه بلورک‌های محاسبه شده با استفاده از داده‌های پراش اشعه ایکس در جدول ۲ گزارش شده است. همان‌گونه که مشاهده می‌شود، آلین با ساختار رمبوهدرال و آلانیت منیزیم با ساختار تتراگونال متبلور شده‌اند. حضور اتم‌های منیزیم وارد شده به ساختار آلین منجر به افزایش ثابت‌های شبکه‌ای آن نسبت به داده‌ها استاندارد شده است که با افزایش حجم سلول واحد نیز قابل مشاهده است. تغییرات در سلول واحد آلانیت منیزیم کم‌تر و تنها در جهت عمود بر صفحات قاعده رخ می‌دهد. سلول واحد این ترکیب اندکی کوچک‌تر از استاندارد اندازه‌گیری گردید. ساختار نانوذرات با بلورک‌هایی با اندازه در حدود ۱۵ نانومتر تشکیل شده است.

ترکیب‌های هیدریدی و آلانیتی از نظر ترمودینامیکی ناپایدار هستند و در صورت تامین انرژی مورد نیاز به سرعت تجزیه می‌شوند. رفتار حرارتی مخلوط شستشو شده نقش بسیار مهمی در تامین اتم‌های مورد نیاز در لایه میانی اتصال نفوذی بدنه‌های آلومینیایی و وضعیت سطحی بدنه‌ها دارد. رفتار حرارتی مخلوط پودری در شکل ۳ نشان داده شده است. الگوی DSC مخلوط پودر تهیه شده در اتمسفر بسیار خالص آرگون با نرخ گرمایش ۱۰ درجه سانتی گراد در شکل ۳ نشان داده شده است. الگو شامل دو قله گرماگیر (Endothermic) در محدوده دمایی ۱۴۷ و ۲۶۵ درجه سانتی گراد است. این الگو نشان دهنده تجزیه گرماگیر مخلوط پودری در دو مرحله است. قله نخست مربوط به تجزیه آلین و قله دوم مربوط به تجزیه آلانیت منیزیم حین گرمایش و بر اساس واکنش‌های تجزیه زیر است:



واکنش‌های ۲ و ۳ در محدوده دمایی ۱۴۰-۱۵۰ درجه رخ می‌دهند. تجزیه آلین در این محدوده دمایی گرماگیر و تجزیه آلانیت گرمازا است. شدت و پهنای زیاد قله گرماگیر

<sup>۱</sup> - Full width at Half Maximum

شکل ۵ نشان داده شده است که بر اساس اختلاف در نیروی برشی مورد نیاز برای جدایش بدنه‌ها قابل مقایسه است. در محاسبه تنش برشی نمونه‌ها سطح اتصال یکسان و برابر با سطح اسمی تماس بدنه‌ها در نظر گرفته شد. تمامی نمونه‌ها بدون تخریب بدنه‌ها و از محل اتصال جدایش یافتند. رفتار نمونه‌ها برای ۳ نمونه در هر دما تکرار گردید و یک نمونه در شکل نمایش داده شده است. الگوی رفتار تنش برشی بر مقدار جابه‌جایی در چهار نمونه تقریباً مشابه است. با افزایش دمای اتصال تنش برشی و سطح زیر نمودار افزایش می‌یابد که نشانه افزایش انرژی مورد نیاز برای جدایش بدنه‌هاست. بیشینه تنش برشی با افزایش دما از ۳۰۰ تا ۴۵۰ درجه سانتی‌گراد به ترتیب ۱۵۱±۲، ۱۷۴±۱، ۱۸۹±۱، و ۱۹۶±۱ مگاپاسکال اندازه‌گیری شد. افزایش تنش برشی جدایش با داده‌های انقباض حین اتصال منطبق است. با افزایش یکپارچگی لایه میان تف جوشی شده با افزایش دمای اتصال، میزان فضای خالی در فصل مشترک اتصال کاهش می‌یابد که با کاهش مکان‌های کم‌انرژی به تقویت اتصال بین بدنه‌ها می‌انجامد. الگوی تفرق اشعه ایکس تهیه شده از سطح جدایش بدنه‌های آلومینایی پس از آزمون استحکام برای هر چهار نمونه در شکل ۶ نشان داده شده است. قله‌های پراش مشخصه آلومینا با شدت بالا در تمام الگوها قابل مشاهده است که ناشی از نفوذ اشعه به عمق بدنه‌هاست. افزایش دمای اتصال با تغییر در فاز تشکیل شده در بدنه همراه است. بدنه اتصال یافته در دمای ۳۰۰ درجه سانتی‌گراد نشانه‌هایی از آلومینیم باقی‌مانده ناشی از تجزیه آلین موجود در مخلوط هیدریدی بین لایه‌ای را در خود دارند. باقی ماندن آلومینیم اتمی در لایه میانی نشان دهنده عدم شرکت آن در واکنش‌های احتمالی با سطح خارجی بدنه‌ها و حتی سایر فرآورده‌های تجزیه لایه میانی است. منیزیم آزاد شده در حین گرمایش با اکسیژن احتمالی در محیط یا اکسیژن اشتراکی بدنه‌ها واکنش کرده و ترکیب اکسید منیزیم (MgO) را ایجاد نموده است. فرآورده دیگر اتصال نفوذی اکسیدی مختلط و غیراستوکیومتری از آلومینا و منیزیا با ترکیب شیمیایی  $Mg_{0.388}Al_{2.41}O_4$  است که با دارا بودن ساختار مکعبی با وجوه‌پر و ثابت شبکه‌ای در حدود  $7/91 \pm 0/01$  آنگسترم، ترکیبی نزدیک و ناقص از

می‌دهد. رفتار نامنظم برخی نقاط در شکل ناشی از دقت سنسور اندازه‌گیری موقعیت سمبه‌ها و لرزش‌های دستگاه حین انجام آزمایش است. سازوکار غالب در فرایند اتصال نفوذی بدنه‌ها با لایه میانی نانوذره‌ای بر اساس تفجوشی لایه میانی و ایجاد پیوند با لایه‌های خارجی بدنه‌هاست. بر اساس رفتار حرارتی نانوذره‌های لایه میانی، تجزیه مخلوط پودری در دو مرحله انجام شده و نانوذره‌های آلیاژی پایه آلومینیم و بین فلزی آلومینیم-منیزیم به صورت مولکول‌های آزاد و بسیار فعال ایجاد می‌گردد. با توجه به تهیه این نانوذره‌ها به صورت درجا، سطوح آن‌ها فاقد هر گونه لایه اکسیدی خواهد بود. فعال بودن نانوذره‌ها و تمایل شدید نانوذره‌های فلزی به تشکیل پیوند و تفجوشی به فرایند اتصال نفوذی کمک می‌کند. نقش دمای تفجوشی بر مقدار انقباض مجموعه بدنه‌ها و لایه میانی در شکل ۴ قابل مشاهده است. در محدوده دمایی مورد نظر بدنه‌های آلومینایی کاملاً صلب هستند و اختلاف ابعادی مجموعه ناشی از تفجوشی نانوذره‌های فلزی تولید شده به صورت درجا در حین گرمایش است. میزان انقباض نهایی در چهار دمای ۳۰۰، ۳۵۰، ۴۰۰ و ۴۵۰ درجه سانتی‌گراد به ترتیب ۱، ۲، ۶، و ۷ میکرون اندازه‌گیری گردید. افزایش میزان انقباض با افزایش میل به تف جوشی با افزایش دمای اتصال قابل توجه است. افزایش شیب انقباض در هر چهار الگو در میانه ابتدایی زمان اتصال (۵-۱۵ دقیقه) دیده می‌شود. با توجه به نرخ گرمایش شدید نمونه‌ها، تجزیه نانوذره‌ها در دماهای بالاتر و زمان‌های طولانی‌تر نسبت به انتظار بر اساس الگوهای DSC اتفاق خواهد افتاد. شیب انقباض پس از این بازه زمانی تقریباً ثابت است. بر این اساس می‌توان نتیجه گرفت که تجزیه نانوذرات و تف جوشی اصلی لایه میانی در هر چهار برنامه گرمایش در دقایق اولیه اتصال انجام می‌شود و حد نهایی انقباض تنها با پرسیدن بیش‌تر حفره‌ها با دمای اتصال کنترل می‌گردد. جدول ۳ وضعیت اتصال بدنه‌ها در چهار شرایط اتصال را نشان می‌دهد. همان‌گونه که مشاهده می‌شود، اتصال در هر چهار دمای مورد نظر انجام گرفته است. وضعیت اتصال بر اساس مقاومت اتصال در حین خارج شدن از قالب و جدا نشدن بدنه‌ها تعیین گردید. قدرت اتصال‌های ایجاد شده در شرایط دمایی متفاوت در

عنصری در دو نقطه نمونه اتصال در دمای ۴۵۰ درجه سانتی گراد در شکل ۷ نشان داده شده است. همان گونه که مشاهده می شود، نمونه فاقد حفره در فصل مشترک لایه میانی و سطح خارجی بدنه آلومینیایی است که نشانه‌ای از اتصال مناسب با استفاده از لایه میانی مخلوط هیدریدی است. بررسی عنصری در دو نقطه نشان دهنده توزیع یکنواخت منیزیم در کل لایه میانی است که با تشکیل فاز اکسید مختلط در امتداد لایه میانی همراه بوده است. نقاط و رگه‌های تیره‌تر در امتداد لایه میانی مکان‌هایی با اندکی غنای بیش‌تر از منیزیم هستند.

### نتیجه گیری

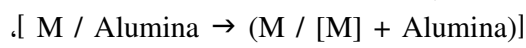
در این پژوهش امکان ایجاد اتصال نفوذی حالت جامد بدنه‌های آلومینا-آلومینا با استفاده از نانوذره‌های مخلوط هیدریدی به عنوان لایه میانی مورد بررسی قرار گرفت. بدنه‌های صلب آلومینا به روش تف جوشی بدون فشار در دمای ۱۶۵۰ درجه سانتی‌گراد تولید شد. مخلوط هیدریدی شامل آلین (هیدرید آلومینیم) و آلانیت منیزیم با استفاده از مواد اولیه کلریدی و روش آسیای مکانیکی-شیمیایی تولید گردید. عملیات اتصال با اعمال همزمان فشار و دما در پرس داغ القایی طراحی و ساخته شده و در چهار دمای ۳۰۰، ۳۵۰، ۴۰۰، و ۴۵۰ درجه سانتی گراد با فشار ۲۰ مگاپاسکال به مدت ۳۰ دقیقه انجام گردید. با وارد شدن مخلوط هیدریدی در لایه میانی و گرمایش، نانوذره‌های هیدریدی به صورت کنترل شده و درجا به نانوذره‌های آلیاژی آلومینیم و بین‌فلزی آلومینیم-منیزیم بدون لایه اکسیدی سطحی تجزیه می‌گردد. تشکیل ترکیب‌های اکسید مختلط (اسپینل) با استوکیومتری متفاوت استحکام پیوندی تا ۱۹۶ مگاپاسکال را ایجاد می‌کند.

### سپاسگزاری

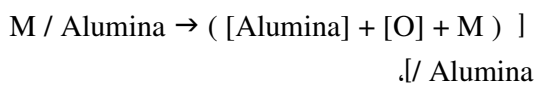
نویسندگان این مقاله از حمایت‌های ستاد فناوری نانو در انجام این پژوهش قدردانی می‌نمایند.

اسپینل آلومینا-منیزیا به شمار می‌آید. با افزایش دمای اتصال با ۳۵۰ درجه سانتی گراد الگوهای پراش منیزیا حذف گردید که به معنای شرکت آن‌ها در واکنش‌های لایه میانی است. ترکیب شیمیایی اکسید مختلط بین لایه‌ای تشکیل شده نیز به  $(Mg_{0.4}Al_{0.6})Al_{1.8}O_4$  تغییر یافته است. کاهش مواد اولیه بین لایه‌ای و تشکیل اکسید مختلط با ساختار پیچیده‌تر با افزایش نسبی در استحکام اتصال همراه بوده است. فرآورده‌های اتصال نفوذی در لایه میانی با تشکیل اکسید مختلط اسپینل ( $MgAl_2O_4$ ) در دمای ۴۰۰ درجه سانتی‌گراد همراه بود. تشکیل این اکسید و حذف کامل آلومینیم آزاد در دمای اتصال ۴۵۰ درجه سانتی گراد منجر به افزایش بیش‌تر استحکام در لایه میانی گردید. در جریان اتصال نفوذی، آلومینیم و منیزیم (با ترکیبات آلیاژی (M)) آن‌ها در کنار آلومینا واکنش‌های متفاوتی را به همراه خواهند داشت که با آزاد کردن نانوذرات فلزی/آلیاژی و حلالیت همراه خواهد بود. برخی از این واکنش‌ها به شرح زیر هستند:

حلالیت اتم فلزی در اکسید:



تجزیه اکسید و حلالیت Al و O در لایه میانی:



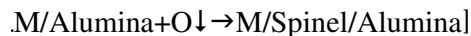
احیا آلومینا به وسیله لایه میانی و تشکیل محلول Al در فلز و اکسید لایه میانی:



تشکیل ترکیب بین‌فلزی و بازیابی اکسیژن:



و واکنش با اکسیژن محیطی و تشکیل اکسیدهای مختلط بین‌فلزی:



این واکنش‌ها گروهی از واکنش‌های محتمل هستند که می‌توانند در این سامانه انجام شوند که با فرآورده‌های مشاهده شده در الگوهای پراش منطبق هستند. فرآورده نهایی اتصال اسپینل آلومینا-منیزیا با ساختار مکعبی با وجوه‌پر و ثابت شبکه‌ای در حدود  $8/12 \pm 0/1$  آنگسترم است. تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی و آنالیز

### References

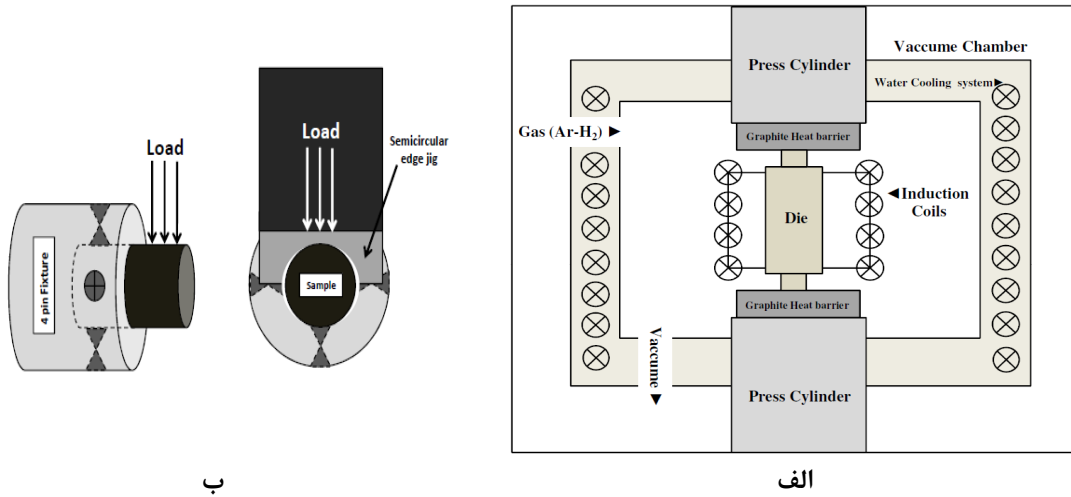
- 1- M. Turwitt, "Bending Test for Active Brazed Metal/Ceramic Joints—A Round Robin", Ceramic Forum International, vol.71, pp. 406–10, 1994.
- 2-S. Fujitsu, S. Ono, H. Nomura, M. Komatsu, K. Yamagiwa, E. Saiz, and A.P. Tomsia, "Joining of single-crystal sapphire to alumina using silicate glasses", Journal of Ceramics Society Japan, vol. 111, pp. 448–451, 2003.
- 3-L. Esposito, and A. Bellosi, "Ceramic Oxide Bonds Using Calcium Aluminosilicate Glasses", Journal of Materials and Science, vol. 40, pp. 2493–2498, 2005.
- 4-T. Ohji, "Microstructural Design and Mechanical Properties of Porous Silicon Nitride Ceramics", Materials Science Engineering, vol.A 498, pp.5–11, 2008.
- 5-J.A. Fernie, R.A.L. Drew, and K.M. Knowles, "Joining of Engineering Ceramics", International Materials Review, vol. 54, pp. 283–331, 2009.
- 6-H. Byman-Fagerholm, P. Mikkola, J. B. Rosenholm, E. Liden, and R. Carlsson, "The Influence of Lignosulphonate on the Properties of Single and Mixed  $\text{Si}_3\text{N}_4$  and  $\text{ZrO}_2$  Suspensions," Journal of European Ceramics Society, vol.19, pp.41–48, 1999.
- 7- X. H. Wang and Y. Cc Zhou, "Stability and Dissociation of Nano-Laminate  $\text{Ti}_3\text{AlC}_2$  Induced by Selective Oxidation Upon Heating in Argon", Chemical Materials, vol.15, pp. 3716–3720, 2003.
- 8-R.Bermejo, and Y.Torres, "Residual Stresses, Strength and Toughness of Laminates with Different Layer Thickness Ratios", ActaMateriala, vol. 54(18), pp. 4745–57, 2006.
- ۹- اربعی زاده، اعطایی و هادیان، "تاثیر روش تولید نانوکامپوزیت آلومینا/دی بوراید تیتانیوم بر رفتار تفجوشی و خواص قطعه تولید شده"، مجله مواد نوین، جلد ۳، شماره ۳، ص ۳۱–۱۶، بهار ۱۳۹۲.

### پیوست ها

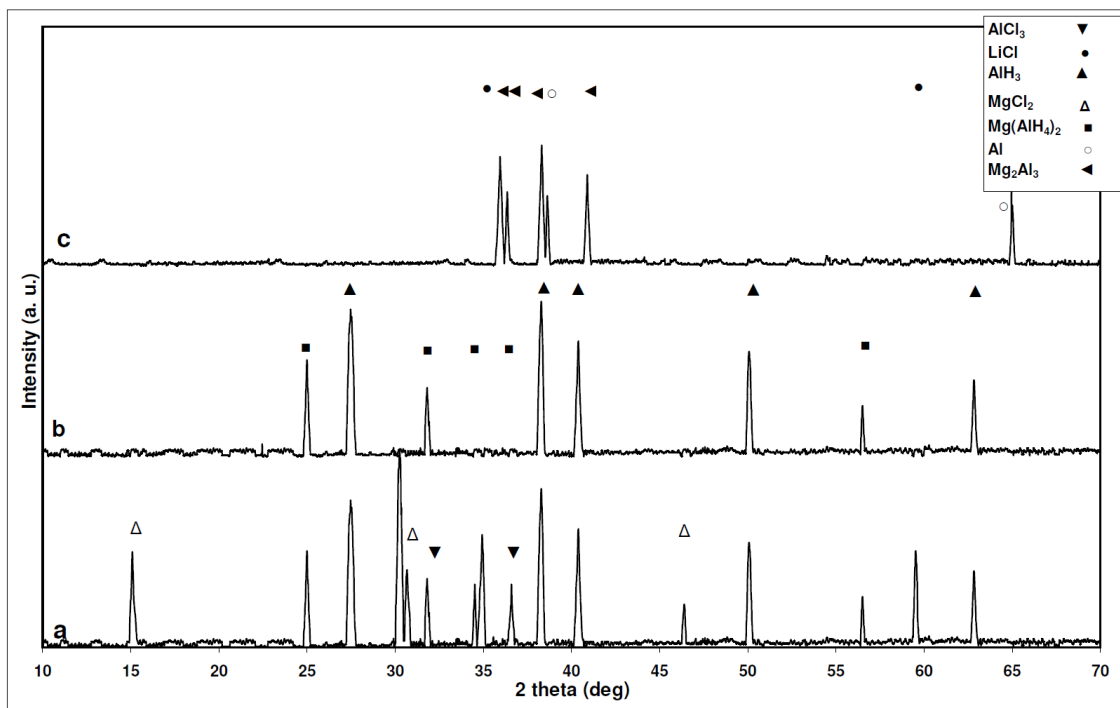
جدول ۱- ویژگی‌های فیزیکی و مکانیکی بدنه‌های آلومینایی

ویژگی	استاندارد	مقدار (واحد)
چگالی	ASTM C0373	۳/۹۶ (گرم بر سانتیمتر مکعب)
استحکام کششی	ASTM C1273	۳۸۴+۵ (مگاپاسکال)
استحکام فشاری	ASTM C1424	۲۷۳۰+۷ (مگاپاسکال)
ضریب یانگ	ASTM C1273	۳۶۴+۴ (گیگا پاسکال)
ضریب شکست	ASTMC 1161	۵۹۰-۶۲۰ (مگاپاسکال)
سختی	ASTM C1327	۲۱۰۰ (ویکرز)





شکل ۱- الف) سامانه و نمای داخلی پرس داغ ساخته شده و ب) ساز و کار اندازه‌گیری اتصال بدنه‌ها.

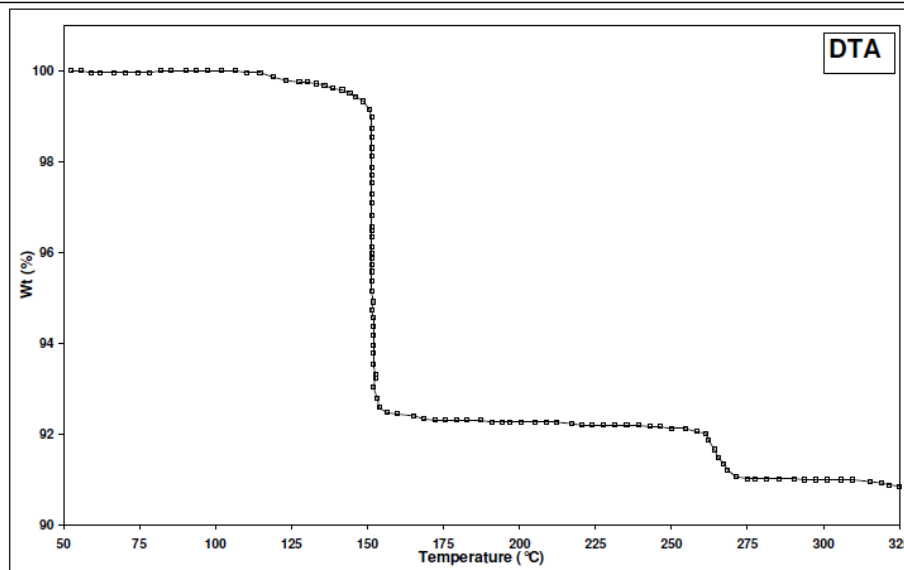
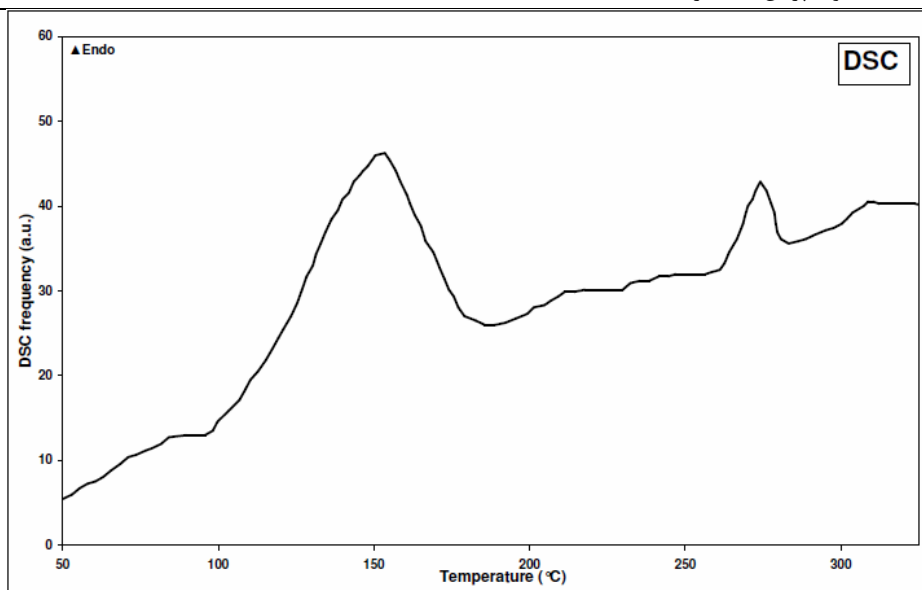


شکل ۲- الگوی پراش اشعه ایکس نمونه‌های آلیاژ آلومینیوم-سیلیکون: (a) پس از آسیا، (b) پس از شستشو، و (c) پس از گرمایش.

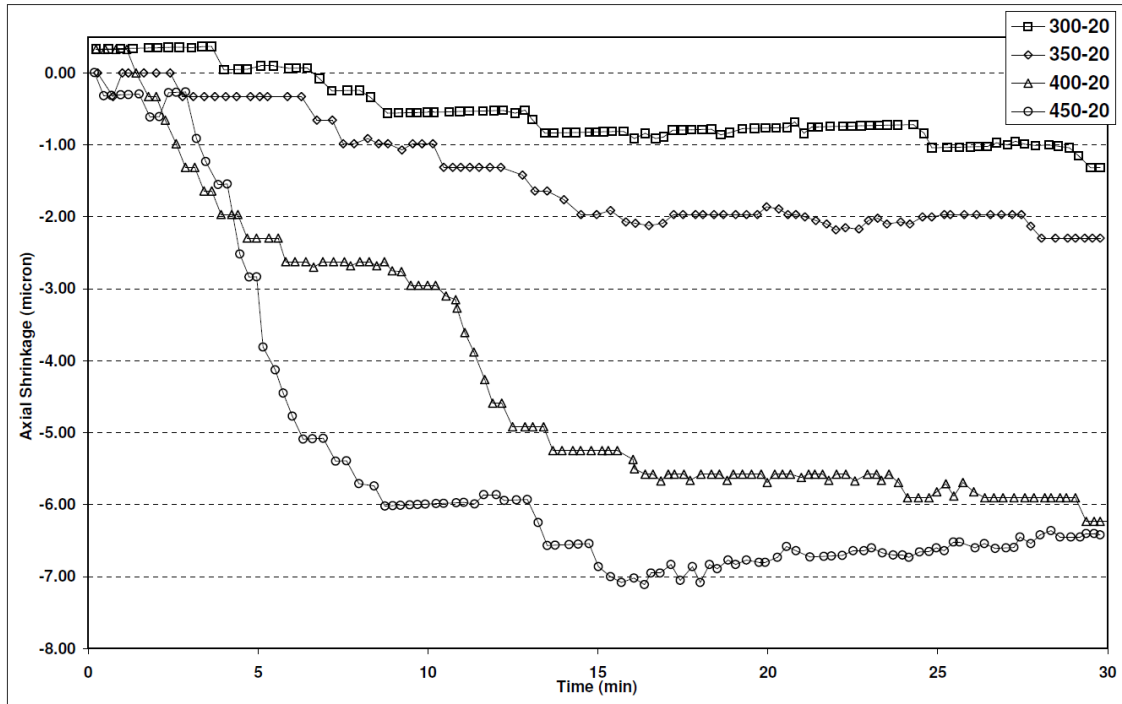
جدول ۲- سامانه بلوری، ثابت شبکه، حجم سلول واحد، تغییرات پارمتر و حجم شبکه و اندازه بلورک.

فاز	ساختار بلوری	ثابت شبکه (Å) ±0.001	$\Delta\alpha/a_0$ (%) $\Delta c/c_0$ (%)*	حجم شبکه (Å <sup>3</sup> ) ±0.0001	$\Delta v/v_0$ (%)*	اندازه بلورک (nm)
AlH <sub>3</sub>	Rhombohedral	a=b=4.473 c=11.828	0.54 0.21	204.9401	1.30	15
Mg(AlH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>	Trigonal	a=b=5.193 c=5.861	-0.12 0.05	136.8757	-0.18	13
Al	FCC	a= 4.13	2	70.45	0.06	6
Mg <sub>2</sub> Al <sub>3</sub>	FCC	a= 28.25	0.07	22545	0.002	11

\* مقایسه با اطلاعات الگوی پراش استاندارد.



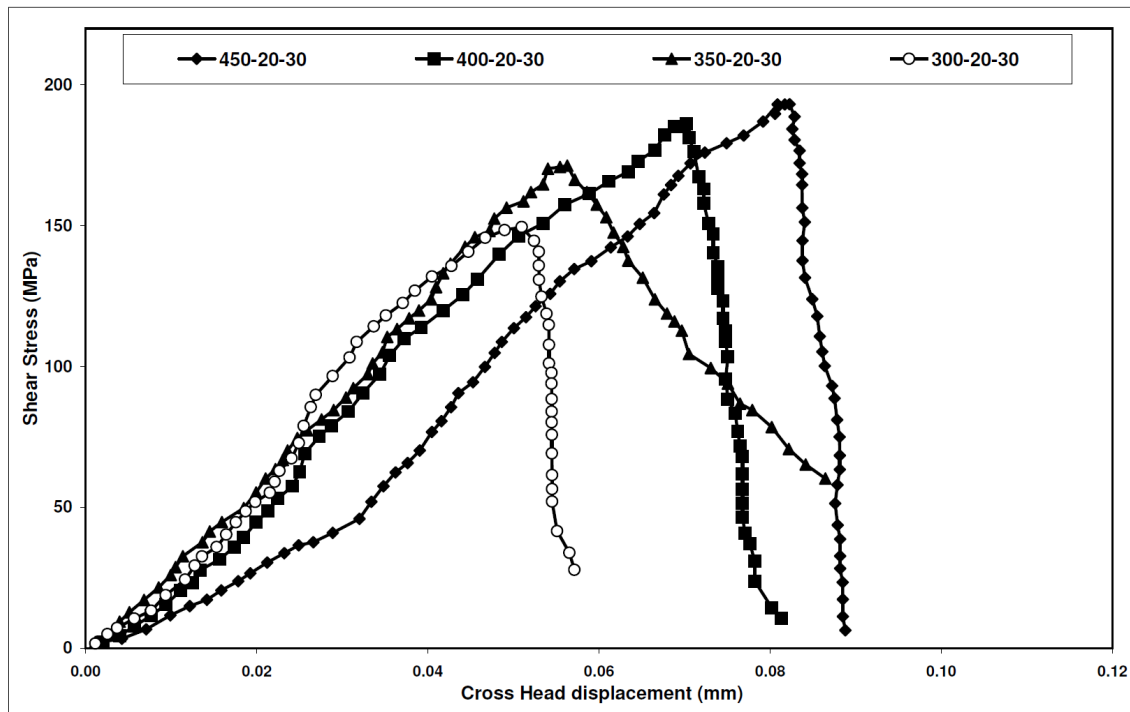
شکل ۳- رفتار حرارتی نانوذره‌های مخلوط هیدریدی - آلانیتی.



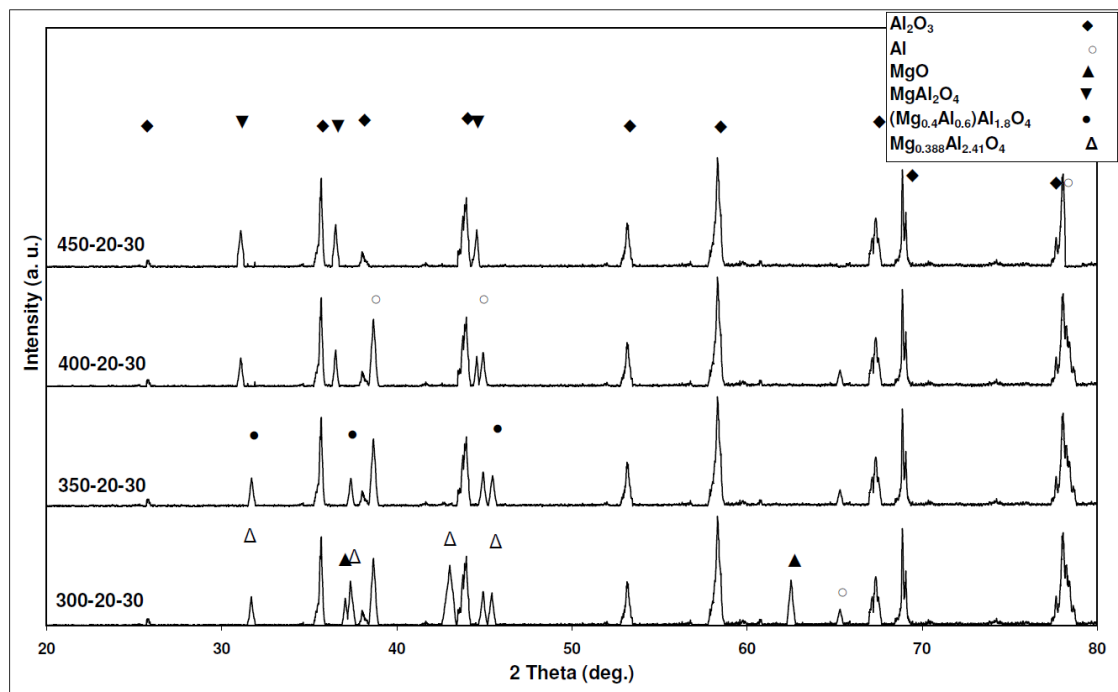
شکل ۴- رفتار انقباض لایه میانی حین اتصال نفوذی.

جدول ۳- وضعیت نمونه‌های اتصال نفوذی بدنه‌های آلومینیایی.

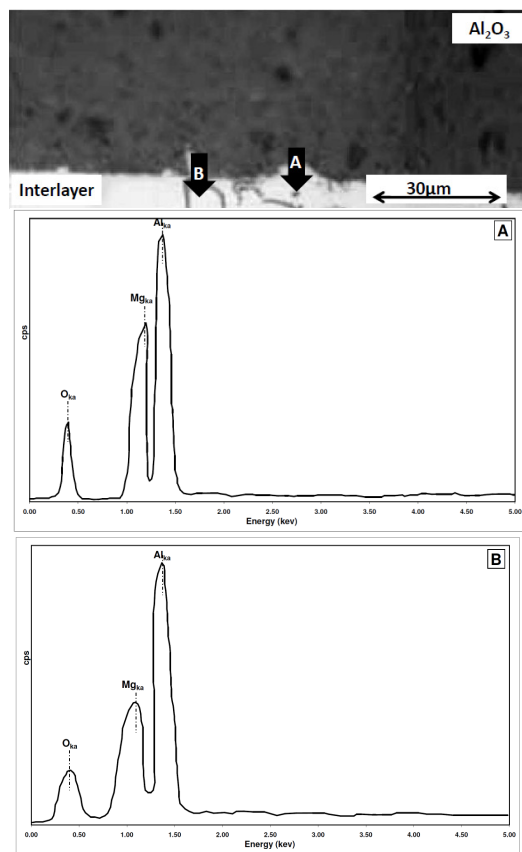
وضعیت اتصال	زمان (min)	فشار (Mpa)	دما (°C)	نمونه
✓	30	20	300	300-20-30
✓	30	20	350	350-20-30
✓	30	20	400	400-20-30
✓	30	20	450	450-20-30



شکل ۵- استحکام برشی نمونه‌های اتصال نفوذی. مگا پاسکال کنار تصحیح شود و نمودارهایی که با دایره مشخص شده اند



شکل ۶- الگوی پراش اشعه ایکس نمونه‌های اتصال نفوذی.



شکل ۷- تصویر میکروسکوپ الکترونی و EDS فصل مشترک در دو نقطه .

