J. Adv. Mater. Eng., 2025;44(2)67-78. https://doi.org/10.47176/jame.44.2.1096

Journal of Advanced Materials in Engineering

Journal homepage: https://jame.iut.ac.ir/?lang=en

ISSN: 2251-600X EISSN: 2423-5733

Research Article

Investigation of Positron Annihilation Lifetime Spectroscopy and Tensile Behavior of Graphene Oxide/Epoxy Nanocomposites

Mohammad Koohkan[1], Ali Akbar Mehmandoost-Khajeh-Dad[1] and Hamed Khosravi[2*]

1- Department of Physics, University of Sistan and Baluchestan, Zahedan, Iran
2- Department of Materials Engineering, Faculty of Engineering, University of Sistan and Baluchestan, Zahedan, Iran
* Corresponding author, Email: hkhosravi@eng.usb.ac.ir

(Received: 23 November 2024; Revised: 1 January 2025; Accepted: 25 January 2025; Available online: 5 March 2025)

ABSTRACT

Introduction and Objectives: Positron Annihilation Lifetime Spectroscopy is a sensitive method for investigating the free volume in polymers at the atomic scale, enabling the determination of pore size, shape, and concentration. It is widely used as a complementary identification tool alongside other macroscopic experimental techniques. In this study, for the first time, PALS was employed to examine the free volume in epoxy/graphene oxide nanocomposites and its correlation with the tensile behavior of the samples.

Materials and Methods: In this research, Epoxy-based samples containing different weight percentages of graphene oxide (0.1, 0.3, 0.5, and 0.7 wt.%) were analyzed using PALS. A Na^{22} radioisotope with an activity of ~5 µCi was used as the positron source, and fast plastic scintillation detectors with a time resolution of 225 picoseconds were employed. Uniaxial tensile tests were also conducted.

Results: The results showed that the lowest free pore volume (i.e. 83.87 A^3) was related to the sample containing 0.3 wt.% graphene oxide, indicating a decrease of ~ 8% in the free pore volume in this sample compared to the pure epoxy one (i.e. 90.97 A^3). The best tensile behavior was obtained for the sample containing 0.3 wt. % graphene oxide (i.e. 51.1 MPa), which revealed an 18 % increase in the tensile strength compared to the pure epoxy sample (i.e. 43.3 MPa).

Conclusion: In general, the results of the positron annihilation lifetime spectroscopy and tensile strength measurements of the epoxy/graphene oxide nanocomposites showed that there was an inverse relationship between the free pore volume and tensile strength.

Keywords: Positron annihilation lifetime Spectroscopy, Nanocomposite, Epoxy, Graphene oxide, Tensile strength.

How to Cite: Koohkan M, Mehmandoost-Khajeh-Dad AA, Khosravi H. Investigation of positron annihilation lifetime spectroscopy and tensile behavior of graphene oxide/epoxy nanocomposites. J Adv Mater Eng. 2025;44(2):67–78. https://doi.org/10.47176/jame.44.2.1096

Copyright © 2025 Isfahan University of Technology, Published by IUT press.

This work is licensed under a Creative Commons Attribution-Noncommercial 4.0 International license (https://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/). Non-commercial uses of the work are permitted, provided the original work is properly cited.

مواد پیشرفته در مهندسی ۱۴۰۴؛۴۴(۲):۷۸-۶۷. https://doi.org/10.47176/jame.44.2.1096

مواد پیشرفته در مهندسی

صفحه خانگی فصلنامه: https://jame.iut.ac.ir/

شاپا: ۶۰۰X-۲۲۵۱ شاپا الکترونیکی: ۵۷۳۳-۲۴۲۳

مقاله پژوهشی

بررسی طیف‌سنجی طول عمر نابودی پوزیترون و رفتار کششی نانوکامپوزیت‌های اپوکسی/نانواکسیدگرافن

محمد کوهکن[۱]، علی اکبر مهماندوست خواجه‌داد[۱] و حامد خسروی[۲*]

۱- گروه فیزیک، دانشکده علوم پایه، دانشگاه سیستان و بلوچستان، زاهدان

۲- گروه مهندسی مواد، دانشکده مهندسی شهید نیکبخت، دانشگاه سیستان و بلوچستان، زاهدان

*** نویسنده مسئول، پست الکترونیکی: hkhosravi@eng.usb.ac.ir**

(دریافت: ۱۴۰۳/۹/۳، بازنگری: ۱۴۰۳/۱۰/۱۲، پذیرش: ۱۴۰۳/۱۱/۶، انتشار: ۱۴۰۳/۱۲/۱۵)

چکیده

مقدمه و اهداف: طیف‌سنجی طول عمر نابودی پوزیترون روشی حساس برای بررسی حجم آزاد پلیمرها در مقیاس اتمی است و امکان تعیین اندازه، شکل و غلظت حفرات را فراهم می‌کند. این روش به‌عنوان ابزاری مکمل در کنار سایر روش‌های تجربی ماکروسکوپی استفاده می‌شود. در این پژوهش، برای نخستین‌بار طیف‌سنجی نابودی پوزیترون جهت بررسی حجم حفرات آزاد در نانوکامپوزیت‌های اپوکسی/نانواکسید گرافن و ارتباط آن با رفتار کششی نمونه‌ها به‌کار گرفته شد.

مواد و روش‌ها: در این پژوهش، نمونه‌های اپوکسی حاوی نانواکسید گرافن در درصدهای وزنی مختلف (۰/۱، ۰/۳، ۰/۵ و ۰/۷) با طیف‌سنجی نابودی پوزیترون بررسی شدند. چشمه پرتوزا ^{22}Na با فعالیت ۵ µCi و آشکارسازهای سوسوزن پلاستیکی سریع با قدرت تفکیک زمانی ۲۲۵ پیکوثانیه به‌کار رفت. همچنین آزمون کشش تک‌محوری انجام شد.

یافته‌ها: نتایج نشان داد که کم‌ترین میزان حجم حفرات آزاد (۸۳/۸۷ A^3) مربوط به نمونه حاوی ۰/۳ درصد وزنی نانواکسید گرافن است که کاهش حدود هشت درصدی حجم حفرات آزاد در این نمونه در مقایسه با نمونه اپوکسی خالص (۹۰/۹۷ A^3) را نشان می‌دهد. بالاترین استحکام کششی مربوط به نمونه حاوی ۰/۳ درصد وزنی نانواکسیدگرافن با مقدار ۵۱/۱ مگاپاسکال بود که افزایش ۱۸ درصدی استحکام کششی در این نمونه در مقایسه با نمونه اپوکسی خالص (۴۳/۳ مگاپاسکال) مشاهده شد.

نتیجه‌گیری: به طور کلی، نتایج حاصل از طیف‌سنجی طول عمر نابودی پوزیترون و اندازه‌گیری استحکام کششی نمونه‌های نانوکامپوزیتی اپوکسی/نانواکسید گرافن نشان داد که ارتباط معکوسی بین حجم حفرات آزاد و استحکام کششی وجود دارد.

واژه‌های کلیدی: طیف‌سنجی طول عمر نابودی پوزیترون، نانوکامپوزیت، اپوکسی، نانواکسید گرافن، استحکام کششی.

حق انتشار این مستند، متعلق به دانشگاه صنعتی اصفهان است. ۱۴۰۴ ©.

این مقاله تحت گواهی زیر منتشر شده و هر نوع استفاده غیرتجاری از آن مشروط بر استناد صحیح به مقاله و با رعایت شرایط مندرج در آدرس زیر مجاز است:

Creative Commons Attribution-Noncommercial 4.0 International license (https://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/).

۱- مقدمه

نانوکامپوزیت‌ها[1]، دسته‌ای پرکاربردی از مواد به‌شمار می‌روند که معمولاً حاوی یک یا چند جز با ابعاد کمتر از ۱۰۰ نانومتر هستند. نانوکامپوزیت‌ها از دو فاز تشکیل می‌شوند که فاز اول در واقع زمینه محسوب می‌شود و می‌تواند از جنس پلیمر، فلز و یا سرامیک باشد. فاز دوم نیز ذراتی در مقیاس نانومتر هستند که به‌عنوان تقویت‌کننده، به‌منظور اهداف خاصی از قبیل استحکام، سفتی، هدایت الکتریکی، خواص مغناطیسی و غیره در زمینه توزیع می‌شوند (۱).

نانوگرافن[2]، به دلیل برخورداری از خواص بسیار مطلوب، از مهم‌ترین نانوساختارهای مورد استفاده در کامپوزیت‌ها است. گرافن یک لایه دوبعدی (2D) با ضخامت یک اتم از شبکه کربنی sp^2 است که به علت خواص ویژه آن شامل نسبت ابعادی و مساحت سطحی بالا، در کنار مدول بسیار بالا و خواص الکتریکی و حرارتی منحصربه‌فرد، در تحقیقات بنیادی و کاربردی بسیار مورد توجه قرار گرفته است (۲). مدول یانگ و استحکام کششی گرافن به‌ترتیب حدود ۱/۱ TPa و ۱۳۰ GPa است. اکسید گرافن نوع خاصی از ساختارهای گرافنی به‌شمار می‌رود که دارای گروه‌های عاملی اکسیژن شامل اپوکسید، هیدروکسیل، کربوکسیل و کربونیل هستند و به‌طور گسترده در ساخت نانوکامپوزیت‌ها مورد استفاده قرار می‌گیرند. یکی از چالش‌های پیش روی ساخت این دسته از کامپوزیت‌ها، دشواری توزیع یکنواخت نانوذرات در زمینه می‌باشد که دست‌یابی به خواص مطلوب، نظیر استحکام بالا را مشکل می‌سازد (۳ و ۴).

نتایج تحقیقات مختلف نشان می‌دهد که خواص مکانیکی نانوکامپوزیت‌ها را می‌توان از طریق افزودن نانوگرافن بهبود داد (۷-۵). اما با این وجود، میزان بهبود بسته به ریزساختار گرافن و برهمکنش آن با زمینه می‌تواند متفاوت باشد. وانگ و همکاران (۸)، نشان دادند که بهبود ۴۰ درصدی استحکام کششی و ۹۵ درصدی مدول یانگ را می‌توان از طریق افزودن سه درصد وزنی اکسید گرافن اصلاح شده در زمینه پلی‌آمید به‌دست آورد. ون و همکاران (۹)، نشان دادند که خواص خمشی و کششی در کنار پایداری حرارتی و چقرمگی شکست زمینه اپوکسی در حضور اکسید گرافن اصلاح شده با ترکیب سیلانی، بهبود قابل ملاحظه‌ای از خود نشان می‌دهند. جمالی و همکاران (۱۰)، نشان دادند رفتار سایشی زمینه‌های اپوکسی با افزودن نانواکسید گرافن بهبود قابل توجهی از خود نشان می‌دهد. در این تحقیق، ۰/۳ درصد وزنی نانوگرافن به‌عنوان درصد مطلوب افزودن جهت بهبود رفتار سایشی گزارش شده است.

طیف‌سنجی طول عمر نابودی پوزیترون[3]، روشی شناخته‌شده برای اندازه‌گیری اندازه، ساختار و غلظت جاهای خالی در مواد مختلف از قبیل آلیاژها، نیمه‌هادی‌ها، سرامیک‌ها و پلیمرها با حساسیتی بهتر از ppm ۱ به شمار می‌رود. این روش می‌تواند حجم آزاد، نقص‌ها و حفره‌هایی با ابعادی از مرتبه ۰/۱ تا چند ده نانومتر را تشخیص دهد (۱۴-۱۱).

در روش طیف‌سنجی طول عمر نابودی پوزیترون، پوزیترون‌های ساطع شده از یک ایزوتوپ پرتوزا وارد نمونه مورد مطالعه شده و در زمانی از مرتبه چند پیکوثانیه، بخش زیادی از انرژی جنبشی خود را از دست داده و حرارتی می‌شوند. پوزیترون حرارتی می‌تواند مستقیماً با یک الکترون اتمی نابود شود. ماحصل نابودی پوزیترون با یک الکترون اتمی، با احتمال بالا، خلق دو پرتو گاما است. خلق تعداد بیشتر پرتو گاما، احتمالی نزدیک به صفر دارد. به‌علاوه، احتمال جفت‌شدن پوزیترون حرارتی با یک الکترون اتمی و تشکیل ساختاری موسوم به پوزیترونیوم نیز وجود دارد که گاهی آن را اتم پوزیترونیوم نیز می‌خوانند. احتمال تشکیل پوزیترونیوم شدیداً به ساختار محیط میزبان وابسته است. شکل‌گیری پوزیترونیوم در موادی مثل پلیمرها که ساختار نسبتاً بازی دارند محتمل‌تر است. پوزیترونیوم به دو حالت تشکیل می‌شود. حالت یکتایه با اسپین کل صفر، پاراپوزیترونیوم و حالت سه تایه با اسپین کل یک، اورتوپوزیترونیوم نام دارند. در غیاب تبدیلات اورتو-پارا، ۲۵ درصد از اتم‌های پوزیترونیوم در حالت یکتایه و ۷۵ درصد در حالت سه تایه تشکیل می‌شوند. طول عمر پاراپوزیترونیوم در

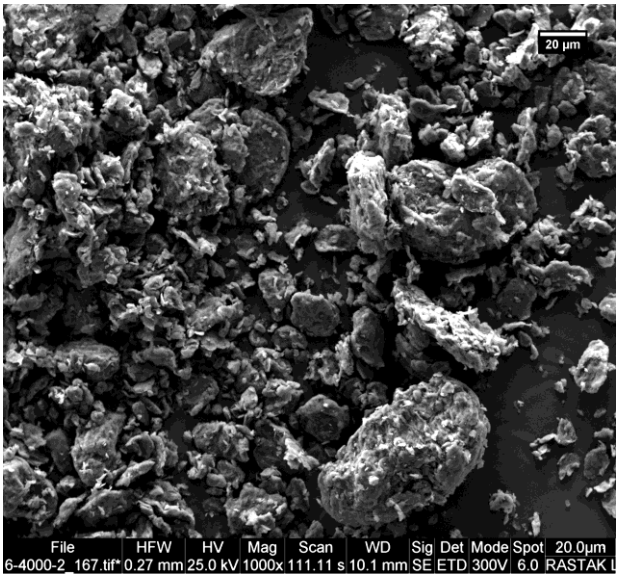
حالت نابودی خودبه‌خودی و تبدیل شدن به دو پرتو گاما، ۱۲۵ پیکوثانیه است که در حدود طول عمر پوزیترون آزاد در بطن مادهِ چگال است. نابودی دوگامایی برای اورتوپوزیترونیوم در خلأ ممنوع است، بنابراین با طول عمری حدود ۱۴۲ نانوثانیه به سه گاما واپاشی می‌کند. اورتوپوزیترونیوم درون ماده سرنوشت متفاوتی پیدا می‌کند و با احتمال بالا، طی سازوکاری به نام برچینش، با نیمه عمری بیش از یک نانوثانیه به دو گاما وامی‌پاشد.

کونسولاتی و همکاران (۱۵)، قابلیت استفاده از روش طیف‌سنجی طول عمر نابودی پوزیترون جهت اندازه‌گیری حجم آزاد در پلیمرها را نشان داده‌اند. تحقیقات زیادی نشان می‌دهد که برهمکنش سطحی بین مولکول‌های زمینه پلیمر و نانوپرکننده‌ها، مهم‌ترین عامل در ایجاد خواص ماکروسکوپی بهینه یک نانوکامپوزیت است. شارما و پوجارا (۱۶)، روش طیف‌سنجی طول عمر نابودی پوزیترون و مدل‌های لازم برای محاسبات اندازه، چگالی و توزیع اندازه حفره‌های حجم آزاد در نانوکامپوزیت‌های پلیمری را مرور کرده‌اند. بیگانه و همکاران (۱۷)، طیف‌سنجی طول عمر نابودی پوزیترون و پهن‌شدگی دوپلری گاماهای نابودی را جهت تعیین حجم آزاد چهار پلیمر با ساختار الکترونی مشابه، ولی از سه گروه پلیمری متفاوتِ C-H، C=O و C-F، به‌کار گرفته و وجود حفراتی با شعاع سه نانومتر در این پلیمرها را گزارش کرده اند. شیرازی نیا و همکاران (۱۸)، چهار نوع کامپوزیت پرکاربرد دندانپزشکی را به مدت ۲۰ و ۴۰ ثانیه تحت تابش نور فرابنفش قرار داده و نشان دادند که حجم آزاد شکل گرفته در نمونه‌ها، به مدت زمان تابش‌دهی بستگی دارد.

مطابق بررسی‌های انجام شده، تاکنون گزارش جامعی در ارتباط با طیف‌سنجی نابودی پوزیترون در نانوکامپوزیت‌های اپوکسی/ نانواکسید گرافن و ارتباط آن با رفتار کششی نمونه‌ها یافت نشد؛ بنابراین، در تحقیق حاضر، این روش طیف‌سنجی برای مطالعه حجم حفرات آزاد در نمونه‌های نانوکامپوزیتی اپوکسی/ نانواکسید گرافن حاوی درصدهای وزنی مختلفی از تقویت‌کننده به کار گرفته شد. همچنین با اندازه‌گیری استحکام کششی نمونه‌ها، ارتباط بین حجم آزاد حفره‌ها و استحکام کششی نمونه‌ها گزارش شد.

جدول ۱- مشخصه‌های نانواکسید گرافن

قطر (میکرومتر)	ضخامت (نانومتر)	تعداد لایه‌ها	سطح ویژه (مترمربع بر گرم)	درصد خلوص
۱۰-۵۰	۳/۴ -۷	۶-۱۰	۱۰۰-۳۰۰	۹۹

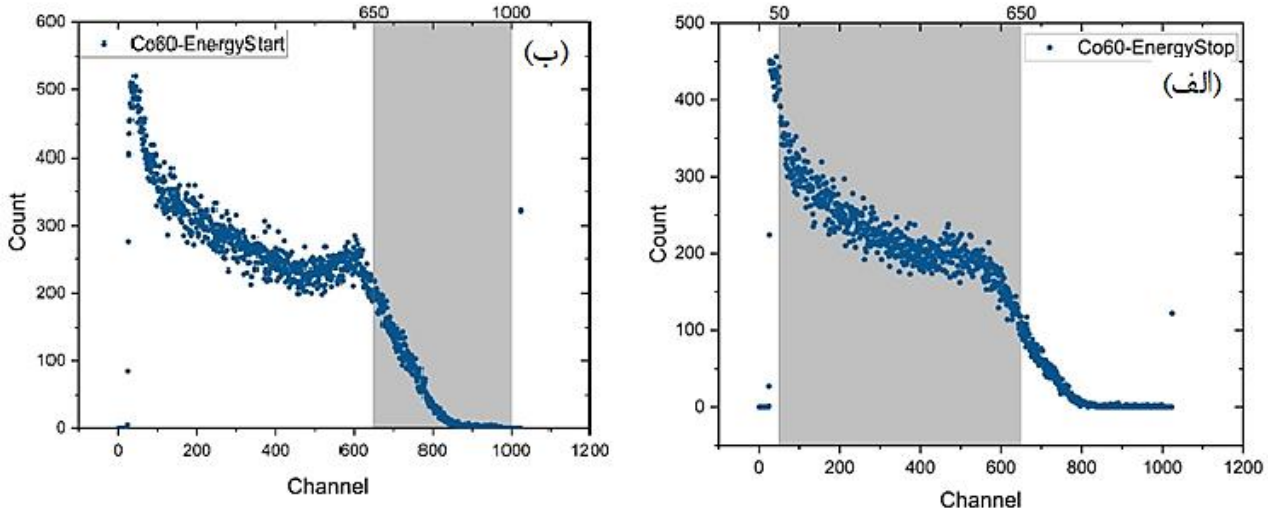


شکل ۱- تصویر میکروسکوپی الکترونی روبشی از نانوصفحات اکسید گرافن.

۲- مواد و روش تحقیق

۲-۱- مواد مورد استفاده

در تحقیق حاضر، از رزین اپوکسی اپون ۸۲۸ به‌عنوان فاز زمینه استفاده شد. این رزین در دمای ۲۵ درجه سانتی‌گراد دارای ویسکوزیته ۱۱۰ تا ۱۵۰ پاسکال می‌باشد. همچنین نانوصفحات اکسید گرافن (محصول شرکت یو اس نانومتریال آمریکا[۴]) به‌عنوان فاز تقویت‌کننده در ساخت نمونه‌های نانوکامپوزیتی به‌کار گرفته شدند. در جدول (۱) مشخصه‌های نانواکسید گرافن و در شکل (۱) تصویر میکروسکوپی الکترونی روبشی گسیل میدانی[۵] این نانوصفحات آورده شده است.



شکل ۲- طیف گاماهای چشمه ^{60}Co در آشکارسازهای توقف (الف) و شروع (ب) نشان داده شده است. محدوده ای از طیف‌ها که برای شروع و توقف زمان‌سنجی استفاده شده‌اند، با نوار تیره مشخص شده است.

۲-۲- ساخت نمونه‌های نانوکامپوزیتی

در تحقیق حاضر، نمونه‌های نانوکامپوزیتی طی مراحل زیر ساخته شدند:

۱) ابتدا ۶۰ گرم رزین اپوکسی به‌عنوان ماده زمینه، در یک بشر پلاستیکی ریخته شد و سپس با توجه به درصد وزنی‌های ۰/۱، ۰/۳، ۰/۵ و ۰/۷، مقدار لازم از نانواکسید گرافن به‌عنوان تقویت‌کننده، به رزین اپوکسی اضافه شد.

۲) ترکیب حاصل به مدت ۱۵ دقیقه توسط یک همزن مکانیکی با سرعت بالا (۱۸۰۰ دور بر دقیقه)، به‌منظور توزیع نانوذرات در رزین اپوکسی همزده شد.

۳) برای از بین بردن کلوخه‌های موجود، مخلوط اپوکسی- نانواکسید گرافن به مدت ۳۰ دقیقه تحت امواج فراصوت با دستگاه هموژنایزر پرابی تحت توان ۱۲۰ وات و فرکانس ۲۴ کیلوهرتز قرار گرفت. به‌منظورجلوگیری از افزایش دما در حین فرایند، ظرف حاوی مخلوط، در حمام آب و یخ قرار داده شد. این مرحله به‌منظور پخش همگن نانواکسید گرافن در رزین اپوکسی صورت گرفت.

۴) در مرحله بعد، سخت‌کننده به‌عنوان عامل پخت به نسبت وزنی ۱ به ۱۰ با رزین اپوکسی به مخلوط اضافه و به‌آرامی به مدت سه دقیقه همزده شد.

۵) مخلوط حاصله به‌آرامی درون قالب سیلیکونی که از قبل به وسیله اسپری روان‌کننده به‌خوبی تر شده بود، ریخته شده و پس از ۲۴ ساعت، نمونه‌ها از درون قالب خارج شدند.

۲-۳- اندازه‌گیری طول عمر نابودی پوزیترون

در این تحقیق، از یک سامانه همزمانی (کند- تند) طیف‌سنجی طول عمر نابودی پوزیترون شامل چشمه پوزیترون‌دهنده $^{22}NaCl$ با فعالیت حدود پنج میکروکوری (متشکل از دو لایه نازک کپتون به ضخامت ۷/۵ میکرومتر)، دو آشکارساز پلاستیک سریع، یک مدار زمان‌سنج و یک مدار انرژی‌سنج استفاده شده است. شکل (۲)، طیف گامای چشمه ^{60}Co را در آشکارسازهای شروع و توقف نشان می‌دهد. محدوده‌ای از طیف گاما که به‌عنوان سیگنال «شروع» و سیگنال «توقف»، جهت اندازه‌گیری قدرت تفکیک زمانی سامانه انتخاب شدند، با نوار تیره مشخص شده است. قدرت تفکیک زمانی سامانه با استفاده از یک چشمه گامازای ^{60}Co و پس از ۲۴ ساعت داده‌گیری مداوم، برابر ۲۲۵ پیکوثانیه به‌دست آمد. تصویری از چیدمان آزمایشگاهی سامانه در شکل (۳) آمده است.

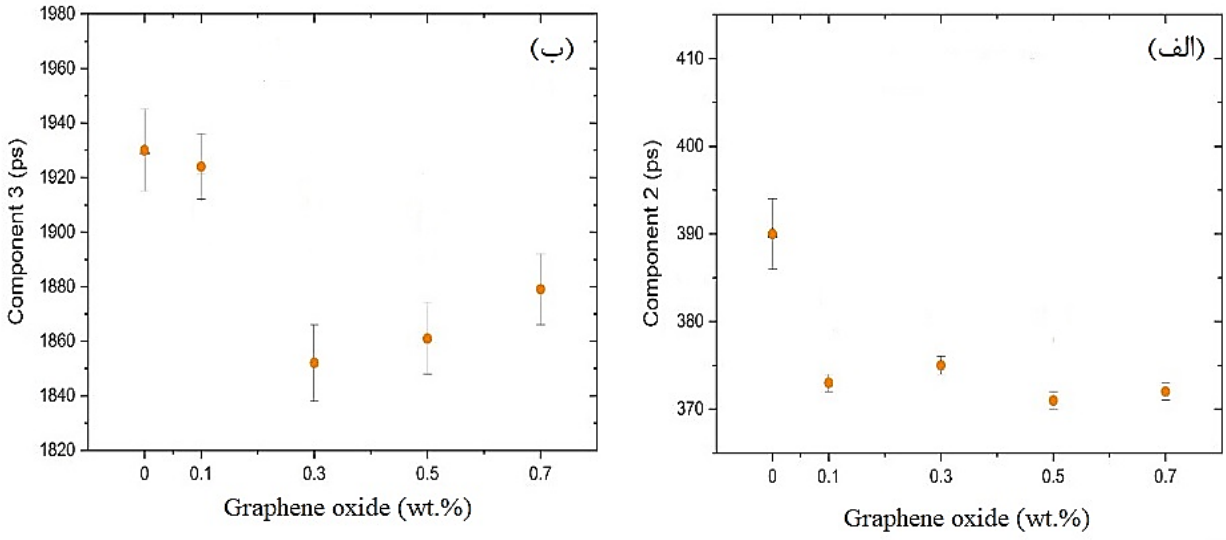
شکل ۳- تصویری از چیدمان آزمایشگاهی سامانه طیف‌سنجی طول عمر نابودی پوزیترون.

شکل ۴- نمونه‌های نانوکامپوزیتی آماده شده برای آزمون کشش تک‌محوری، حاوی درصدهای وزنی مختلف نانواکسید گرافن. نمونه رزین خالص با رنگ روشن قابل مشاهده است.

برازش و تحلیل طیف‌های حاصل از اندازه‌گیری طول عمر نابودی پوزیترون توسط نرم‌افزار PAScual انجام شد. برای هر کدام از طیف‌های طول عمر نابودی پوزیترون، سه مؤلفه τ_1 (مربوط به نابودی پاراپوزیترونیوم)، τ_2 (ترکیبی از نابودی پوزیترون در چشمه پوزیترون‌دهنده، نابودی پوزیترون آزاد در حجم نمونه، نابودی پوزیترونِ گیرافتاده در حفره‌ها و نابودی سه‌گامایی اورتوپوزیترونیوم به دام افتاده در حفره‌ها) و τ_3 (مربوط به نابودی اورتوپوزیترونیومِ گیرافتاده در حفره‌ها، صرفاً از طریق سازوکار برچینش)، به‌ترتیب با شدت‌های I_1، I_2 و I_3 برازش شده است. با استفاده از مؤلفه طول عمر نابودی اورتوپوزیترونیومِ گیرافتاده در حفره‌ها (صرفاً از طریق سازوکار برچینش) (τ_3) و به‌کارگیری مدل تائو-الدراپ، شعاع حفره‌های موجود در نمونه‌ها محاسبه شد.

۲-۴- آزمون کشش تک‌محوری

برای اندازه‌گیری استحکام کششی نمونه‌ها از دستگاه آزمون Hounsfield: H25K مطابق استاندارد ASTM D 638 استفاده شد. نمونه‌ها در دمای اتاق با سرعت یک میلی‌متر بر دقیقه تحت آزمون قرار گرفتند. در شکل (۴)، نمونه‌های نانوکامپوزیتی آماده شده برای آزمون کشش تک‌محوری نشان داده شده‌اند. مقادیر استحکام کششی نمونه‌ها از تقسیم مقدار حداکثر بار مشاهده شده روی منحنی نیرو- جابجایی بر سطح



شکل ۵- مؤلفه‌های طول عمر نابودی پوزیترون در نانوکامپوزیت‌های اپوکسی حاوی درصدهای مختلف اکسید گرافن، الف) مؤلفه دوم و ب) مؤلفه سوم.

مقطع نمونه‌ها به‌دست آمدند. آزمون‌ها برای هر نمونه سه بار تکرار شدند و میانگین این نتایج در قالب نمودار گزارش شد. پس از انجام آزمون کشش، سطوح شکست نمونه‌ها با استفاده از دستگاه میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی KYKY-EM8000F مورد مطالعه قرار گرفتند.

۳- نتایج و بحث

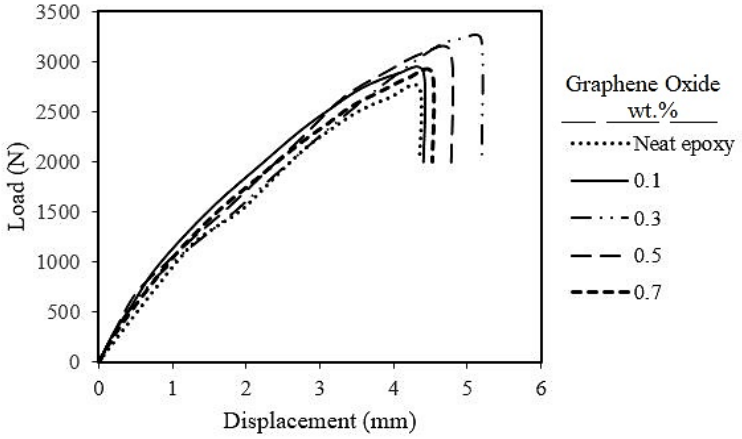
شکل (۵)، نحوه تغییرات مؤلفه‌های دوم (τ_2) و سوم (τ_3) طیف‌های طول عمر نابودی پوزیترون در نمونه‌های نانوکامپوزیت زمینه اپوکسی حاوی درصدهای مختلف نانواکسیدگرافن را نشان می‌دهد. مؤلفه τ_2، بیانگر ترکیبی از نابودی پوزیترون در چشمه پوزیترون‌دهنده، نابودی پوزیترون آزاد در حجم نمونه، نابودی پوزیترونن گیرافتاده در حفره‌ها و نابودی سه‌گامایی اورتوپوزیترونیوم به‌دام افتاده در حفره‌ها است. با توجه به اینکه تمام اندازه‌گیری‌ها با چشمه پوزیترون‌دهندهه یکسانی انجام شده، ثابت بودن این مؤلفه در نمونه‌های حاوی نانواکسیدگرافن، نشان‌دهنده یکسان بودن نواحی مرزی به‌وجود آمده در بطن نمونه‌ها است.

مؤلفه τ_3، صرفاً مربوط به نابودی اورتوپوزیترونیوم گیرافتاده در حفره‌ها از طریق سازوکار برچینش است که مستقیماً به اندازه حفره‌هایی بین مولکولی شکل گرفته در ساختار نمونه‌های نانوکامپوزیت مرتبط می‌شود. تغییرات این مؤلفه در درصدهای وزنی مختلف نانوگرافن، نشان‌دهنده آن است که نانوذرات به شکل‌های متفاوتی در جاهای خالی زمینه اپوکسی منتشر شده‌اند. کاهش مقدار این مؤلفه در تمام نمونه‌های نانوکامپوزیتی نسبت به نمونه اپوکسی خالص، نشان‌دهنده جایگزینی نانواکسیدگرافن در حفرات موجود در بطن اپوکسی خالص و کاهش کلی اندازه حجم حفرات است. در ۰/۳ درصد وزنی از نانوگرافن، کم‌ترین مقدار برای مؤلفه τ_3 مشاهده می‌شود.

با استفاده از مؤلفه برچینش طول عمر نابودی اورتوپوزیترونیوم در نمونه‌ها (τ_3) و به‌کارگیری مدل تائو-الدراپ (رابطه ۱)، شعاع حفره‌های موجود در نمونه‌ها (R) محاسبه شد (۱۹). در ادامه، با داشتن مقادیر شعاع، حجم حفرات (V_f) با استفاده از رابطه (۲) محاسبه گردید.

$$\lambda_{TE}(R)=\frac{1}{\tau_3}=\lambda_A\left[1-\frac{R}{R+\Delta R}+\frac{1}{2\pi}\sin\left(\frac{2\pi R}{R+\Delta R}\right)\right] \quad (۱)$$

$$V_f=\frac{4}{3}\pi.R^3 \quad (۲)$$



شکل ۶- منحنی‌های نیرو بر حسب جابجایی نمونه‌های نانوکامپوزیتی اپوکسی/ نانواکسید گرافن حاوی درصدهای وزنی مختلف نانواکسید گرافن، تحت آزمون کشش تک‌محوری.

جدول ۲- مقادیر شعاع و حجم آزاد حفرات در نمونه‌های نانوکامپوزیتی اپوکسی/نانواکسید گرافن

درصد وزنی نانواکسید گرافن	R (nm)	V_f (A^3)
صفر	۰/۲۷۹۰	۹۰/۹۷
۰/۱	۰/۲۷۸۴	۹۰/۳۸
۰/۳	۰/۲۷۱۵	۸۳/۷۸
۰/۵	۰/۲۷۲۴	۸۴/۶۷
۰/۷	۰/۲۷۴۱	۸۶/۲۶

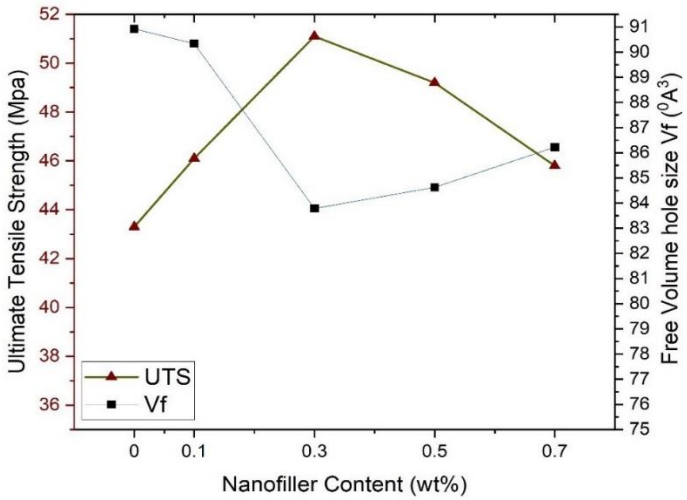
در رابطه فوق، ΔR، ضخامت لایه الکترونی موجود در جداره حفره است که معمولاً برابر ۰/۱۶۶ نانومتر در نظر گرفته می‌شود. λ_A میانگین نرخ نابودی اورتوپوزیترونیوم در ماده است که برابر دو نانوثانیه فرض می‌شود.

در جدول (۲)، مقادیر شعاع و حجم آزاد حفرات (محاسبه شده با استفاده از روابط ۱ و ۲) در نمونه‌های نانوکامپوزیتی اپوکسی/ نانواکسید گرافن حاوی درصدهای وزنی مختلف تقویت‌کننده نشان داده شده است. همان‌طور که از نتایج جدول (۲) مشهود است، کم‌ترین شعاع و حجم حفرات آزاد مربوط به نمونه حاوی ۰/۳ درصد وزنی نانواکسید گرافن می‌باشد که کاهش حدود هفت درصدی حجم حفرات آزاد در این نمونه در مقایسه با نمونه اپوکسی خالص را نشان می‌دهد. با افزایش درصد وزنی تقویت‌کننده، (۰/۵ درصد)، حجم آزاد حفرات افزایش یافته است که علت احتمالی آن را می‌توان به تشکیل آگلومره‌ها در مقادیر بالای ذرات نسبت داد (۲۰).

برای نشان دادن اثر حفرات آزاد بر رفتار مکانیکی نمونه‌های نانوکامپوزیتی، آزمون کشش تک‌محوری بر روی آن‌ها صورت گرفت که در شکل (۶)، منحنی‌های نیرو بر حسب جابجایی در درصدهای وزنی مختلف نانواکسید گرافن آورده شده است. در ادامه، با تقسیم حداکثر نیروها بر سطح مقطع، مقادیر استحکام کششی نمونه‌ها محاسبه شد که در جدول (۳) این اعداد گزارش شده است. بیش‌ترین مقدار استحکام کششی مربوط به نمونه نانوکامپوزیتی حاوی ۰/۳ درصد وزنی نانواکسید گرافن است. میزان استحکام کششی برای نمونه اپوکسی خالص ۴۳/۳ مگاپاسکال است که با افزودن ۰/۳ درصد وزنی نانواکسید گرافن مقدار استحکام نمونه به ۵۱/۱ مگاپاسکال افزایش یافته است که بهبود ۱۸ درصدی را نشان می‌دهد. علت بهبود استحکام کششی در حضور نانواکسید گرافن را می‌توان به سطح ویژه بالای این نانوذرات نسبت داد که باعث افزایش میزان برهمکنش زمینه و تقویت‌کننده می‌شود (۲۱). همان‌طور که در جدول (۳) مشاهده می‌شود، در درصدهای وزنی بالاتر نانوذرات (۰/۵ و ۰/۷ درصد) به احتمال زیاد به علت تشکیل آگلومره‌های ذرات، روند نزولی در استحکام کششی نمونه‌ها

جدول ۳- مقادیر استحکام کششی نمونه‌های نانوکامپوزیتی اپوکسی/ نانواکسید گرافن حاوی درصدهای وزنی مختلف نانواکسید گرافن

درصد وزنی نانواکسید گرافن	استحکام کششی (مگاپاسکال)
صفر	۴۳/۳ ± ۲/۱
۰/۱	۴۶/۱ ± ۲/۹
۰/۳	۵۱/۱ ± ۱/۹
۰/۵	۴۹/۲ ± ۲/۳
۰/۷	۴۵/۸ ± ۲/۴

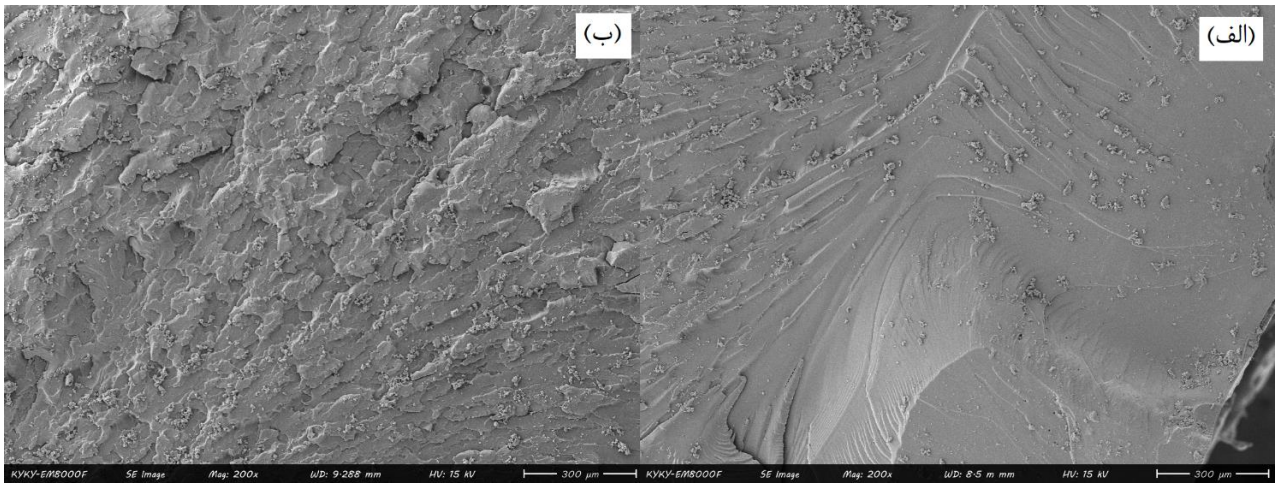


شکل ۷- ارتباط استحکام کششی با حجم حفرات آزاد در نمونه‌های نانوکامپوزیتی حاوی درصدهای وزنی مختلف نانواکسید گرافن.

مشاهده می‌شود. درحقیقت، تجمع ذرات در زمینه، به علت ایجاد مراکز تمرکز تنش، جوانه‌زنی و اشاعه ترک را تسهیل کرده و از این طریق باعث افت استحکام کششی می‌شود (۲۲).

برای مقایسه تأثیر حجم حفرات آزاد بر استحکام کششی نمونه‌های نانوکامپوزیتی حاوی درصدهای وزنی مختلف نانواکسید گرافن، مقادیر استحکام کششی و حجم حفرات آزاد نمونه‌ها به‌صورت نمودار در شکل (۷) رسم شده است. همان‌طور که در این شکل مشاهده می‌شود، رابطه معکوسی بین استحکام کششی و حجم حفرات آزاد در نمونه‌ها وجود دارد. این بدان معنا است که با افزایش حجم حفرات، استحکام کششی کاهش و با کاهش حجم حفرات، استحکام کششی نمونه‌ها افزایش یافته است. در نمونه نانوکامپوزیتی حاوی ۰/۳ درصد وزنی نانواکسید گرافن که دارای کم‌ترین مقدار حجم حفرات است، بیش‌ترین میزان استحکام کششی قابل مشاهده است.

سطوح شکست نمونه‌های اپوکسی خالص و نانوکامپوزیت اپوکسی حاوی ۰/۳ درصد وزنی نانواکسید گرافن (به‌عنوان نمونه با بالاترین میزان استحکام کششی) با استفاده از میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی تصویربرداری شد که تصاویر آن در شکل (۸) آورده شده است. همان‌طور که از شکل (۸-الف) مشهود است، سطح شکست مربوط به نمونه اپوکسی خالص نسبتاً صاف و هموار بوده که مؤید وجود شکست ترد در این نمونه می‌باشد. اما در مقابل، سطح شکست نمونه نانوکامپوزیتی حاوی ۰/۳ درصد وزنی نانواکسید گرافن ناهموار است (شکل ۸-ب). این بدان معناست که وجود نانواکسید گرافن در زمینه به‌عنوان موانعی در برابر اشاعه ترک عمل کرده و باعث انحراف مسیر رشد ترک می‌شود (۲۱).



شکل ۸- سطوح شکست نمونه‌ها: الف) اپوکسی خالص و ب) نانوکامپوزیت اپوکسی حاوی ۰/۳ درصد وزنی نانواکسید گرافن.

۴- نتیجه‌گیری

در این تحقیق، طیف‌سنجی طول عمر نابودی پوزیترون و رفتار استحکام کششی نمونه‌های نانوکامپوزیتی شامل زمینه اپوکسی حاوی درصدهای وزنی متفاوت نانواکسید گرافن مورد مطالعه قرار گرفت. مهم‌ترین نتایج حاصل از این تحقیق را می‌توان در موارد زیر خلاصه نمود:

۱) در نمونه نانوکامپوزیتی حاوی ۰/۳ درصد وزنی نانواکسید گرافن، کم‌ترین مقدار حجم حفرات آزاد مشاهده شد. در ارتباط با این نمونه، کاهش حدود هفت درصدی حجم حفرات آزاد در مقایسه با نمونه اپوکسی خالص مشاهده شد.

۲) بالاترین میزان استحکام کششی مربوط به نمونه نانوکامپوزیتی حاوی ۰/۳ درصد وزنی نانواکسید گرافن بود که در ارتباط با این نمونه، بهبود ۱۸ درصدی استحکام کششی در مقایسه با نمونه اپوکسی خالص قابل مشاهده بود.

۳) مقایسه نتایج استحکام کششی و حجم حفرات آزاد نمونه‌ها موید این واقعیت بود که رابطه معکوسی بین استحکام کششی و حجم حفرات آزاد در نمونه‌ها وجود دارد.

۴) در درصدهای وزنی بالاتر نانواکسید گرافن (۰/۵ و ۰/۷ درصد)، افت استحکام کششی و افزایش میزان حجم حفرات آزاد در مقایسه با نمونه حاوی ۰/۳ درصد وزنی نانواکسید گرافن مشاهده شد.

تشکر و سپاسگزاری

نویسندگان این مقاله از حمایت‌های مالی معاونت پژوهشی دانشگاه سیستان و بلوچستان برای انجام تحقیق حاضر قدردانی می‌کنند.

تضاد منافع

نویسندگان مقاله اذعان دارند هیچ نوع تضاد منافعی با شخص، شرکت یا سازمانی برای این پژوهش ندارند.

سهم نویسندگان

محمد کوهکن: جمع‌آوری داده‌ها، تحلیل و تفسیر داده‌ها، اعتبارسنجی نتایج، نوشتن مقاله. **علی اکبر مهماندوست خواجه داد:** طراحی و ایده‌پردازی مطالعه، تحلیل و تفسیر داده‌ها، نوشتن مقاله، راهنمائی پروژه. **حامد خسروی:** طراحی و ایده‌پردازی مطالعه، تحلیل و تفسیر داده‌ها، نوشتن مقاله، راهنمائی پروژه.

واژه‌نامه

1. nanocomposites
2. nanographene
3. positron annihilation lifetime spectroscopy
4. US Research Nanomaterials Inc
5. field-emission scanning electron microscopy (FESEM)

مراجع

1. Hassan T, Salam A, Khan A, Khan SU. Functional nanocomposites and their potential applications: A review. J Polym Res. 2021; 28: 36. https://doi.org/10.1007/s10965-021-02408-1
2. Urade AR, Lahiri I, Suresh KS. Graphene Properties, Synthesis and Applications: A Review. JOM 2023; 75: 614-630. https://doi.org/10.1007/s11837-022-05505-8
3. Yan J, Yi S, Yuan X. Graphene and its composites: A review of recent advances and applications in logistics transportation. Pack Technol Sci. 2024; 37(4): 335-361. https://doi.org/10.1002/pts.2795
4. Guo L, Chen Z, Han H, Liu G. Advances and outlook in modified graphene oxide (GO)/epoxy composites for mechanical applications. Appl Nanosci. 2023; 13: 3273-3287. https://doi.org/10.1007/s13204-022-02653-w
5. Amirbeygi H, Khosravi H, Tohidlou E. Reinforcing effects of aminosilane-functionalized graphene on the tribological and mechanical behaviors of epoxy nanocomposites. J Appl Polym Sci. 2019; 136(18): 47410. https://doi.org/10.1002/app.47410
6. Wang X, Xing W, Zhang P, Song L, Yang H. Hu Y. Covalent functionalization of graphene with organosilane and its use as a reinforcement in epoxy composites. Compos Sci Technol. 2012; 72(6): 737-743. https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2012.01.027
7. Yao H, Hawkins SA, Sue HJ. Preparation of epoxy nanocomposites containing well-dispersed graphene nanosheets. Compos Sci Technol. 2017; 146(3):161-168. https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2017.04.026
8. Wang C, Lan Y, Li X, Yu W, Qian Y. Improving the mechanical, electrical, and thermal properties of polyimide by incorporating functionalized graphene oxide. High Perform Polym. 2016; 28(7): 800-808. https://doi.org/10.1177/0954008315598818
9. Wan YJ, Gong LX, Tang LC, Wu LB, Jiang JX. Mechanical properties of epoxy composites filled with silane-functionalized graphene oxide. Compos Part A 2014; 64: 79-84. https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2014.04.023
10. Jamali N, Rezvani A, Khosravi H, Tohidlou E. A comparative study on dry-sliding wear behavior of graphene oxide/epoxy nanocomposites functionalized by amino- and epoxy-silane coupling agents. Polym Compos. 2021; 42: 5930-5935. https://doi.org/10.1002/pc.26272
11. Tayebfard E, Mehmandoost-Khajeh-Dad AA, Khaghani M, Jafarzadeh- Khatibani M, Poorsaleh AM. Stability of a positron lifetime measurement system, and investigation the types and concentrations of defects induced by10 MeV electron irradiation on n-and p-types Si. Iranian J Phys Res. 2015; 15(1): 34-41. https://doi.org/10.18869/acadpub.ijpr.15.1.34
12. Asgarian SM, Mahjour-Shafiei M, Mozaffari M, Shatooti S. Exploring the electrochemical properties of lithium-ion battery electrodes composed of vacancy-defective zinc-substituted magnetite nanocrystallites. J Alloys Comp. 2024; 986: 174071. https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2024.174071
13. Jean YC, Mallon PE. Principles and applications of positron and positronium chemistry. World Sci. 2003, ISBN: 978-981-238-144-6. https://doi.org/10.1142/5086
14. Selim FA. Positron annihilation Spectroscopy of defects in nuclear and irradiated materials- a review. Mater Charact. 2021; 174: 110952. https://doi.org/10.1016/j.matchar.2021.110952
15. Consolati G, Nichetti D, Quasso F. Probing the free volume in polymers by means of positron annihilation lifetime Spectroscopy. Polym. 2023; 15: 3128. https://doi.org/10.3390/polym15143128
16. Sharma SK, Pujari PK. Role of free volume characteristics of polymer matrix in bulk physical properties of polymer nanocomposites: A review of positron annihilation lifetime studies. Prog Polym Sci. 2017; 75: 31. https://doi.org/10.1016/j.progpolymsci.2017.07.001
17. Biganeh A, Kakuee O, Rafi-Kheiri H, Lamehi-Rachti M, Sheikh N, Yamaha E. Positron annihilation lifetime and Doppler broadening Spectroscopy of polymers. Rad Phys Chem. 2020; 166: 108461. https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2019.108461
18. Shirazinia M, Mehmandoost-Khajeh-Dad AA, Dehghani V, Mehmandoost-Khajeh-Dad J, Khaghani M. The effect of curing light intensity on free volume size in some dental composites. Polim Med. 2016; 46:2. https://doi.org/10.17219/pim/68647
19. Khaghani M, Mehmandoost-Khajeh-Dad AA. Temperature dependence of o-Ps annihilation lifetime in non-uniform cylindrical pores in comparison with ETE model. Nuclear Instrum Methods Phys Res Sect B 2017; 396: 11-17. https://doi.org/10.1016/j.nimb.2017.02.006
20. Vakhshouri M, Khosravi H. Synthesis of Nickel nanoparticles on graphene oxide as a promising reinforcement for epoxy composites. Polym Compos.

2020; 41(7): 2643-2651. https://doi.org/10.1002/pc.25563
21. Mahaki S, Khosravi H, Tohidlou E. Reinforcing effect of Fe_2O_3 nanoparticle-decorated graphene oxide on flexural and wear behaviors of epoxy composites. J Appl Polym Sci. 2022; 139: e53228. https://doi.org/10.1002/app.53228
22. Mohsenia F, Rezvani A, Khosravi, H, Tohidlou E. On the mechanical properties of copper oxide (CuO)-decorated graphene oxide/epoxy nanocomposites. Polym Plast Technol Mater. 2025; 64: 158-169. https://doi.org/10.1080/25740881.2024.2393387