J. Adv. Mater. Eng., 2025;44(2)79-92. https://doi.org/10.47176/jame.44.2.1102

Journal of Advanced Materials in Engineering

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

ISSN: 2251-600X EISSN: 2423-5733

Research Article

Effect of Amorphous Si_3N_4 Nanoparticles on the Infrared Transmittance of α-Al_2O_3

Mahdi Darabi*, Ehsan Mohammad Sharifi, Reza Vafaie, Akbar Eshaghi, and Mohammad Reza Loghman Estraki

Department of Materials Engineering, Malek Ashtar University of Technology, Isfahan, Iran
* Corresponding author, Email: darabi.mehdi@gmail.com

(Received: 5 January 2025; Revised: 5 February 2025; Accepted: 8 February 2025; Available online: 5 March 2025)

ABSTRACT

Introduction and Objectives: This study aims to enhance the optical properties of polycrystalline alumina by controlling grain growth and minimizing structural defects. To achieve this, the influence of amorphous silicon nitride (Si_3N_4) nanoparticles as a reinforcing agent, in conjunction with MgO and La_2O_3 as sintering aids, on the infrared transmittance of PA was investigated. Furthermore, the role of the dispersing agent in improving slurry homogeneity and particle distribution was evaluated.

Materials and Methods: The composite materials were synthesized via a chemical precipitation process, wherein alumina powder was mixed with Si_3N_4 nanoparticles, magnesium nitrate, lanthanum nitrate, and a dispersing agent in an aqueous solution.Ultrasonic waves were employed to enhance particle dispersion, and the slurry pH was adjusted to 10 to stabilize the suspension.Subsequent to powder preparation, spark plasma sintering was utilized to achieve densification and control grain growth. The microstructural and optical characteristics of the samples were then analyzed using X-ray diffraction, field emission scanning electron microscopy and infrared spectroscopy.

Results: The findings indicated that the incorporation of Si_3N_4 nanoparticles (0.1 wt%) and a dispersing agent (2 wt%) led to an enhancement in infrared transmittance, with a maximum achieved of 85% within the 5–6 µm wavelength range. This observation was corroborated by microscopic analysis, which confirmed a reduction in grain size and an improvement in microstructural uniformity. Furthermore, X-ray diffraction analysis substantiated the preservation of the crystalline structure of alumina across all samples.

Conclusion: The optimization of the sintering process, in conjunction with the incorporation of silicon nitride nanoparticles, facilitates the fabrication of transparent alumina, which exhibits augmented optical properties. These materials hold considerable promise for applications in infrared-sensitive systems, including missile guidance and optical sensor technologies.

Keywords: Alpha Alumina, Amorphous Silicon Nitride Nanoparticles, dispersing agent Dolapix CE64, Spark Plasma Sintering, Infrared Radiation.

How to Cite: Darabi M, Sharifi EM, Vafaie R, Eshaghi A, Loghman Estraki MR. Effect of amorphous Si_3N_4 nanoparticles on the infrared transmittance of α-Al_2O_3. J Adv Mater Eng. 2025;44(2):79–92. https://doi.org/10.47176/jame.44.2.1102

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):۹۲-۷۹. https://doi.org/10.47176/jame.44.2.1102

مواد پیشرفته در مهندسی

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

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

مقاله پژوهشی

اثر نانوذرات آمورف Si_3N_4 بر عبور پرتو مادون‌قرمز α-Al_2O_3

مهدی دارابی*، احسان محمدشریفی، رضا وفایی، اکبر اسحاقی و محمد رضا لقمان استرکی

دانشکده مهندسی مواد، دانشگاه صنعتی مالک‌اشتر شاهین‌شهر، اصفهان، ایران

* **نویسنده مسئول، پست الکترونیکی: darabi.mehdi@gmail.com**

(دریافت: ۱۴۰۳/۱۰/۱۶، بازنگری: ۱۴۰۳/۱۱/۱۷، پذیرش: ۱۴۰۳/۱۱/۲۰، انتشار: ۱۴۰۳/۱۲/۱۵)

چکیده

مقدمه و اهداف: این پژوهش با هدف بهبود خواص نوری آلومینای پلی‌کریستال از طریق کنترل رشد دانه‌ها و کاهش نقص‌های ساختاری انجام شد. برای این منظور، تأثیر نانوذرات آمورف نیترید سیلیسیم به‌عنوان عامل تقویت‌کننده، همراه با کمک‌تفجوش‌های منیزیا و لانتانیا، بر عبور پرتو مادون‌قرمز بررسی شد. علاوه بر این، اثر ماده پراکنده‌ساز بر یکنواختی دوغاب و توزیع ذرات مورد مطالعه قرار گرفت.

مواد و روش‌ها: کامپوزیت‌های موردنظر به روش رسوب‌دهی شیمیایی تهیه شدند. پودر آلومینا همراه با نانوذرات نیترید سیلیسیم، نیترات منیزیم، نیترات لانتانیم و ماده پراکنده‌ساز در محیط آبی ترکیب شد. برای بهبود پراکندگی ذرات، از امواج مافوق صوت استفاده شد و اسیدیته دوغاب جهت پایداری سوسپانسیون برابر ۱۰ تنظیم گردید. پس از آماده‌سازی پودر، فرآیند تف‌جوشی پلاسمای جرقه‌ای به‌منظور چگالش و کنترل رشد دانه‌ها اعمال شد. جهت مشخصه‌یابی نمونه‌ها، از روش‌های پراش پرتو ایکس، میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی و طیف‌سنجی مادون‌قرمز استفاده شد.

یافته‌ها: نتایج حاکی از آن بود که افزودن ۰/۱ درصد وزنی نانوذرات نیترید سیلیسیم و ۲ درصد وزنی ماده پراکنده‌ساز، عبور پرتو مادون‌قرمز را به ۸۵ درصد در طول موج ۵-۶ میکرومتر افزایش داد. تصاویر میکروسکوپی کاهش اندازه دانه‌ها و بهبود یکنواختی ریزساختار را تأیید کردند. همچنین، نتایج پراش پرتو ایکس نشان داد که ساختار بلوری آلومینا در تمامی نمونه‌ها حفظ شده است.

نتیجه‌گیری: بهینه‌سازی فرآیند تف‌جوشی همراه با استفاده از نانوذرات نیترید سیلیسیم، امکان تولید آلومینای شفاف با خواص نوری بهبودیافته را فراهم می‌کند. این مواد قابلیت استفاده در سامانه‌های حساس به پرتو مادون‌قرمز از جمله سامانه‌های هدایت موشکی را دارند.

واژه‌های کلیدی: آلومینا آلفا، نانوذرات آمورف نیترید سیلیسیم، ماده پراکنده‌ساز Dolapix CE64، تف‌جوشی پلاسمای جرقه‌ای، پرتو مادون‌قرمز.

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

سامانه‌های هدایت موشک‌های حرارتی از جستجوگرهای حساس به امواج مادون‌قرمز برای شناسایی و رهگیری اهداف استفاده می‌کنند. این جستجوگرها با دریافت و پردازش امواج مادون‌قرمز[1] ساطع‌شده از اهداف، موشک را بادقت بالا به‌سمت هدف هدایت می‌کنند (۱). حفاظت از این سامانه‌ها در شرایط دشوار محیطی، نظیر گرمایش آیرودینامیکی و فرسایش ناشی از برخورد گردوغبار و قطرات باران، مستلزم استفاده از موادی است که علاوه بر شفافیت بالا در محدوده طول‌موج مادون‌قرمز، از مقاومت مکانیکی و حرارتی مطلوبی برخوردار باشند (۲). موادی نظیر یاقوت کبود تک‌کریستال، اکسی‌نیترید آلومینیوم[2] و آلومینات منیزیم[3]، به‌عنوان گزینه‌های مناسب برای این کاربرد به‌شمار می‌روند. باوجود ویژگی‌های نوری مطلوب این مواد، پیچیدگی‌های فنی و هزینه بالای تولید آن‌ها از چالش‌های اصلی در توسعه و گسترش این مواد محسوب می‌شود (۳ و ۴). در این راستا، آلومینای پلی‌کریستال به‌عنوان جایگزینی مقرون‌به‌صرفه و کارآمد مطرح شده است. این ماده، علاوه بر شفافیت مناسب در محدوده طول‌موج مادون‌قرمز، قابلیت تولید از طریق فرایندهای متداولی نظیر تف‌جوشی را دارد که این امر به کاهش قابل‌توجه هزینه‌های تولید منجر می‌شود (۵ و ۶). با این‌حال، عواملی نظیر ناخالصی‌ها، فازهای ثانویه و مرزهای دانه می‌توانند موجب پراکندگی و جذب نور شوند و شفافیت نهایی آلومینا را تحت‌تأثیر قرار دهند. شناسایی و کاهش این عوامل گامی مؤثر در بهبود عملکرد نوری و افزایش کاربردپذیری این ماده در سامانه‌های حساس مادون‌قرمز محسوب می‌شود (۹-۷). پژوهش‌های اخیر نشان می‌دهند که افزودن نانوذرات آمورف به ساختار سرامیکی می‌تواند با کنترل اندازه دانه و بهبود خواص مکانیکی بدون تأثیر منفی بر شفافیت، به عملکرد بهینه این مواد کمک نماید (۱۲-۱۰). در این میان، نانوذرات آمورف نیترید سیلیسیم[4] با ضریب شکست ۲/۰۱۶ به‌عنوان گزینه‌ای مناسب برای بهبود خواص مکانیکی و حفظ شفافیت آلومینا با ضریب شکست ۱/۷۶۸ مطرح شده‌اند (۱۰ و ۱۶-۱۳). ژیانگ و همکاران (۱۷)، مطالعه‌ای در خصوص عبور پرتو مادون‌قرمز میانی در آلومینا با استفاده از روش تف‌جوشی پلاسمای جرقه‌ای[4] انجام دادند. در این پژوهش، پودر آلومینا با اندازه دانه یکنواخت و خلوص بالا در دمای ۱۳۰۰ درجه سانتی‌گراد به‌مدت پنج دقیقه و با سرعت گرمایش ۱۷۰ $^{o}C/min$ تف‌جوشی شد. آلومینای شفاف به‌دست‌آمده، میزان عبور ۸۵ درصد در طول موج چهار میکرومتر را نشان داد. پریش و همکاران (۱۸)، تحقیقاتی پیرامون تولید گنبدهای آلومینای پلی‌کریستال شفاف با کیفیت بالا با استفاده از روش تف‌جوشی SPS انجام دادند. در این مطالعه، پودر آلومینا در دمای ۱۳۰۰ درجه سانتی‌گراد به‌مدت پنج دقیقه تف‌جوشی شد. نتایج نشان داد که حداکثر عبور آلومینا به ۸۵ درصد رسید. همچنین، استفاده از عملیات آنیل در هوا در دمای ۱۲۵۰ درجه سانتی‌گراد به‌مدت ۲۴ ساعت، بهبود قابل‌توجهی در عبور پرتوهای مادون‌قرمز میانی ایجاد کرد. باتوجه‌به تحقیقات پیشین، منیزیا به‌عنوان یک افزودنی مؤثر در فرآیندهای تف‌جوشی، نقش اساسی در بهبود ریزساختار مواد سرامیکی ایفا می‌کند. این ماده با کاهش تحرک مرز دانه‌ها و نفوذ سطحی، زبری مرز دانه‌ها را افزایش داده و از رشد غیرطبیعی دانه‌ها جلوگیری می‌کند (۲۴-۱۹). از سوی دیگر، لانتانیا با قرارگیری در مرز دانه‌ها، مهاجرت و رشد دانه‌ها را محدود کرده و از ایجاد ترک در نواحی مرزی جلوگیری می‌کند. این ترکیب با کاهش تنش‌های موجود در مرز دانه‌ها، پیوندهای مرزی را تقویت کرده و در نتیجه موجب افزایش پایداری ریزساختار می‌شود (۲۸-۲۵). در پژوهش‌های اخیر، افزودن نانوذرات آمورف به ساختار آلومینا به‌عنوان روشی مؤثر برای بهبود خواص نوری آلومینا مطرح شده است. این نانوذرات با کنترل اندازه دانه و کاهش عیوب ساختاری، عبور پرتو نور را بهبود می‌بخشند، بدون اینکه تأثیر منفی بر استحکام مکانیکی داشته باشند. در این میان، نانوذرات سیلیسیم نیترید آمورف به دلیل ضریب شکست نزدیک به آلومینا و قابلیت بهبود یکنواختی ساختار، گزینه‌ای مناسب برای این منظور به‌شمار می‌روند. در این پژوهش، تأثیر افزودن نانوذرات

سیلیسیم نیترید آمورف با درصدهای وزنی (۰/۱ و ۰/۲) و همچنین نقش ماده پراکنده‌ساز با مقادیر درصد وزنی (۱، ۱/۵ و ۲) بر عبور پرتو مادون قرمز و بهبود خواص نوری آلومینا بررسی شده است. هدف اصلی این تحقیق، شناسایی ترکیب بهینه‌ای از نانوذرات و پراکنده‌ساز است که بتواند بهبود قابل توجهی در عبور پرتو مادون قرمز و شفافیت نوری آلومینا ایجاد کند. بررسی‌های انجام‌شده نشان می‌دهد که تاکنون هیچ پژوهشی تأثیر یون‌های هم‌افزایی آلایشی[5] لانتانیا و منیزیا همراه با نانوذرات تقویت‌کننده Si_3N_4 در ساختار α-Al_2O_3 بر عبور پرتو مادون قرمز α-Al_2O_3 را تحلیل نکرده است. این پژوهش برای نخستین‌بار به تحلیل این موارد می‌پردازد.

۲- مواد و روش پژوهش

۲-۱- مواد مصرفی

در این پژوهش، نیترات منیزیم ونیترات لانتانیم، به‌عنوان مواد کمک تف‌جوشی و از نانوذرات نیترید سیلیسیم به‌عنوان عامل تقویت‌کننده و مهارکننده رشد دانه‌ها استفاده شد. این مواد از شرکت مرک[6] آلمان تهیه شدند. برای دستیابی به پراکندگی بهینه ذرات در دوغاب، از ماده پراکنده‌ساز پلی‌متیل‌متاکریلات[7] با نام تجاری (Dolapix CE64) تولید شرکت زشیمر و شوارتز[8] استفاده گردید. همچنین، پودر آلومینا با اندازه دانه ۲۰۰ نانومتر از شرکت یواس‌نانو[9] تأمین شد. طراحی ترکیب‌ها و تعیین تعداد نمونه‌های موردنیاز جهت رسیدن به شرایط بهینه با استفاده از روش تاگوچی[10] انجام گرفت. جزئیات مربوط به ترکیب نمونه‌ها در جدول (۱) ارائه شده است.

جدول ۱- تعداد و ترکیب نمونه‌های به‌دست آمده از روش تاگوچی

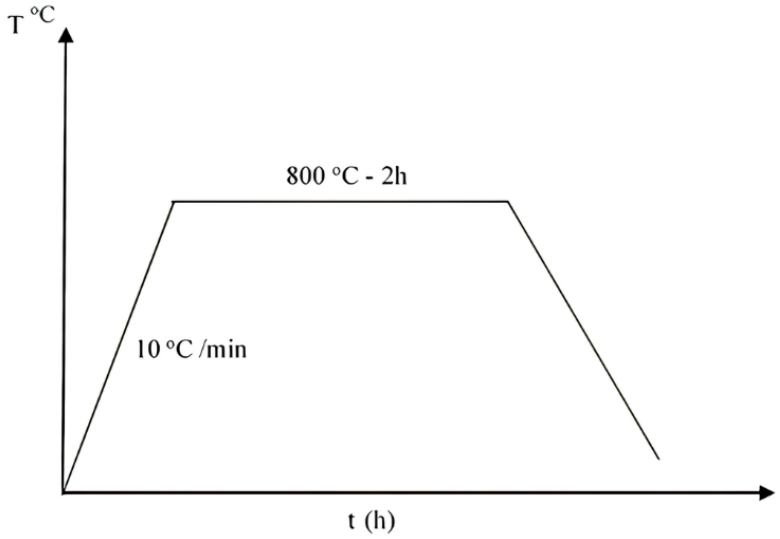
شماره	نمونه
۱	Pure Alumina
۲	0.1 %Si_3N_4
۳	0.2% Si_3N_4
۴	0.1% Si_3N_4+1%DL+ MgO+La_2O_3
۵	0.1% Si_3N_4+1.5%DL+MgO+La_2O_3
۶	0.1% Si_3N_4+2%DL+MgO+La_2O_3

۲-۲- تهیه آلومینا هم‌افزایی آلایشی‌شده با Mg^{2+} و La^{3+}

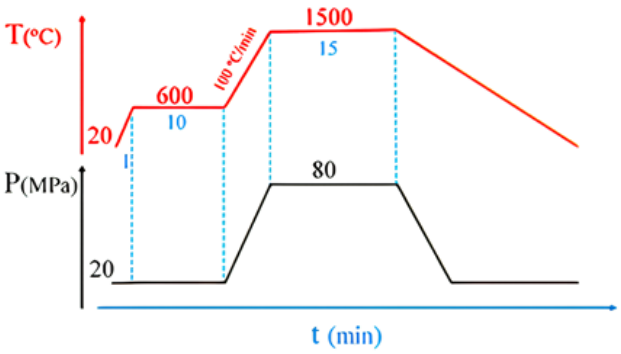
در این مطالعه، از روش رسوب‌دهی شیمیایی برای تهیه کامپوزیت استفاده شد. ابتدا، محلولی شامل ۱۰۰ppm نیترات منیزیم و ۱۰۰ppm نیترات لانتانیم به‌همراه درصدهای مختلفی از ماده پراکنده‌ساز در آب دیونیزه[11] تهیه گردید. سپس، پودر آلومینا و نانوذرات نیترید سیلیسیم به آرامی به محلول اضافه گردید. برای دستیابی به پراکندگی مناسب ذرات در دوغاب، از امواج مافوق صوت[12] استفاده شد. به‌منظور تنظیم اسیدیته[13] دوغاب، محلول آمونیاک ۲۵ درصد به‌تدریج به دوغاب اضافه گردید تا اسیدیته در مقدار pH=۱۰ ثابت گردد. سپس، دوغاب به‌مدت ۲۴ ساعت با استفاده از همزن مغناطیسی به‌صورت مداوم مخلوط گردید. فرایند کلسینه‌شدن[14]، مطابق با چرخه عملیات حرارتی نشان داده شده در شکل (۱) انجام گرفت و منجر به تشکیل اکسیدهای فلزی (La_2O_3 و MgO) در کنار Si_3N_4 و α-Al_2O_3 شد. محصول نهایی پس از غربالگری در محیط خلأ، با روش SPS تف‌جوشی گردید.

۲-۳- فرآیند تف‌جوشی SPS

پودر آماده‌شده طبق شرایط ارائه‌شده در شکل (۲)، با استفاده از دستگاه SPS 380V-10000A ساخت دانشگاه صنعتی مالک‌اشتر ایران، تحت فرایند تف‌جوشی قرار گرفت. شرایط فرآیند به‌گونه‌ای طراحی شد که چگالش بهینه و کنترل رشد دانه‌ها در نمونه حاصل شود. فرایند SPS، به‌دلیل اعمال هم‌زمان فشار و حرارت، امکان تولید مواد با چگالی بالا و ریزساختار یکنواخت را فراهم می‌کند. این روش به‌ویژه برای تف‌جوشی مواد کامپوزیتی حاوی ذرات نانومتری مناسب بوده و بهبود خواص مکانیکی و نوری آن‌ها را تضمین می‌کند.



شکل ۱- چرخه عملیات کلسینه‌شدن



شکل ۲- چرخه فرایند SPS.

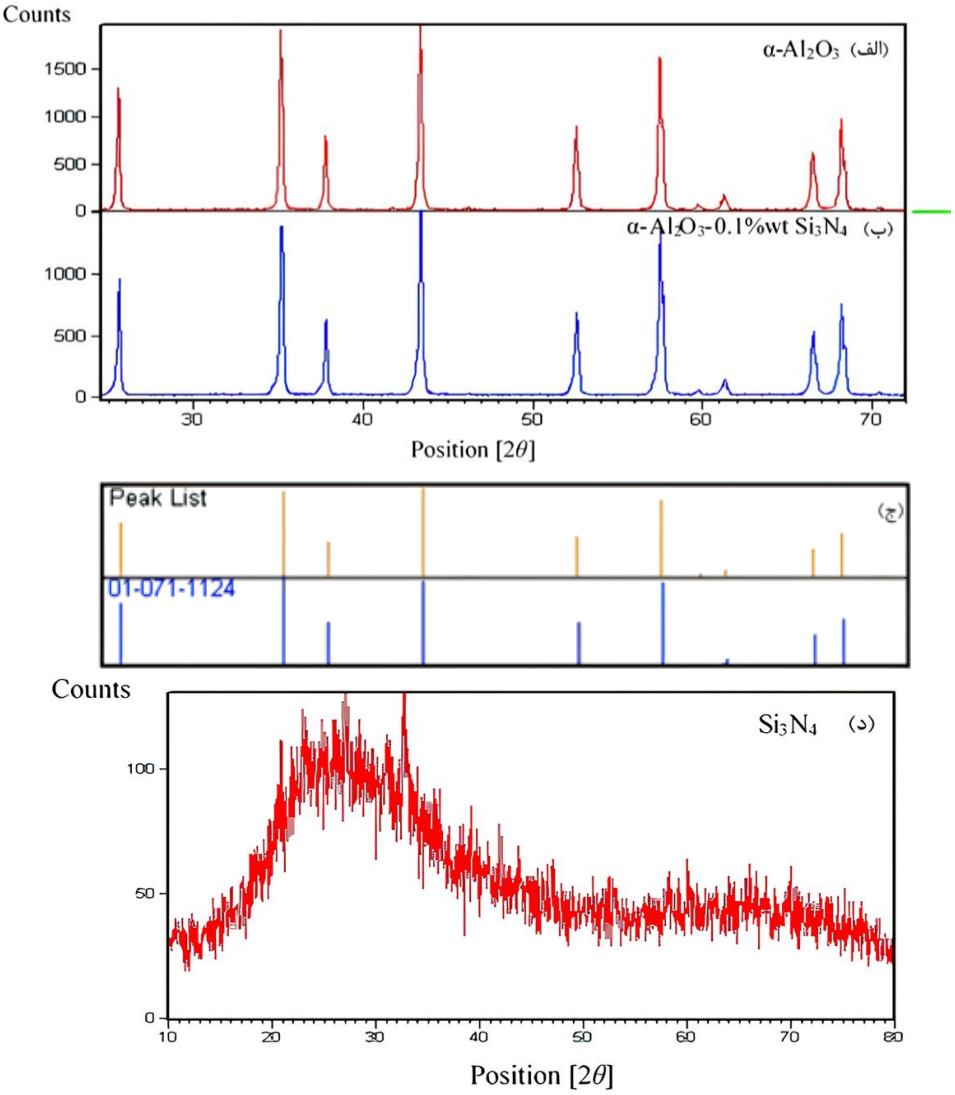
۲-۴- روش‌های مشخصه‌یابی

آزمایش پراش پرتو ایکس[15] به‌منظور شناسایی فازهای موجود در نمونه‌ها در محدوده زاویه‌ای ۸۰-۲۰ درجه و با طول موج ۱/۵۴۰۶ nm با استفاده از دستگاه X-Pert PMD Philips ساخت شرکت فیلیپس کشور هلند انجام شد. تحلیل پراش‌ها و شناسایی فازها از طریق پردازش اطلاعات با نرم‌افزار X-pert صورت گرفت. برای بررسی عناصر تشکیل‌دهنده، ریخت‌شناسی سطح نمونه‌ها و تعیین اندازه ذرات پودر، از میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی[16] مدل QUANTA FEG-450 ساخت شرکت FEI کشور امریکا استفاده گردید. همچنین، طیف‌سنجی مادون‌قرمز[17] با دستگاه TENSOR ساخت شرکت Bruker کشور آلمان برای بررسی میزان عبور پرتو مادون‌قرمز به‌کار گرفته شد. به‌منظور بهبود پراکندگی ذرات، از امواج فراصوت با توان ۱۵۰ وات از دستگاه UPH Ultrasonic ساخت شرکت توسعه فناوری مافوق صوت کشور ایران استفاده شد.

۳- نتایج و بحث

۳-۱- فاز و ریز ساختار پودرها

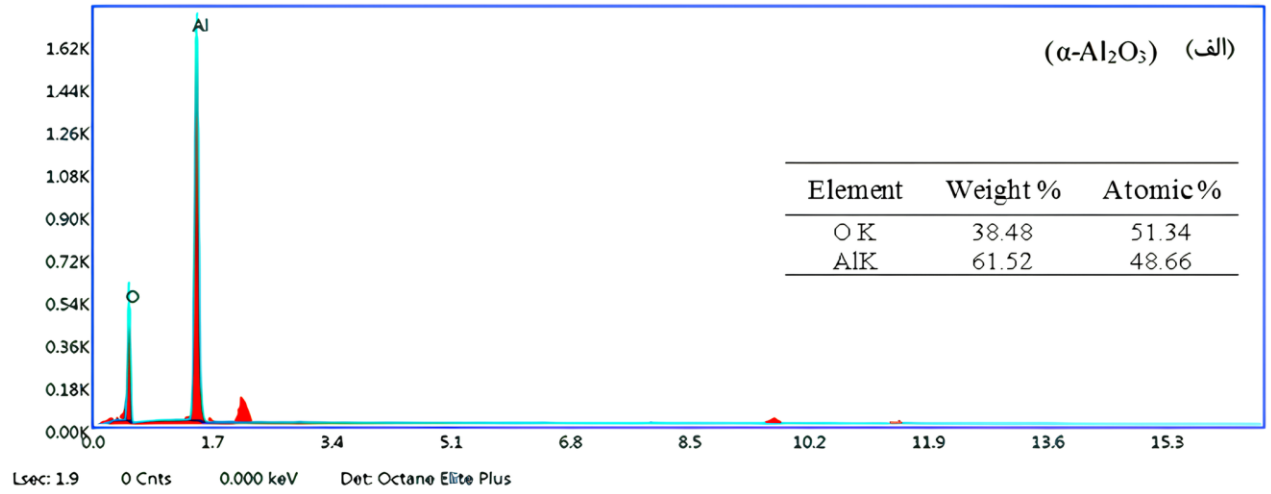
نتایج پراش پرتو ایکس (XRD) برای پودر آلومینای خالص و کامپوزیت α-Al_2O_3-0.1%Si_3N_4 به‌ترتیب در شکل‌های (۳-الف) و (۳-ب) نمایش داده شده‌اند. تحلیل این داده‌ها با

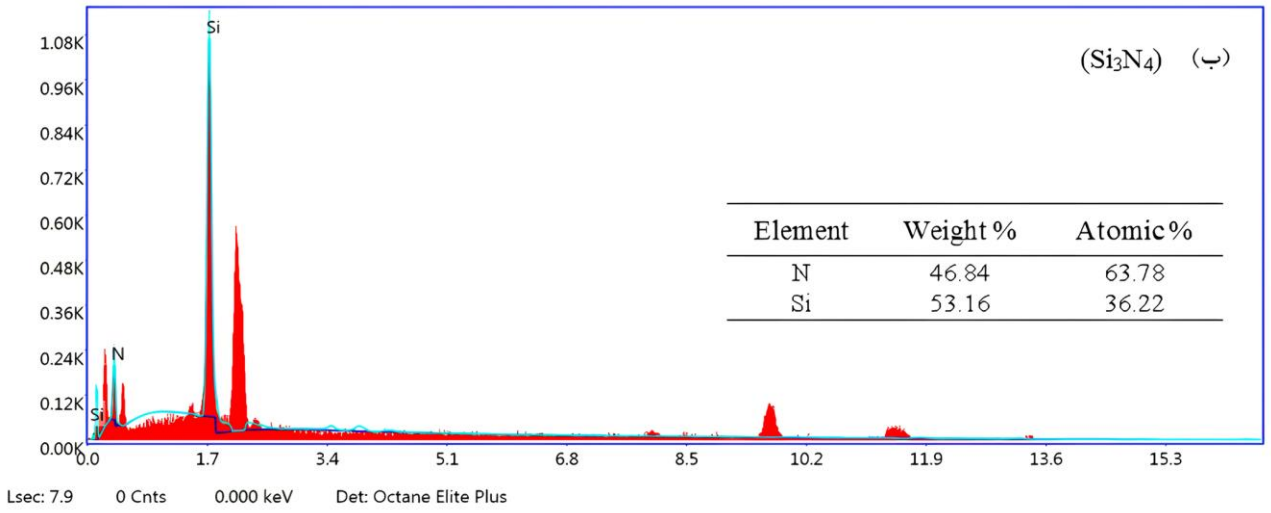


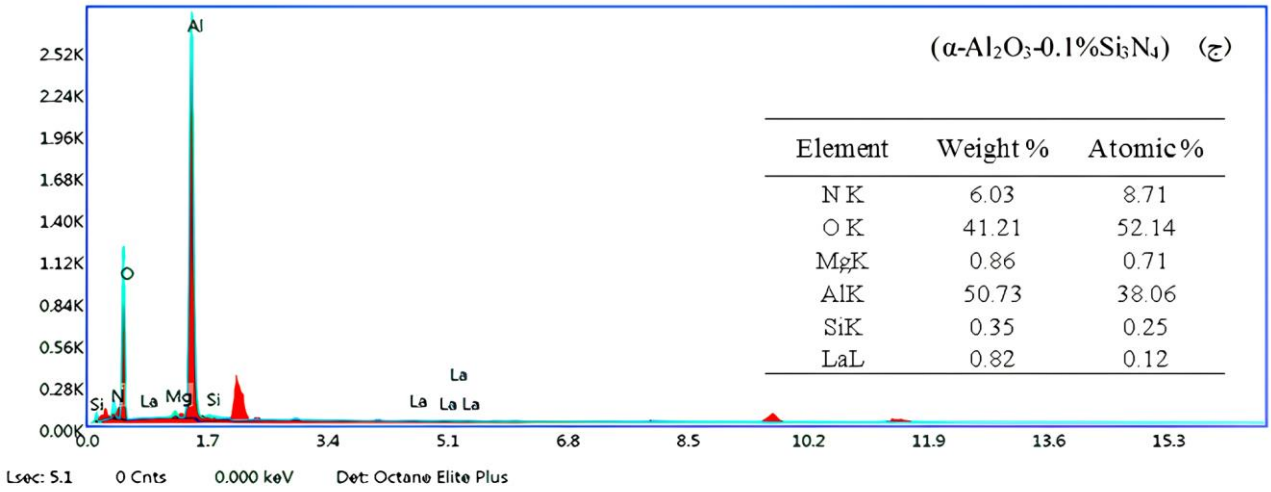
شکل ۳- آنالیز پراش پرتو ایکس نمونه‌های (الف) پودر آلومینا خالص، (ب) پودر کامپوزیت α-Al_2O_3-0.1%Si_3N_4، (ج) الگوی استاندارد، (د) پودر نیتریدسیلیسیم.

استفاده از نرم‌افزار X-pert انجام شد. مقایسه الگوی پراش آلومینای تقویت‌شده با الگوی استاندارد (شماره کارت JCPDS 01-071-1683) نشان می‌دهد که پیک‌های مشاهده‌شده به‌طور کامل با الگوی مرجع تطابق دارند (شکل ۳-ج). این انطباق تأیید می‌کند که ساختار بلوری شش‌ضلعی آلومینا در نمونه‌ها حفظ شده است. علاوه بر این، الگوی پراش پرتو ایکس برای پودر نانوذرات نیترید سیلیسیم نیز در شکل (۳-د) ارائه شده است. شکل (۴-الف) نتایج آنالیز طیف‌سنجی تفکیک انرژی پرتو[18] را برای ترکیب عنصری پودر آلومینای خالص نشان می‌دهد. در شکل (۴-ب)، ترکیب پودر نانوذرات نیترید سیلیسیم و در شکل (۴-ج)، ترکیب پودر کامپوزیت تقویت‌شده α-Al_2O_3-0.1%Si_3N_4 ارائه شده است.

در شکل (۵-الف)، ریخت‌شناسی ذرات پودر آلومینای خالص نمایش داده شده است که ساختاری یکنواخت و همگن را به‌تصویر می‌کشد. دانه‌های آلومینا دارای سطحی صاف و منظم بوده و توزیع اندازه ذرات بسیار یکنواخت است. این ویژگی‌ها نشان‌دهنده کیفیت بالای پودر آلومینا هستند.

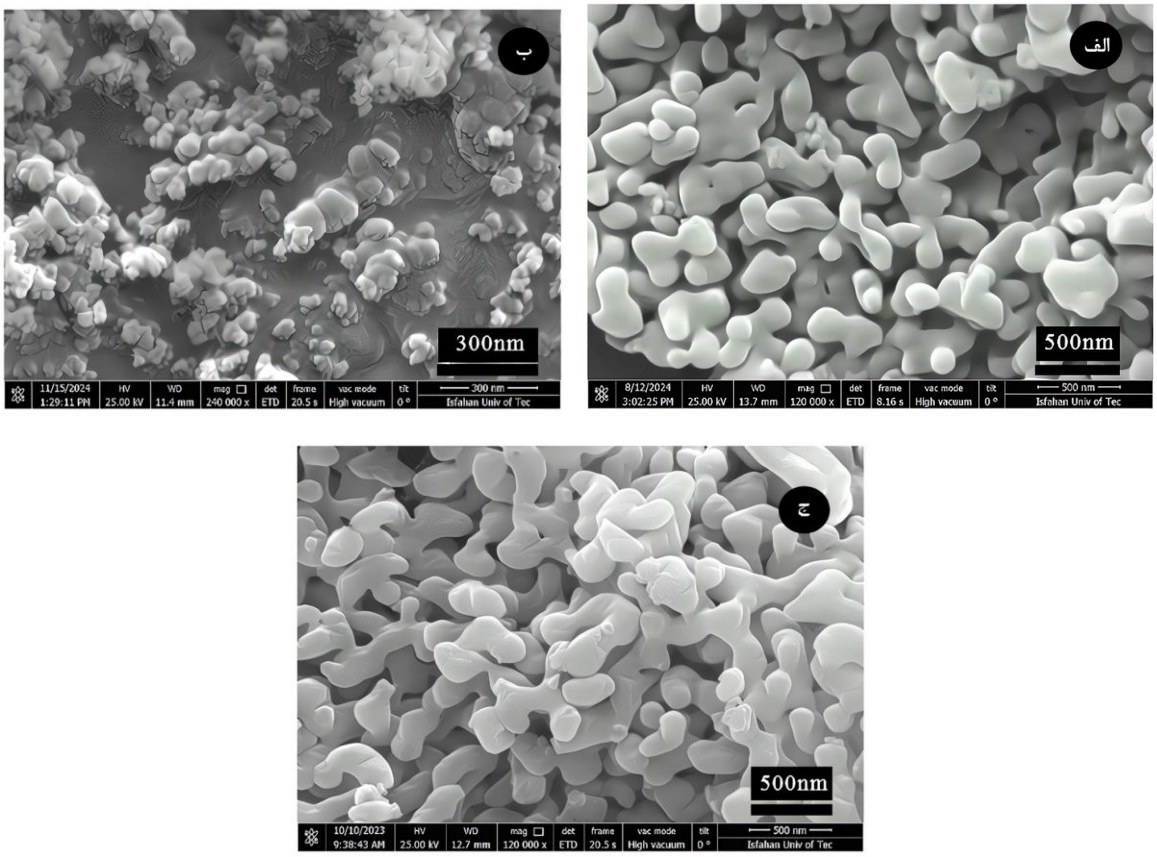






شکل ۴- آنالیز طیف‌سنجی تفکیک انرژی پرتو نمونه‌های

(الف) پودر آلومینا خالص، (ب) پودر نیترید سیلیسیم، (ج) کامپوزیت α-Al_2O_3-0.1%Si_3N_4.

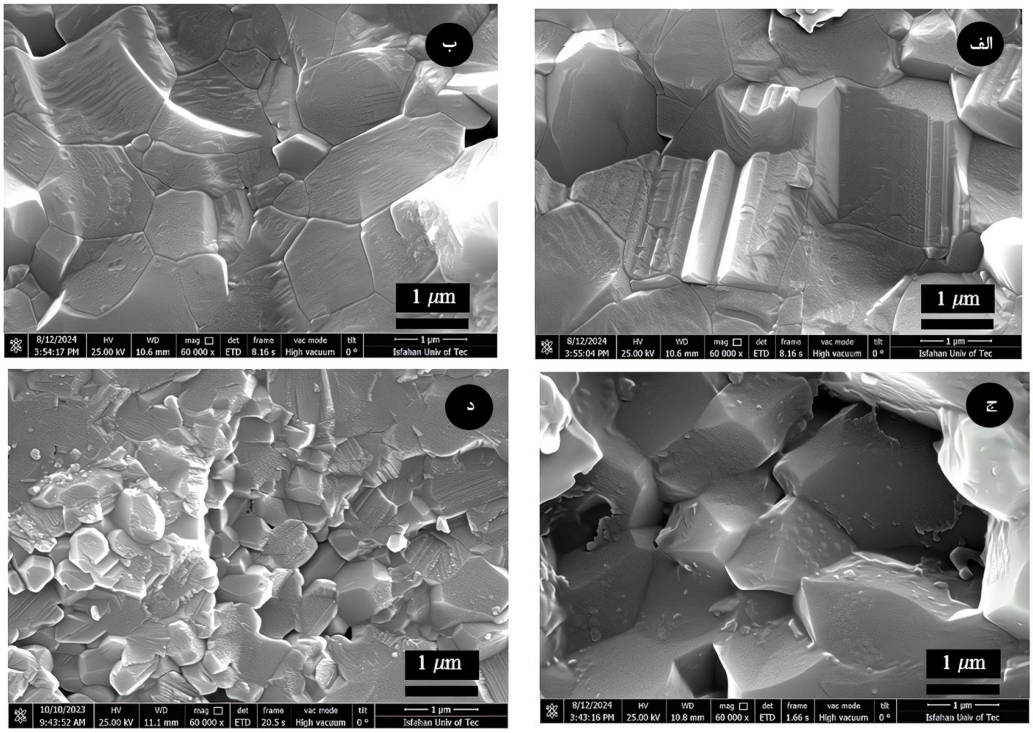


شکل ۵- تصاویر میکروسکوپی الکترونی روبشی گسیل میدانی پودر نمونه‌های (الف) آلومینا خالص، (ب) نیترید سیلیسیم آمورف، (ج) کامپوزیت α-Al_2O_3-0.1%Si_3N_4.

در شکل (۵-ب)، ساختار نانوذرات آمورف نیترید سیلیسیم (Si_3N_4) مشاهده می‌شود و شکل (۵-ج) ریخت‌شناسی کامپوزیت α-Al_2O_3-0.1%wtSi_3N_4 را نشان می‌دهد. حضور نانوذرات Si_3N_4 در این ساختار منجر به تغییرات قابل‌توجهی در مورفولوژی دانه‌ها شده است. ساختار دانه‌ها در این نمونه پیچیده‌تر و نامنظم‌تر به نظر می‌رسد و اندازه دانه‌ها نیز دستخوش تغییر شده است. تأثیر حضور نانوذرات Si_3N_4 بر مکانیسم‌های جوانه‌زنی و رشد دانه‌های آلومینا به وضوح قابل مشاهده است. این نانوذرات با ایفای نقش بازدارنده، فرآیند رشد دانه‌ها را کنترل کرده و از رشد بیش‌ازحد آن‌ها جلوگیری می‌کنند. نتیجه این تأثیرات، ایجاد ساختاری یکنواخت‌تر با مرزهای دانه‌ای بیشتر است. این ویژگی می‌تواند به کاهش پراکندگی نور در مرزهای دانه و در نهایت بهبود شفافیت نوری منجر شود. علاوه بر این، توزیع یکنواخت‌تر دانه‌ها و کاهش اندازه آن‌ها در نمونه کامپوزیتی، منجر به افزایش استحکام مکانیکی ماده نیز شده است.

۲-۳- اندازه دانه و ریزساختار مقاطع شکست

در شکل (۶)، ریزساختار و اندازه دانه‌های نمونه آلومینای خالص و کامپوزیت α-Al_2O_3-0.1%wtSi_3N_4 با استفاده از میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی (FESEM) مورد بررسی قرار گرفت. این نمونه‌ها با درصدهای وزنی مختلف ماده پراکنده‌ساز (۱، ۱/۵ و ۲ درصد) تهیه شدند. تصاویر میکروسکوپی نشان دادند که افزودن نانوذرات نقش مؤثری در کنترل اندازه دانه‌ها در شبکه آلومینا ایفا می‌کند. تحلیل تصاویر مربوط به نمونه کامپوزیتی حاکی از ساختاری با دانه‌های



شکل ۶- تصاویر میکروسکوپی الکترونی روبشی گسیل میدانی مقاطع شکست نمونه‌های (الف) آلومینا خالص، (ب) کامپوزیت با ۱ درصد DI، (ج) کامپوزیت با ۱/۵ درصد DI، (د) کامپوزیت با ۲ درصد DI.

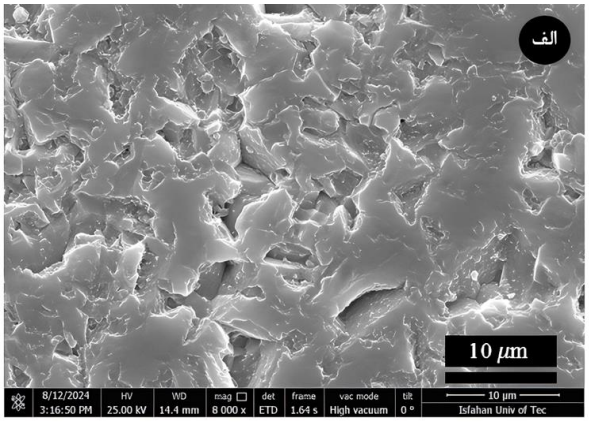
کوچک‌تر نسبت به آلومینای خالص بود. این کاهش اندازه دانه‌ها به اثر مهارکنندگی نیترید سیلیسیم در رشد دانه‌های آلومینا نسبت داده شد. همچنین، افزایش درصد ماده پراکنده‌ساز تا دو درصد وزنی، منجر به کاهش تخلخل ساختاری کامپوزیت و بهبود چگالی و کیفیت ساختاری آن گردید. کاهش اندازه دانه‌ها تأثیر مستقیم بر کاهش پراکندگی نور در مرز دانه‌ها داشت. مرز دانه‌ها به‌عنوان یکی از عوامل اصلی پراکندگی نور در مواد چندبلوری شناخته می‌شوند. هرچند کوچک‌تر شدن دانه‌ها تعداد مرزهای دانه در واحد حجم را افزایش می‌دهد، اما کاهش سطح هر مرز به کاهش کلی پراکندگی نور منجر می‌شود. علاوه بر این، کوچک‌تر شدن دانه‌ها ساختاری یکنواخت‌تر ایجاد کرده و ناهمسانگردی‌های نوری را کاهش داده و در نتیجه عبور نور را بهبود بخشیده است. تأثیر کاهش اندازه دانه‌ها بر تراکم‌پذیری ماده نیز قابل توجه بود. فرآیندهایی مانند تف‌جوشی پلاسمای جرقه‌ای (SPS)، در حضور دانه‌های کوچک‌تر، تراکم‌پذیری بهتری ایجاد کرده و تخلخل‌ها را به میزان قابل‌توجهی کاهش دادند. با توجه به اینکه تخلخل‌ها از عوامل اصلی کاهش شفافیت مواد هستند، کاهش آن‌ها عبور نور را افزایش داد. به‌طور کلی، کاهش اندازه دانه‌ها از طریق حذف موانع نوری مانند تخلخل و کاهش پراکندگی در مرز دانه‌ها،بهبود همگنی ساختاری و کاهش ناهمسانگردی‌های نوری را به همراه داشت. این عوامل منجر به افزایش شفافیت و بهبود عبور نور در ماده شدند.

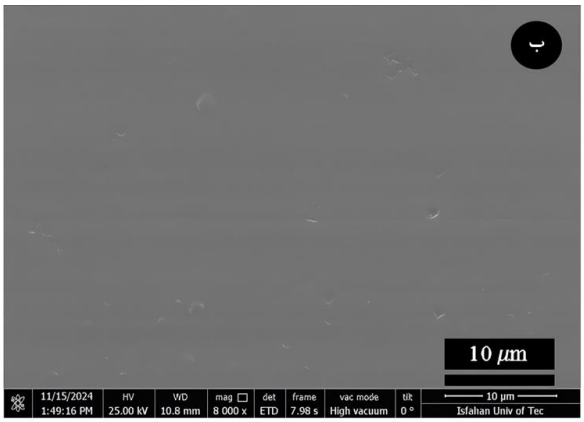
۳-۳- چگالی

چگالی نمونه‌های تهیه‌شده به روش متالورژی پودر با استفاده از اصل ارشمیدس اندازه‌گیری شد. این روش بر اساس محاسبه حجم آب جابه‌جا شده توسط جسم غوطه‌ور عمل می‌کند و معیاری مؤثر برای تعیین چگالی مواد متخلخل ارائه می‌دهد. اندازه‌گیری‌ها در این پژوهش مطابق استاندارد ASTM B962–08,13 انجام شد (۱۰ و ۲۹). برای محاسبه چگالی ترکیبی و چگالی ظاهری نمونه‌ها، از روابط (۱) و (۲) استفاده گردید.

جدول ۲- مقایسه چگالی نمونه α-Al_2O_3 خالص و α-Al_2O_3-0.1%Si_3N_4

شماره	نمونه	وزن (gr)		چگالی ترکیب	چگالی بالک	چگالی نسبی
		واقعی (m)	ظاهری (m')	(gr/cm^3)	(gr/cm^3)	
۶	Alumina+0.1%wt Si_3N_4+2%Dl	۱/۰۵۲۷	۰/۷۸۶۸	۳/۹۷۷	۳/۹۶۰	۹۹/۵۷
۱	Alumina (Pure)	۱/۰۴۰۴	۰/۷۵۸۴	-	۳/۶۸۶	۹۲/۸۷





شکل ۷- تصاویر میکروسکوپی الکترونی روبشی گسیل میدانی سطح نمونه‌های (الف) آلومینا خالص، (ب) Alumina+0.1%wt Si_3N_4+2%Dl.

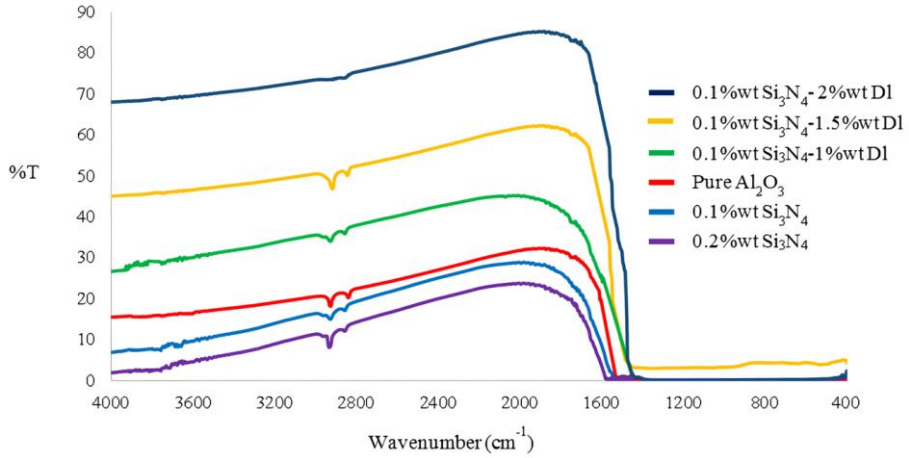
نتایج حاصل که در جدول (۲) ارائه شده‌اند، نشان دادند که بیش‌ترین چگالی به نمونه (۶) تعلق دارد، درحالی‌که کم‌ترین مقدار چگالی در نمونه خالص α-Al_2O_3 (نمونه ۱) مشاهده شد. تحلیل داده‌ها نشان داد که افزودن کمک‌تف‌جوش‌های MgO و La_2O_3 همراه با عامل پراکنده‌ساز Dl تأثیر چشمگیری بر کاهش اندازه ذرات پودر، بهبود پراکندگی ذرات و حذف حفرات در نمونه‌های کامپوزیتی داشته است. این تغییرات منجر به افزایش چگالی و کاهش تخلخل نمونه‌های کامپوزیتی شد. اختلاف مشاهده‌شده میان چگالی نمونه خالص α-Al_2O_3 و نمونه‌های کامپوزیتی عمدتاً به دلیل اندازه بزرگ‌تر ذرات پودر و حجم بالاتر حفرات و فضاهای خالی در نمونه خالص بود. همان‌طور که در شکل (۷) نشان داده شده است، کاهش تخلخل و افزایش چگالی به‌طور مستقیم باعث بهبود خواص نوری و افزایش عبور پرتوهای مادون قرمز گردید. این تغییرات ساختاری با کاهش پراکندگی نور و بهبود شفافیت نوری نمونه‌ها همراه بود.

$$\text{چگالی ترکیب} = m_\rho = \frac{M}{\frac{m_1}{D_1}+\frac{m_2}{D_2}} \quad (۱)$$

$$\text{چگالی ظاهری} = \rho = \frac{m}{m-m'}\times\rho \quad (۲)$$

۳-۴- تأثیر La_2O_3 و MgO بر ساختار و شفافیت آلومینا

La_2O_3 و MgO به‌عنوان دو افزودنی کلیدی در بهبود خواص نوری و مکانیکی سرامیک‌های آلومینا شناخته می‌شوند. اگرچه هر دو ماده محدوده عبور مشابهی در بازه ۰/۸–۲۵ μm دارند، تأثیر آن‌ها بر شفافیت و عبور امواج مادون قرمز متفاوت است. MgO عمدتاً به‌عنوان یک کمک‌تف‌جوش عمل می‌کند و تأثیر محدودی بر



شکل ۸- تأثیر درصد وزنی نیترید سیلیسیم و ماده پراکنده‌ساز بر عبور پرتو مادون قرمز.

کاهش پراکندگی نور دارد. این ماده نقش اصلی خود را در تسهیل فرآیند تف‌جوشی ایفا می‌کند، اما توانایی آن در کنترل رشد دانه‌ها محدود است. در نتیجه، حضور MgO منجر به ایجاد ساختاری با دانه‌های بزرگ‌تر می‌شود که می‌تواند پراکندگی نور را افزایش داده و شفافیت نوری را کاهش دهد (۱۹–۲۴). در مقابل، La_2O_3 با ویژگی‌های ساختاری و رفتار بلوری خاص خود، تأثیر قابل‌توجهی بر بهبود شفافیت نوری آلومینا دارد. یون‌های لانتانیدی موجود در La_2O_3، به دلیل خواص الکترونیکی و ساختاری منحصربه‌فرد، قادرند پراکندگی نور را در مرزهای دانه‌ها کاهش دهند و در نتیجه شفافیت نوری را افزایش دهند. علاوه بر این، La_2O_3 با محدود کردن رشد دانه‌ها، ساختاری ریزدانه‌تر ایجاد می‌کند. این ویژگی نقش مهمی در کاهش پراکندگی نور و بهبود عبور پرتوهای مادون قرمز دارد (۲۸–۲۵).

۳-۵- تأثیر نانوذرات Si_3N_4 و ماده پراکنده‌ساز در بهبود عبور پرتو مادون قرمز آلومینا

نانوذرات Si_3N_4 با ضریب شکست ۲/۰۱۶ که نزدیک به ضریب شکست آلومینا ۱/۷۶۸ است، نقش مهمی در کاهش پراکندگی نور و بهبود شفافیت نوری آلومینا ایفا می‌کنند. این نانوذرات با قرارگیری در مرزهای دانه‌های آلومینا، از رشد بیش‌ازحد دانه‌ها در طول فرآیند تف‌جوشی جلوگیری کرده و به ایجاد ساختاری ریزدانه و یکنواخت کمک می‌کنند. کاهش اندازه دانه‌ها و تشکیل ساختاری همگن و ریزدانه‌ای، منجر به کاهش پراکندگی نور در مرز دانه‌ها شده و عبور پرتوهای مادون قرمز را بهبود می‌بخشد. این تأثیرات به‌طور مستقیم در ارتقای خواص نوری و شفافیت آلومینا مشاهده می‌شود (۱۰ و ۱۶–۱۳). مطابق شکل (۷)، استفاده از دو درصد وزنی ماده پراکنده‌ساز تأثیر قابل‌توجهی بر توزیع یکنواخت نانوذرات در ساختار آلومینا داشته است. این ماده با کاهش تجمع نانوذرات و ایجاد ساختاری همگن‌تر، موجب کاهش عیوب ساختاری، تخلخل و پراکندگی نور شده و در نتیجه عبور پرتوهای مادون قرمز را افزایش می‌دهد. افزودن ۰/۱ درصد وزنی نانوذرات نیترید سیلیسیم در کنار دو درصد وزنی ماده پراکنده‌ساز، به دلیل توزیع یکنواخت نانوذرات و کاهش عیوب ساختاری نظیر مرزهای دانه و تخلخل‌ها، باعث بهبود قابل‌توجه عبور پرتو مادون قرمز آلومینا شد. در این شرایط، عبور پرتو مادون قرمز به حداکثر مقدار خود (۸۵ درصد) در طول موج‌های ۵–۵/۵ میکرومتر رسید. در مقابل، کاهش عبور پرتو مادون قرمز در ۰/۲ درصد وزنی نانوذرات، به تجمع ذرات در ساختار آلومینا نسبت داده شد. این تجمعات باعث افزایش پراکندگی نور و کاهش عبور پرتو مادون قرمز گردید. این یافته‌ها نشان می‌دهد که ۰/۱ درصد وزنی نانوذرات سیلیسیم نیترید ترکیب بهینه‌ای برای دستیابی به ساختاری همگن و شفافیت نوری مطلوب است (شکل ۸).

۳-۶- تحلیل طیف‌سنجی عبور پرتو مادون قرمز آلومینا

شکل (۸) طیف‌سنجی عبور پرتو مادون قرمز آلومینا را در محدوده cm^{-1} ۲۰۰۰-۱۰۰۰ نمایش می‌دهد. تغییرات شدت قله‌ها در این محدوده نشان‌دهنده حضور و تأثیر نانوذرات Si_3N_4 در ساختار بلوری آلومینا است. پیک‌های جذب مشاهده‌شده در ناحیه cm^{-1} ۳۲۰۰-۲۸۰۰ به ارتعاشات کششی پیوندهای C-H نسبت داده می‌شوند که ناشی از گروه‌های متیل و متیلن موجود در ساختار نمونه‌ها هستند. این پیک‌ها ممکن است به دلیل حضور ناخالصی‌های آلی، بقایای مواد شیمیایی استفاده‌شده در مراحل آماده‌سازی نمونه یا سایر مواد پراکنده‌ساز باشند. در محدوده عدد موج cm^{-1} ۴۰۰۰-۳۰۰۰، عدم مشاهده پیک‌های مربوط به گروه‌های هیدروکسیل[19] (OH-) نشان‌دهنده عدم تشکیل این گروه‌ها بر سطح نمونه‌ها است.

۴- نتیجه‌گیری

در این پژوهش، تأثیر نانوذرات آمورف نیترید سیلیسیم و کمک‌تف‌جوش‌های منیزیا و لانتانیا بر بهبود خواص نوری آلومینای پلی‌کریستال بررسی شد. نتایج نشان داد که افزودن ۰/۱ درصد وزنی نانوذرات نیترید سیلیسیم به‌عنوان مهارکننده رشد دانه‌ها، همراه با دو درصد وزنی ماده پراکنده‌ساز و بهینه‌سازی شرایط فرآیند با اسیدیته pH=۱۰، منجر به کاهش عیوب ساختاری و دستیابی به توزیع یکنواخت ذرات در دوغاب گردید. این تغییرات، عبور پرتو مادون‌قرمز را تا ۸۵ درصد در بازه طول‌موج ۵/۵-۵ میکرومتر افزایش داد. تصاویر میکروسکوپی، کاهش اندازه دانه‌ها و بهبود همگنی ریزساختار کامپوزیت در حضور نانوذرات نیترید سیلیسیم را تأیید کردند.

همچنین، تحلیل پراش پرتو ایکس نشان داد که ساختار بلوری شش‌ضلعی آلومینا در تمامی نمونه‌ها حفظ شده است. نتایج این پژوهش نشان می‌دهند که استفاده از نانوذرات نیترید سیلیسیم، همراه با بهینه‌سازی فرآیند تف‌جوشی، امکان تولید آلومینای شفاف با خواص نوری بهبودیافته را فراهم می‌سازد. این مواد می‌توانند در سامانه‌های حساس به پرتو مادون‌قرمز، از جمله سامانه‌های هدایت موشکی، کاربردهای مؤثری داشته باشند.

تشکر و سپاسگزاری

نویسندگان بر خود لازم می‌دانند مراتب تشکر صمیمانه خود را از دانشکده مهندسی مواد، دانشگاه صنعتی مالک اشتر بابت حمایت مالی و فنی را به‌عمل آورند.

تضاد منافع

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

سهم نویسندگان

مهدی دارابی: جمع‌آوری، تحلیل و تفسیر داده‌ها، اعتبارسنجی نتایج، نظارت بر پروژه، نگارش مقاله. **احسان محمدشریفی:** راهنمایی پروژه، مدیریت منابع و تجهیزات. **رضا وفایی:** راهنمایی و نظارت بر پروژه. **اکبر اسحاقی:** راهنمایی پروژه، اعتبارسنجی نتایج. **محمد رضا لقمان استرکی:** مشاور پروژه، طراحی و ایده‌پردازی، اعتبارسنجی نتایج، نظارت بر پروژه.

واژه‌نامه

1. infrared waves
2. aluminum oxynitride (Alon)
3. magnesium aluminum (Spinel)
4. spark plasma Sintering (SPS)
5. co-doping
6. Merck
7. poly (methyl methacrylate)
8. Zschimmer & Schwarz
9. US Nano
10. Taguchi method
11. deionized water
12. ultrasonic vibrations waves
13. potential of hydrogen (pH)
14. calcination

15. X-ray diffraction (XRD)
16. field emission scanning electron microscopy (FESEM)
17. infrared (IR) spectroscopy
18. energy dispersive X-ray spectroscopy (EDS)
19. hydroxy group (-OH)

مراجع

1. Jiang D, Hulbert DM, Anselmi-Tamburini U, Ng T, Land D, Mukherjee AK. Optically transparent polycrystalline Al_2O_3 produced by spark plasma sintering. J Am Ceram Soc. 2008 ;91(1):151-4. https://doi.org/10.1111/j.1551-2916.2007.02086.x
2. Gledhill AD, Li D, Mroz T, Goldman LM, Padture NP. Strengthening of transparent spinel/Si_3N_4 nanocomposites. Acta Mater. 2012;60(4):1570-5. https://doi.org/10.1016/j.actamat.2011.11.053
3. Apetz R, Van Bruggen MP. Transparent alumina: a light-scattering model. J Am Ceram Soc. 2003;86(3):480-6. https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.2003.tb03325.x
4. Krell A, Hutzler T, Klimke J. Transmission physics and consequences for materials selection, manufacturing, and applications. J Eur Ceram Soc. 2009;29(2):207-21. https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2008.03.025
5. Krell A, Baur GM, Dahne C. Transparent sintered sub-μm Al_2O_3 with IR transmissivity equal to sapphire. In: Window and Dome Technol Mater. 2003; 5078:199-207. https://doi.org/10.1117/12.485770
6. Zhang J, Liu F, Liu P, He D. Transparent alumina nanoceramics prepared under high pressure and low temperature. Adv Eng Mater. 2023;25(5):2101413. https://doi.org/10.1002/adem.202101413
7. Ratzker B, Wagner A, Kalabukhov S, Frage N. Improved alumina transparency achieved by high-pressure spark plasma sintering of commercial powder. Ceram Int. 2020;46(13):21794-9. https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2020.05.198
8. Boldin MS, Popov AA, Lantsev EA, Nokhrin AV, Chuvil'deev VN. Investigation of the densification behavior of alumina during spark plasma sintering. Materials. 2022;15(6):2167. https://doi.org/10.3390/ma15062167
9. Loghman Estarki MR, Abedi Vellashani F, Moinifard F, Milani M, Kumar A, Ghazi MR, Sardarian M. Investigations of selected mechanical, wear properties and transparency of alumina obtained by combined PIM and SPS techniques. J Korean Ceram Soc. 2022;59(6):909-19. https://doi.org/10.1007/s43207-022-00233-w
10. Polyanskiy MN. Refractiveindex.info database of optical constants. Sci Data. 2024;11(1):94. https://doi.org/10.1038/s41597-023-02898-2
11. Milisavljevic I, Pitcher MJ, Li J, Chenu S, Allix M, Wu Y. Crystallization of glass materials into transparent optical ceramics. Int Mater Rev. 2023;68(6):648-76. https://doi.org/10.1080/09506608.2022.2107372
12. Zhang J, Zhang C, Zhang S, Zhang W. Mechanical properties and toughening mechanism of B_4C–Al_2O_3 composite ceramics prepared by hot-press sintering. Ceram Int. 2024;50(13):24499-507. https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2024.04.183
13. Shi Y, He Q, Wang A, Ren Y, Wang J, Wang H, Wang W, Fu Z. Effect of additive content on texture evolution and mechanical properties of Si_3N_4 ceramics prepared by hot pressing. Mater Sci Eng A. 2024; 898:146348. https://doi.org/10.1016/j.msea.2024.146348
14. Yin J, Li X, Zhang X, Yu S, Lai Y. Progress in sintering technology of transparent polycrystalline alumina ceramics. J Adv Dielectr. 2024;14(6). https://doi.org/10.1142/S2010135X23300025
15. An L, Shi R, Mao X, Zhang B, Li J, Zhang J, Wang S. Fabrication of AlON transparent ceramics with Si_3N_4 sintering additive. J Adv Ceram. 2023;12(7). https://doi.org/10.26599/JAC.2023.9220760
16. Zhang Z, Liu Y, Liu H. Mechanical properties and microstructure of spark plasma sintered Al_2O_3-SiCW-Si_3N_4 composite ceramic tool materials. Ceram Int. 2022;48(4):5527-34. https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2021.11.097
17. Jiang D, Hulbert DM, Anselmi-Tamburini U, Ng T, Land D, Mukherjee AK. Spark plasma sintering and forming of transparent polycrystalline Al_2O_3 windows and domes. In: Window and Dome Technol Mater X. 2007; 6545:86-93. https://doi.org/10.1117/12.730861
18. Parish MV, Pascucci MR, Rhodes WH. Aerodynamic IR domes of polycrystalline alumina. In: Window and Dome Technol Mater IX. 2005; 5786:195-205. https://doi.org/10.1117/12.604596
19. Gao H, Alkaaby HH, Hachim SK, Lafta HA, Zahra MM, Abbas ZS, Kubaisy MM, Rheima AM, Al-Majdi K, Shams MA, Estarki MR. Investigation of mechanical properties and transparency of spark plasma sintered Mg^{2+} and Y^{3+} codoped α-Al_2O_3 nanoparticles synthesized via coprecipitation. J Mater Res Technol. 2023; 23:1052-61. https://doi.org/10.1016/j.jmrt.2023.01.020
20. Kim DS, Lee JH, Sung RJ, Kim SW, Kim HS, Park JS. Improvement of translucency in Al_2O_3 ceramics by two-step sintering technique. J Eur Ceram Soc. 2007; 27(13-15): 3629-32. https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2007.02.002
21. Chakravarty D, Bysakh S, Muraleedharan K, Rao TN, Sundaresan R. Spark plasma sintering of magnesia-doped alumina with high hardness and fracture toughness. J Am Ceram Soc. 2008;91(1): 203-8.

https://doi.org/10.1111/j.1551-2916.2007.02094.x
22. Xuan S, Tian Y, Kong X, Hao J, Wang X. Effect of different MgO/Al_2O_3 ratios on microstructural densification, sintering process and mechanical property of $MgAl_2O_4$ materials. J Mater Res Technol. 2023; 25: 2518-26. https://doi.org/10.1016/j.jmrt.2023.06.044
23. Jia XT, Zhang ZH, Xu TH, Liu LJ, Sun YH, Li XY, Wang Q, Jia ZH, He YY, Cheng XW. Effects of sintering aids on microstructure, mechanical, and optical properties of AlON ceramics synthesized by SPS. J Am Ceram Soc. 2023; 106(10):6301-16. https://doi.org/10.1111/jace.19239
24. Park CW, Yoon DY. Effects of SiO_2, CaO_2, and MgO additions on the grain growth of alumina. J Am Ceram Soc. 2000; 83(10): 2605-9. https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.2000.tb01596.x
25. Stuer M, Zhao Z, Aschauer U, Bowen P. Transparent polycrystalline alumina using spark plasma sintering: effect of Mg, Y and La doping. J Eur Ceram Soc. 2010; 30(6):1335-43. https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2009.12.001
26. Aydogmus D, Duygulu O, Sahin FC. In-situ spark plasma sintering behavior of La_2O_3–Y_2O_3 co-doped AlON ceramics: An attempt to prevent carbon contamination. J Mater Res Technol. 2023; 27:2323-35. https://doi.org/10.1016/j.jmrt.2023.10.047
27. He Q, Yang C, Yang L, Xu X. Innovative solid liquid method for lowering the ductile to brittle transition temperature of a La_2O_3 doped tungsten alloy. SSRN Electron J. 2024. http://dx.doi.org/10.2139/ssrn.4741607
28. Roussel N, Lallemant L, Chane-Ching JY, Guillemet-Fristch S, Durand B, Garnier V, Bonnefont G, Fantozzi G, Bonneau L, Trombert S, Garcia-Gutierrez D. Highly dense, transparent α-Al_2O_3 ceramics from ultrafine nanoparticles via a standard SPS sintering. J Am Ceram Soc. 2013; 96(4):1039-42. https://doi.org/10.1111/jace.12255
29. Shi X, Zhai W, Wang M, Xu Z, Yao J, Song S, ud Din AQ, Zhang Q. Tribological performance of Ni_3Al–15 wt% Ti_3SiC_2 composites against Al_2O_3, Si_3N_4 and WC-6Co from 25 to 800 °C. Wear. 2013;303(1-2):244-54. https://doi.org/10.1016/j.wear.2013.03.034