



نقش مدت زمان آلیاژسازی مکانیکی در ریزساختار و رفتار حرارتی و مکانیکی کامپوزیت‌های واکنشی Al-Ni

علی علیزاده^{1*}، محمد استخری²، محمدرضا زحمتکش²، مهدی عبدالهی آذغان³

1- دانشیار، مهندسی مواد، دانشگاه مالک اشتر، تهران

2- فارغ‌التحصیل کارشناسی ارشد، مهندسی مواد مرکب، دانشگاه مالک اشتر، تهران

3- دانشجوی دکتری، مهندسی مواد مرکب، دانشگاه مالک اشتر، تهران

* تهران، صندوق پستی 1774-15875، A_Alizadeh@mut.ac.ir

چکیده

اطلاعات مقاله:

دریافت: 1401/01/23
 پذیرش: 1401/05/08
کلیدواژگان
 کامپوزیت‌های واکنشی، خواص فشاری، خواص حرارتی، آلیاژسازی مکانیکی

کامپوزیت‌های واکنشی گروه جدیدی از مواد کامپوزیتی که متشکل از دو یا چند ماده هستند؛ به طوری که در شرایط محیطی قادر به اشتعال یا انفجار نیستند، ولی در اثر شوک و بارهای ضربه‌ای شدید و افزایش دما، قابلیت آزادسازی انرژی زیادی را دارند. هدف این تحقیق، بررسی اثر مدت زمان آسیاکاری بر ریزساختار و خواص حرارتی و خواص مکانیکی کامپوزیت Al-Ni است. به این منظور، ترکیب Al-Ni با نسبت مولی 2:1 در 0.5، 1، 2، 4 و 6 ساعت آسیاکاری و مخلوط شدند. سپس نمونه‌ها پرس سرد شده، و در دمای 400 °C به مدت یک ساعت تحت اتمسفر گاز خنثی تفجوشی شدند. ریزساختار به وسیله میکروسکوپ الکترونی روبشی نشر میدانی (FESEM) و XRD آنالیز شد. برای بررسی خواص حرارتی از DSC و DTA و برای خواص مکانیکی از آزمون فشار و هایپکینسون استفاده شده است. نتایج آزمون DSC نشان داد که با افزایش زمان آسیاکاری دمای شروع واکنش از 650.34 °C در نمونه 0.5 ساعت آسیاکاری شده به 645.84 °C در نمونه 6 ساعت آسیاکاری شده و گرمای واکنش (آنتالپی) از 26.87 J/g به 14.84 J/g کاهش پیدا کرد. نتایج آزمون فشار و هایپکینسون برای نمونه با 6 ساعت آسیاکاری به ترتیب افزایش 21 و 42 درصدی استحکام فشاری را در مقایسه با نمونه با 0.5 ساعت آسیاکاری نشان داد. همچنین نتایج نشان داد با افزایش نرخ کرنش از 0.01 s⁻¹ (در آزمون فشار) به 1000 s⁻¹ (در آزمون هایپکینسون) تنش فشاری افزایش می‌یابد.

The role of mechanical alloying time on the thermal and mechanical behavior of Ni/Al reactive composites

Ali Alizadeh^{1*}, Mohammad Estakhri¹, Mohammad Reza Zahmatkesh¹, Mehdi Abdollahi Azghan¹

1- Complex of Material and Manufacturing Technology, Malek Ashtar University, Tehran, Iran

* P.O.B. 1774-15875, Tehran, Iran, A_Alizadeh@mut.ac.ir

Keywords

Reactive composites, Compressive properties, Thermal properties, Mechanical alloying

Abstract

Reactive composites are a new group of composite materials consisting of two or more materials that cannot ignite or explode in the Environmental conditions, but can release a lot of energy due to shock and severe impact loads. This study aimed to investigate the effect of milling time on the microstructure, thermal and mechanical properties of the Al-Ni composite. For this purpose, the Al-Ni compound with a 2:1 Al-Ni molar ratio was milled for 0.5, 1, 2, 4 and 6 hours in attrition mill and mixed. Then the samples were cold press and sintered at 400 °C under argon atmosphere for one hour. The microstructure of samples was analyzed by field emission scanning electron microscope (FESEM) and XRD. To investigate the thermal properties, DSC and DTA analysis, and for mechanical properties, compression test and Hopkinson test were used. The DSC analysis results showed that by increasing the milling time, the reaction start temperature decreased from 650.34 °C in the sample milled to 0.5 hour to 645.84 °C the sample milled to 6 hour and the reaction heat (enthalpy) decreased from 26.87 J/g to 14.84 J/g. The results of compression and Hopkinson tests of samples after 6 hours milling time showed 21 and 42 percent increase in compressive strength, respectively compared to samples after 0.5 hours milling time. Also, the results showed that the compressive strength increased by changing the strain rate from 0.01 s⁻¹ (in the pressure test) to 1000 s⁻¹ (in the Hopkinson test).

Please cite this article using:

برای ارجاع به مقاله از عبارت زیر استفاده کنید:

Alizadeh, A., Estakhri, M., Zahmatkesh, M. R., Abdollahi Azghan, M., "The role of mechanical alloying time on the thermal and mechanical behavior of Ni/Al reactive composites," In Persian, Journal of Science and Technology of Composites, Vol. 8, No. 4, pp. 1817-1825, 2022.

https://doi.org/10.22068/JSTC.2022.551087.1777

1- مقدمه

مواد پرانرژی رایج به صورت ترکیبات تک‌مولکولی هستند که TNT^1 و RDX^2 از مهم‌ترین مواد تک‌مولکولی انفجاری می‌باشند. انرژی تولید شده این مواد پرانرژی توسط آنتالپی واکنش محدود می‌شود. همچنین چگالی انرژی تولید شده در اثر احتراق این نوع مواد نسبتاً پایین بوده و سرعت احتراق آن‌ها به صورت لحظه‌ای است. به طوری که TNT در حدود 18 kJ/g به ازای واحد جرم و 28 kJ/cm^3 به ازای واحد حجم، انرژی تولید می‌کند. بررسی و تحقیقات برای دست آوردن مواد جدیدتر با انرژی بیشتر، محققین را به سمت سوخت‌های فلزی در شرایط واکنش‌پذیری خاص سوق داد. مواد واکنشی (RSM^3)، کامپوزیت‌های پرانرژی تازه توسعه‌یافته‌ای هستند، که معمولاً از دو یا چند ماده جامد تشکیل شده‌اند، که خاصیت انفجاری ندارند. مواد واکنش‌پذیر در دمای اتاق و فشار اتمسفر بی‌اثر هستند، اما می‌توانند تحت بار ضربه شدید تحت واکنش‌های شیمیایی قرار گیرند. این مواد دارای ویژگی‌هایی بهتر مانند چگالی انرژی بالاتر، سرعت آزادسازی انرژی سریع‌تر و افزایش ایمنی در مقایسه با مواد منفجره سنتی مانند TNT و RDX هستند. ترکیب‌های مختلف کامپوزیت‌های واکنشی نظیر کامپوزیت‌های زمینه فلزی، فلزات قابل احتراق و غیره به طور گسترده مورد مطالعه قرار گرفته‌اند. در این میان، کامپوزیت‌های بر پایه Al-Ni به دلیل استحکام بالا عملکرد بهتری نسبت به کامپوزیت‌های بر پایه Al دارند [1,2]. بهبود عملکرد آزادسازی انرژی کامپوزیت‌های Al-Ni مهم و قابل توجه است؛ به گونه‌ای که با بهبود دما و سرعت واکنش تشکیل ترکیب‌های بین فلزی می‌توان توانایی آزادسازی انرژی این کامپوزیت‌ها را افزایش داد. خواص مکانیکی دینامیکی در مواد واکنشی بسیار اهمیت دارند. اگر این مواد با سرعت لازم به هدف برخورد کنند، در اثر تبدیل انرژی جنبشی به انرژی گرمایی، انرژی شروع واکنش تأمین شده و مواد واکنشی باهم واکنش داده و انرژی گرمایی زیادی آزاد می‌شود [3].

متالورژی پودر یکی از روش‌های مرسوم در ساخت کامپوزیت‌های واکنشی است. مراحل ساخت نمونه به روش متالورژی پودر را می‌توان به چهار بخش تهیه و آماده‌سازی پودر، مخلوط کردن پودر، متراکم‌سازی و تف‌جوشی⁴ تقسیم کرد. یکی از روش‌های آماده‌سازی و مخلوط کردن پودر آلیاژسازی مکانیکی است [4,5]. در روش آلیاژسازی مکانیکی امکان سنتز نانوذرات همگن از پودرهای با اندازه درشت‌تر وجود دارد [6]. در حین انجام این فرآیند، تغییر شکل پلاستیک شدیدی در ذرات پودر ایجاد می‌شود و در نتیجه کریستال‌ها به شدت تحت کرنش قرار می‌گیرند. با گذشت زمان، باندهای برشی ایجاد و شروع به رشد می‌کنند و در نهایت موجب شکسته شدن ذرات می‌گردند. بنابراین فرآیند آلیاژسازی مکانیکی تحت تأثیر دو فرآیند متضاد جوش سرد (یکی شدن ذرات در اثر ضربه) و شکست (خرد شدن ذرات در اثر ضربه) قرار دارد [7]. ژانگ⁵ و همکاران [8] تأثیر روش‌های آلیاژسازی آسیابکاری مخلوطی (TM)⁶، آسیابکاری سایشی (AM)⁷ و آسیابکاری سیاره‌ای (PM)⁸ بر ریزساختار و خواص حرارتی را برای Al-Ni با نسبت 3 به 1 مورد مطالعه قرار دادند. نتایج نشان داد ریزساختار پودر تهیه شده به روش TM شکل اصلی پودر خام Al و Ni بود. ریزساختار پودر تهیه شده به روش AM به طور قابل توجهی متفاوت با شکل پودر، و شکل کلی نیز کشیده‌تر است، و بیشتر دانه‌ها به اندازه زیر

میکرون می‌رسند. در روش PM، شکل اصلی ماده خام کاملاً از بین رفته و ذرات در سطح نانو ترکیب شده و ریزساختار نانو لایه، در سراسر نمونه مشاهده می‌شود. همچنین آنالیز DSC برای تجزیه و تحلیل ویژگی‌های حرارتی پودرهای RM و قرص‌های RSM با تغییر ریزساختار را نیز انجام دادند. منحنی گرمایی در PM پودر بسیار وسیع‌تر از پودر TM و پودر AM بود و دمای شروع واکنش پودر PM حداقل 200 درجه کمتر از سایر پودرها است، که علت آن کاهش اندازه دانه پودرهای RM است. گرمای تشکیل کل برای پودر TM، 720 J/g ، پودر AM، 630 J/g و پودر PM، 540 J/g کاهش می‌یابد. وو و همکاران [9] تأثیر اندازه ذرات Al بر رفتار حرارتی و مکانیکی کامپوزیت Al-PTFE را مورد مطالعه قرار دادند. نتایج نشان داد، استحکام و مدول سختی با افزایش اندازه ذرات کاهش یافت؛ اما چقرمگی کامپوزیت ابتدا افزایش، و سپس کاهش یافت. در شروع واکنش شیمیایی در اثر شوک ضربه‌ای، برای نمونه‌های با اندازه قطر Al کمتر از 7 میکرومتر فعال شد.

هادجی⁹ و همکاران [10] تأثیر مدت زمان آسیابکاری بر ریزساختار و خواص حرارتی را مورد مطالعه قرار دادند. بعد از 10 ساعت راندمان آسیابکاری بیشتر شده و نیکل نیز ساختار ریز به خود می‌گیرد، به طوری که لایه‌های نیکل و آلومینیوم در کنار هم قرار می‌گیرند. بعد از 20 ساعت، ساختار تغییرات زیادی کرده و به تکه‌های غنی از نیکل تبدیل شده‌اند. در آزمون سوزش، با افزایش زمان آسیابکاری تا 10 ساعت مدت زمان سوزش کاهش پیدا می‌کند، به طوری که برای زمان‌های 5، 7 و 10 ساعت، زمان سوزش 20، 17 و 4.25 ثانیه ثبت شد؛ اما برای زمان 20 ساعت آسیب فقط قسمتی از نمونه دچار سوزش شد. بررسی آنالیز حرارتی برای زمان‌های مختلف نشان داد تعداد پیک‌های آزمون STA بعد از 10 ساعت آسیابکاری بیشتر از زمان‌های دیگر است.

در مطالعه‌ای دیگر، هادجی و همکاران [11] تأثیر مدت زمان آسیابکاری بر ریزساختار کامپوزیت Al-Ni با نسبت وزنی 1 به 3 را مورد بررسی قرار دادند. برای ساخت کامپوزیت، از آسیابکاری کم انرژی برای اختلاط و تولید پودر استفاده شد. آن‌ها مشاهده کردند افزایش زمان آسیابکاری منجر به کاهش اندازه ذرات همراه با اصلاح ریزساختارها می‌شود به طوری که با گذشت 5 ساعت از زمان آسیابکاری، اندازه ذرات شروع به کاهش کرده و ریزساختارها توزیع یکنواخت را نشان دادند. آن‌ها همچنین آزمون احتراق برای نمونه‌های 2 تا 8 ساعت را مورد بررسی قرار دادند. دمای شروع سوزش تمامی نمونه‌ها بالاتر از دمای بوتکتیک (627°C) در دیاگرام فازی Al-Ni بوده است که این نشان می‌دهد تا زمانی که نمونه غنی از آلومینیوم مذاب نباشد، سوزش رخ خواهد داد، که این دما با افزایش مدت زمان آسیابکاری کاهش می‌یابد. با افزایش زمان آسیابکاری تا 6 ساعت، دمای شروع سوزش¹⁰، بیشترین دمای حاصل از سوزش¹¹ و مدت زمان لازم برای احتراق کاهش می‌یابند؛ اما در مدت زمان‌های 7 و 8 ساعت آسیابکاری تمامی موارد ذکر شده افزایش می‌یابند. همچنین سرعت سوزش بطور پیوسته با افزایش زمان آسیابکاری روند کاهشی داشت.

کوک و همکاران [12] تأثیر درصد‌های مختلف اجزای تشکیل دهنده بر رفتار حرارتی کامپوزیت Al-Ni را مورد مطالعه قرار دادند. نتایج تجربی و عددی نشان داد بهترین درصد برای آزادسازی گرمای بهینه نمونه‌های Al-Ni

⁷ Attritor Mill⁸ Planetary Mill⁹ Hadji¹⁰ Ignition Spot Temperature¹¹ Maximum Temperature¹ Trinitrotoluene² Royal Demolition Explosive³ Reactive Structural Materials⁴ Sintering⁵ Jung⁶ Turbula Mixing

کامپوزیت‌ها استفاده شد. این آزمون از دمای محیط (25°C) تا 800°C با نرخ حرارت‌دهی 10 K/min تحت اتمسفر گاز آرگون خلوص بالا درون بوتله آلومینایی انجام شد.

2-4- آزمون مکانیکی

به منظور بررسی خواص مکانیکی نمونه‌های تفجوشی شده، آزمون فشار شبه استاتیکی به وسیله دستگاه سنتام¹⁴ و با سرعت 0.6 mm/min بر اساس استاندارد ASTM E9 انجام گرفت. همچنین برای آزمون فشار کرنش بالا از دستگاه میله اسپلیت‌هاپکینسون فشاری (SHPB¹⁵) استفاده شد.

2-5- بررسی ریزساختار

ریزساختار کامپوزیت‌ها به وسیله میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی (FESEM¹⁶) مدل TESCAN MIRA3 مجهز به طیف‌سنج EDS¹⁷ و پراش اشعه ایکس (PHILIPS PW1730, XRD) با تابش $\text{Cu K}\alpha$ (1.54060 \AA) بررسی شد.

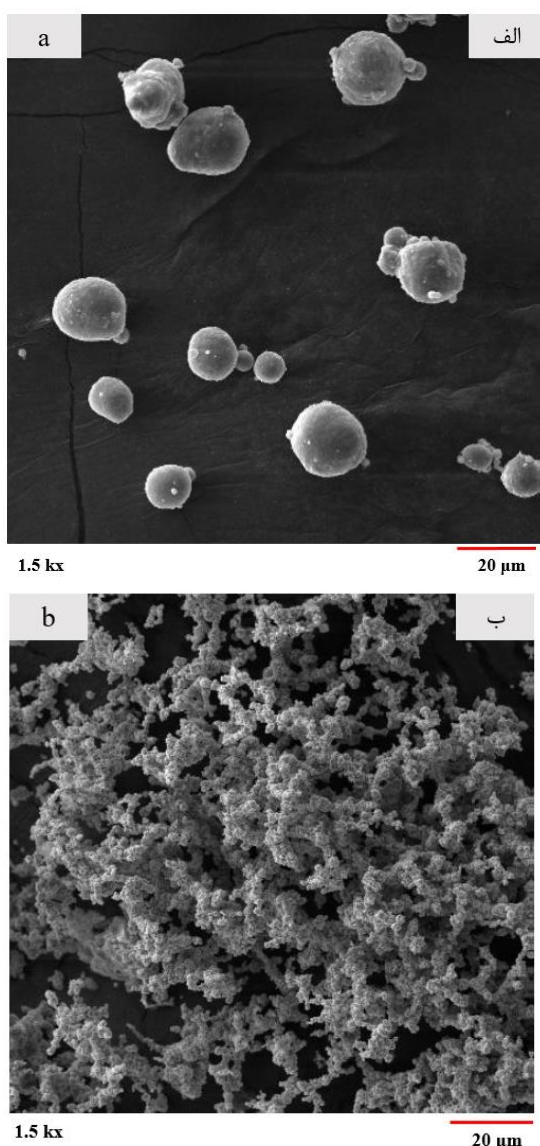


Fig. 1 FESEM images of a) Al and b) Ni powders
شکل 1 تصاویر FESEM حاصل از ذرات الف) Al و ب) Ni

نسبت 58 به 42 است. افزایش درصد اتمی نیکل بعد از 42 درصد، کاهش گرمای آزاد شده را به دنبال دارد.

میسون و همکاران [13] تأثیر مدت زمان آسیاکاری خشک بر ضربه بهینه برای شروع واکنش را مورد بررسی قرار دادند. آن‌ها یک معیار به عنوان زمان بحرانی انجام واکنش حین آسیاکاری (حدود 17 دقیقه) تعریف کردند که بعد از این زمان، واکنش‌ها در حین انجام آسیاکاری خشک شروع می‌شود. آن‌ها مشاهده کردند با نزدیک شدن زمان آسیاکاری به زمان بحرانی سرعت و انرژی ضربه لازم برای فعال‌سازی واکنش کاهش پیدا می‌کند. به طوری که حداقل انرژی و سرعت لازم برای نمونه‌ای که 25٪ زمان بحرانی آسیاکاری شده بود به ترتیب 500 J و 200 m/s بود. در حالی که این پارامترها برای نمونه با 50٪ زمانی بحرانی به 200 J و 130 m/s کاهش پیدا کرد. گرچه افزایش زمان آسیاکاری کاهش انرژی و سرعت ضربه لازم برای فعال‌سازی واکنش را به دنبال دارد، اما منجر به کاهش شدید گرمای حاصل از واکنش نیز می‌شود.

مواردی که استفاده از کامپوزیت‌های واکنشی را به طور گسترده محدود می‌کند خواص مکانیکی و حرارتی ضعیف این نوع مواد است. بهبود عملکرد این خواص در دهه اخیر بسیار مورد بحث و مطالعه قرار گرفته است، اما هنوز پیشرفت چشم‌گیری رخ نداده است. بر این اساس، نوآوری تحقیق حاضر نسبت به تحقیقات پیشین، بررسی ریزساختار، خواص حرارتی و خواص فشاری نمونه‌های واکنشی برای زمان‌های مختلف و همچنین بهبود رفتار حرارتی و مکانیکی این نوع مواد است.

2- بخش تجربی

2-1- مواد

در تحقیق حاضر، پودر Al (کروی، 20 میکرون، خلوص 99.9٪) و پودر Ni (کروی شکل، 1 میکرون، خلوص 99.9٪) با نسبت مولی Al به Ni (2:1) مورد استفاده قرار گرفتند. شکل 1 تصاویر FESEM از ذرات Al و Ni را نشان می‌دهد.

2-2- ساخت نمونه‌ها

پودرهای Al و Ni با نسبت مولی Al به Ni (2:1) در زمان‌های 0.5، 1، 2، 4 و 6 ساعت با سرعت 430 دور بر دقیقه با نسبت گلوله به پودر 20:1 تحت اتمسفر آرگون آسیاکاری سایشی شدند. همچنین برای جلوگیری از جوش سرد اضافی در حین عملیات آسیاکاری، 2 درصد وزنی استتاریک اسید برای جلوگیری از جوش سرد مورد استفاده قرار گرفت. پس از فرآیند آسیاکاری، ابتدا پودرها در یک قالب با قطر یک سانتی‌متر تحت فشار 1400 MPa به مدت 10 دقیقه فشرده شدند. سپس قرص‌های حاصل از پرس سرد، در کوره با نرخ گرمایش 10 K/min در دمای 400°C به مدت 1 ساعت تحت اتمسفر گاز آرگون خلوص بالا تفجوشی شدند. از طرفی برای آزمون احتراق، نمونه‌های قرصی شکل با قطر 3 cm و ضخامت 1 mm، تنها تحت فشار 500 MPa به مدت 5 دقیقه پرس سرد شدند.

2-3- آزمون حرارتی

به منظور بررسی رفتار حرارتی نمونه‌های واکنشی، از آنالیز گرماسنجی افتراقی (DSC¹²، Q600 TA) از دمای محیط (25°C) تا 1000°C با نرخ حرارت-دهی 10 K/min تحت اتمسفر گاز آرگون خلوص بالا استفاده شد. همچنین اشتعال نمونه‌ها هم توسط شعله گاز پروپان انجام گرفت. از آنالیز حرارتی هم-زمان (STA¹³) مدل STA 504 برای بررسی واکنش‌های گرماده و گرمازا در

¹⁵ Split Hopkinson Pressure Bar

¹⁶ Field Emission Scanning Electron Microscopy

¹⁷ Energy Dispersive Spectroscopy

¹² Differential Scanning Calorimetry

¹³ Simultaneous Thermal Analyzer

¹⁴ SANTAM

3- نتایج و بحث

3-1- بررسی ریزساختار کامپوزیت‌های تهیه شده

شکل 2 تصاویر FESEM تغییرات مورفولوژی پودرهای Al-Ni پس از 0.5، 1، 2، 4 و 6 ساعت آسیاکاری را نشان می‌دهند. پودرهای Al-Ni به این دلیل که سختی ویکرز نیکل برابر 638 MPa و سختی ویکرز آلومینیوم برابر 167 MPa است، یک سیستم نرم-ترد¹⁸ محسوب می‌شود.

به‌طور کلی در فرآیند آلیاژسازی مکانیکی، سه مکانیزم اصلی تغییر شکل پلاستیک، جوش سرد و شکست بر تغییرات مورفولوژی ذرات پودر حاکم است. تغییر شکل پلاستیک ذرات پودر Al و تشکیل ذرات صفحه‌ای شکل، جوش سرد ذرات ورقه‌ای شکل و در نهایت شکسته شدن ذرات نیز در این تصاویر دیده می‌شود. به عبارت بهتر ذرات نرم و دارای مورفولوژی کروی پودر Al اولیه، در اثر برخوردهای شدید گلوله‌ها، بین آن‌ها محبوس شده و تغییر شکل می‌دهند و به‌صورت لایه‌ای یا ورقه‌ای درمی‌آیند (شکل 2-الف). ذرات Ni نیز که ترد هستند در اثر ضربات وارده، خرد شده و به ذرات ریزتری تبدیل می‌شوند. با ادامه فرآیند آلیاژسازی مکانیکی، ذرات ورقه‌ای شکل آلومینیوم تحت ضربات بیشتر قرار گرفته و دچار تغییر شکل بیشتری می‌شوند. مکانیزم جوش سرد فعال شده و پودرهای ورقه‌ای آلومینیوم را به هم متصل می‌کند. ذرات خرد شده Ni نیز بین ورقه‌های Al محبوس می‌شوند (شکل 2-ب). به دلیل

کارسختی زیاد ناشی از کار مکانیکی و پخش شدن ذرات ریز Ni داخل آن‌ها، ترد شده و به ذرات کوچک‌تری می‌شکنند (شکل 2-ج و شکل 2-د). با ادامه فرآیند آلیاژسازی مکانیکی، مکرراً جوش سرد و شکست ذرات انجام می‌شود تا در نهایت مورفولوژی ذرات پودر آلیاژی به حالت پایدار می‌رسد و ذرات Ni با توزیع ریز و همگن درون Al به دست می‌آید (شکل 2-ه).

همان‌طور که در آنالیز EDS از دو ناحیه A و B در پودر 0.5 ساعت آسیاکاری شده در شکل 3 نشان داده شده است، نواحی سفید نمایانگر فاز سنگین‌تر Ni (8.9 g/cm^3) و نواحی خاکستری نمایانگر فاز سبک‌تر Al (2.7 g/cm^3) است.

با افزایش زمان آسیاکاری تعداد برخوردها و تغییر شکل ذرات افزایش می‌یابد. همچنین اندازه ذرات پودر کاهش یافته و با آلیاژسازی مکانیکی دانه‌ها نیز نانو ساختار می‌شوند. این موضوع منجر به افزایش سطح تماس بین دو فاز Al و Ni شده و شرایط را برای نفوذ فازی بهتر می‌کند؛ بنابراین احتمال تشکیل ترکیب‌های بین فلزی Al و Ni در حین فرآیند آسیاکاری وجود دارد. علاوه بر این، احتمال بیشتری وجود دارد که تشکیل ساختار لایه‌ای (با کاهش فواصل نفوذ) اجازه آغاز واکنش‌های گرمزای خود تکثیر شونده (SPER¹⁹) در حین برخورد را بدهد، که می‌تواند به اندازه کافی دمای موضعی را افزایش دهد [14,11,10].

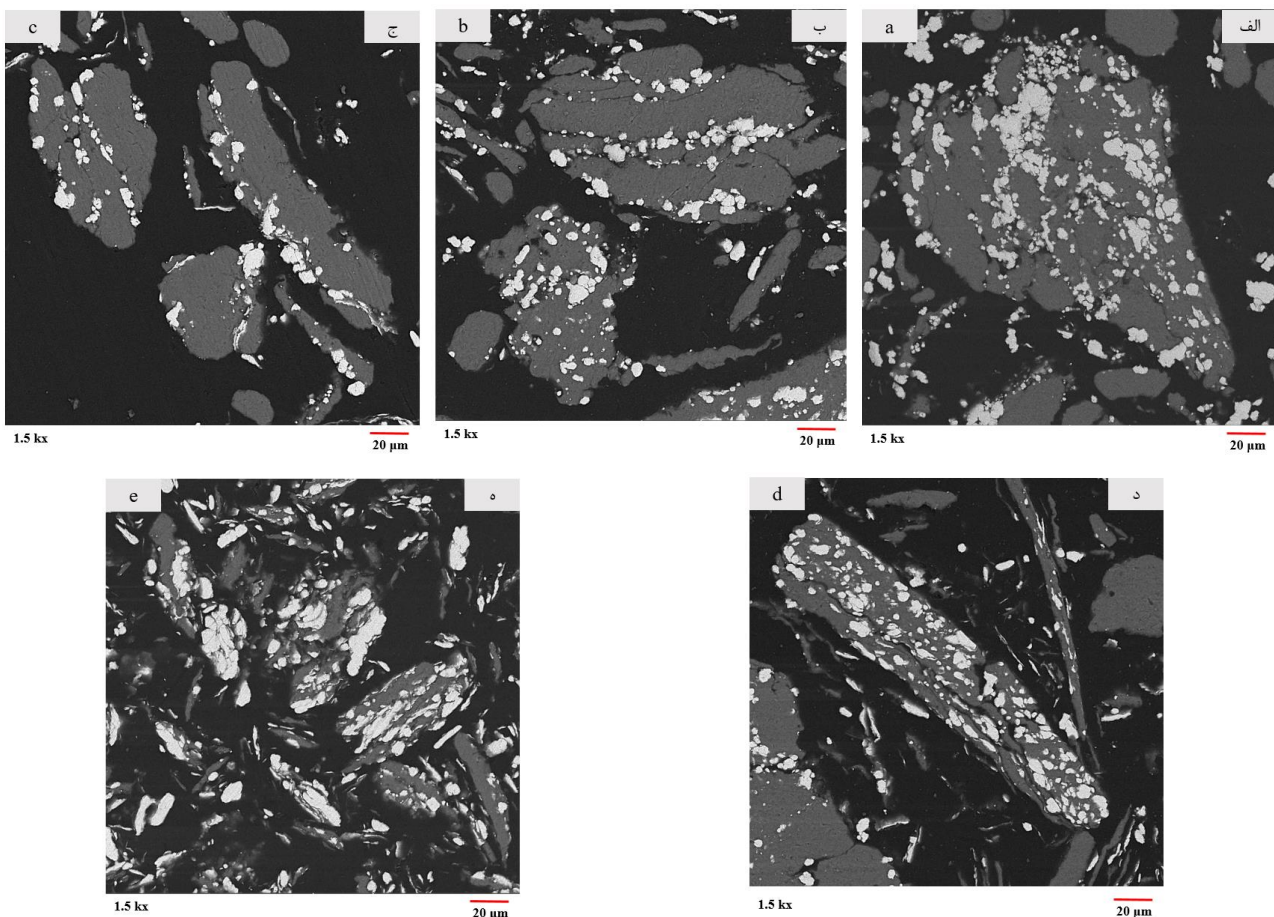


Fig. 2 FESEM images showing surface morphological changes after a) 0.5, b) 1, c) 2, d) 4 and e) 6 hours milling time.

شکل 2 تصاویر FESEM تغییر مورفولوژی پودر آلیاژی Al-Ni پس از (الف) 0.5، (ب) 1، (ج) 2، (د) 4 و (ه) 6 ساعت آسیاکاری.

¹⁹ Self-Propagating Exothermic Reaction

¹⁸ Ductile-Brittle system

شکل 4 احاطه کامل ذرات نیکل توسط لایه‌های آلومینیوم را نشان می‌دهد. در آنالیز EDS map، به وضوح لایه‌های تغییر شکل یافته Al، ذرات Ni را پوشانده‌اند؛ بنابراین در پودر آلیاژسازی مکانیکی شده، واکنش می‌تواند از طریق مسیر نفوذ مرزدانه و مسیر نفوذ سطحی پیش رود، و از این رو، دمای آغاز واکنش می‌تواند تا حد زیادی به زیر دمای ذوب آلومینیوم کاهش یابد. فرآیند آلیاژسازی مکانیکی علاوه بر تغییر مورفولوژی ذرات بر ریزساختار آن‌ها نیز مؤثر است. به‌منظور بررسی تغییرات اندازه دانه زمینه و تشکیل احتمالی ترکیب‌های بین فلزی در حین فرآیند آسیاکاری از آنالیز XRD استفاده شد. شکل 5، الگو پراش اشعه X مربوط به پودر Al-Ni را پس از 4، 6 و 8 ساعت آلیاژسازی مکانیکی نشان می‌دهد. تا زمان 4 ساعت فقط پیک‌های مربوط به فاز Al و Ni مشاهده شد، در صورتی‌که پس از 6 ساعت آسیاکاری، پیک‌های ترکیبی بین فلزی تحت عنوان Al-Ni در الگو XRD مشاهده شد که عموماً با برخی از پیک‌های مربوط به Al و Ni همپوشانی دارد. دلیل این امر این است که پس از گذشت 6 ساعت از فرآیند آلیاژسازی مکانیکی شرایط تشکیل ترکیب‌های بین فلزی مانند دما و نرخ نفوذ مساعد شده و ساختار واکنشی در آستانه تشکیل این نوع ترکیبات قرار می‌گیرد. به همین دلیل فرآیند آسیاکاری پس از گذشت 6 ساعت متوقف شد؛ زیرا بهینه‌ترین حالت ساختارهای واکنشی زمانی است که واکنش‌های بین فلزی که معمولاً گرمازا هستند در حین فرآیند آسیاکاری و ساخت نمونه انجام نشوند. به این منظور که ساختار واکنشی بتواند در حین احتراق ناشی از شعله یا ضربه، بر اثر انجام گرفتن این واکنش‌ها بیشترین انرژی را آزاد کند [15,11,10].

بنابراین زمان آسیاکاری بحرانی بین 6 تا 8 ساعت است که در آن، پودرها تحت استحاله فازی قرار می‌گیرند. به این معنی که بهینه زمان آسیاکاری، زمانی است که ساختار واکنشی در آستانه انجام شدن واکنش‌های گرمازای تشکیل ترکیب‌های بین‌فلزی قرار گیرد. به‌گونه‌ای که این ترکیب‌ها در حین فرآیند آسیاکاری ایجاد نگردد و فقط بر اثر اعمال انرژی ثانویه ناشی از گرما یا ضربه، فعال شوند.

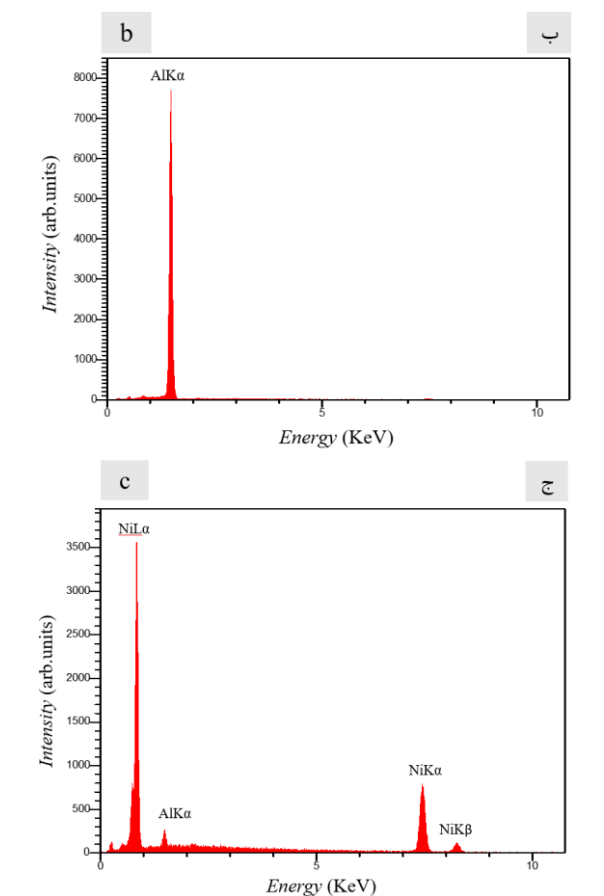
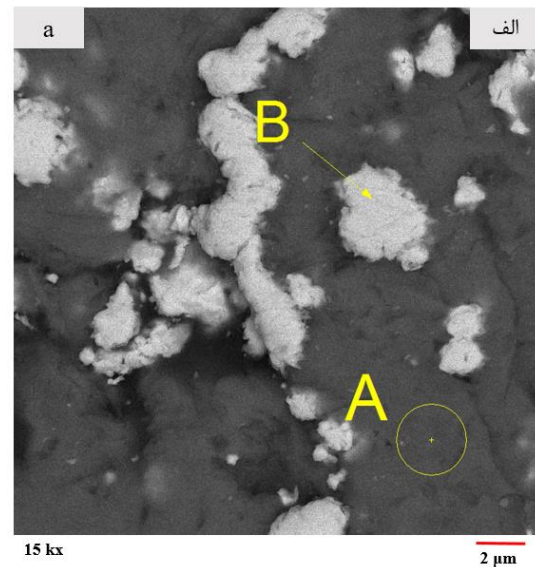


Fig. 4 a) FESEM images and b) EDS map of Al-Ni after 6 hours milling time.

شکل 4 الف) تصاویر FESEM و ب) آنالیز EDS map نمونه Al-Ni بعد از 6 ساعت آسیاکاری.

Fig. 3 a) FESEM images of Al-Ni after 0.5 hours milling time, b) EDS spectrum of zone A and c) EDS spectrum of zone B

شکل 3 الف) تصویر FESEM حاصل از کامپوزیت Al-Ni بعد از 0.5 ساعت آسیاکاری ب) طیف‌سنجی EDS از ناحیه A و ج) طیف‌سنجی EDS از ناحیه B

می‌یابد. همچنین گرمای واکنش ذوب آلومینیوم به مقدار آلومینیوم منفرد در ساختار وابسته است؛ بنابراین با افزایش زمان آسیاکاری، گرمای واکنش (انتالپی) نیز کاهش می‌یابد. از طرفی کاهش تولید گرما می‌تواند ناشی از واکنش‌های جزئی باشد که در حین آسیاکاری قادر به رخ دادن هستند. تغییر در توالی تشکیل فاز می‌تواند در درجه اول به کاهش ابعاد لایه با افزایش مدت زمان آسیاکاری نسبت داده شود [11]. نفوذ حالت جامد Al به Ni در حین آسیاکاری یا در طول ناحیه دمایی پایین DSC اتفاق می‌افتد [10]. برای همه نمونه‌ها، محلول جامد غنی از Ni باقی‌مانده و اختلاط کامل مشاهده نمی‌شود که احتمالاً به دلیل ابعاد بزرگ لایه‌های Ni باقی‌مانده است که می‌تواند بیشتر Al را به‌عنوان جز حل‌شونده ترکیب کند. این امر منجر به کاهش تولید گرمای کل می‌شود [11].

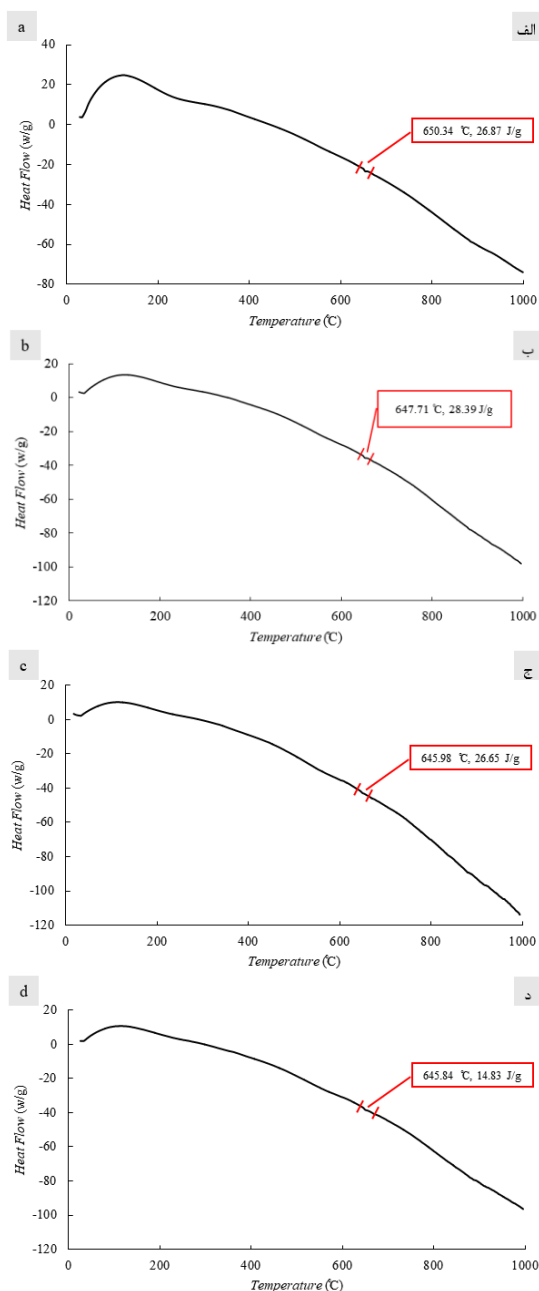


Fig. 6 DSC diagram of samples after a) 0.5, b) 2, c) 4 and d) 6 hours milling time.

شکل 6 نمودار DSC نمونه‌ها پس از الف) 0.5، ب) 2، ج) 4 و د) 6 ساعت آسیاکاری.

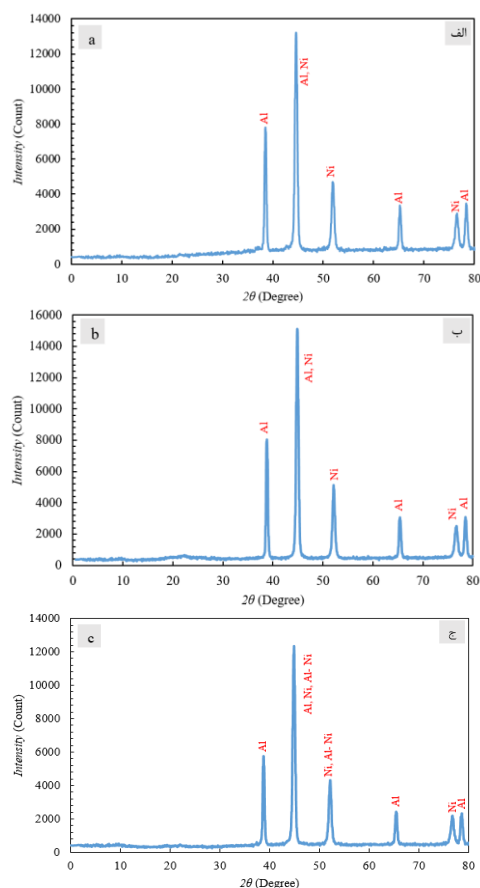


Fig. 5 XRD patterns of samples after a) 1, b) 4 and c) 6 hours milling time.

شکل 5 الگوی XRD نمونه‌ها پس از الف) 1، ب) 4 و ج) 6 ساعت آسیاکاری.

2-3- بررسی خواص حرارتی کامپوزیت‌های تهیه شده

1-2-3- نتایج آزمون DSC

نتایج آزمون DSC برای کامپوزیت‌های واکنشی پس از 0.5، 1، 2، 4 و 6 ساعت آسیاکاری، در شکل 6 نشان داده شده است. همان‌طور که مشخص است، یک پیک گرماگیر با دمایی شروع در $650.34\text{ }^{\circ}\text{C}$ در نمونه 0.5 ساعت آسیاکاری شده با گرمای واکنش (انتالپی) 26.87 J/g وجود دارد. این پیک به ذوب آلومینیوم باقی‌مانده در ساختار مربوط می‌شود [16]. با افزایش زمان آسیاکاری دمایی شروع و گرمای واکنش این پیک کاهش می‌یابد، به طوری که دمایی شروع واکنش در نمونه 6 ساعت آسیاکاری شده به $645.84\text{ }^{\circ}\text{C}$ می‌رسد و گرمای واکنش آن تا 14.84 J/g تنزل پیدا می‌کند.

آلومینیوم خالص با اندازه ذرات میکرون، یک پیک گرماگیر در $659.7\text{ }^{\circ}\text{C}$ دارد که مربوط به فرآیند ذوب آن است [16]؛ اما این پیک برای پودر نانوالومینیوم در $656.3\text{ }^{\circ}\text{C}$ ظاهر می‌شود. گرانیب و پنتویا [17] افزایش انرژی سطحی مربوط به نانوذره‌ها را دلیل این تفاوت دانسته‌اند. همان‌طور که در بررسی ریزساختار ملاحظه شد، با افزایش زمان آسیاکاری علاوه بر تشکیل ذرات آلیاژسازی مکانیکی، اندازه ذرات نیز تا حد نانو کاهش می‌یابد؛ بنابراین کاهش دمایی شروع پیک گرماگیر در نمودارهای DSC با افزایش زمان آسیاکاری را می‌توان به این موضوع نسبت داد.

از طرفی هر چه از زمان آسیاکاری و فرآیند آلیاژسازی مکانیکی بگذرد، فاز Al بیشتر فرآوری شده و با فاز Ni تشکیل محلول‌های جامد می‌دهد. در نتیجه فاز Al باقی‌مانده که به‌صورت منفرد در ساختار وجود داشته باشد، کاهش

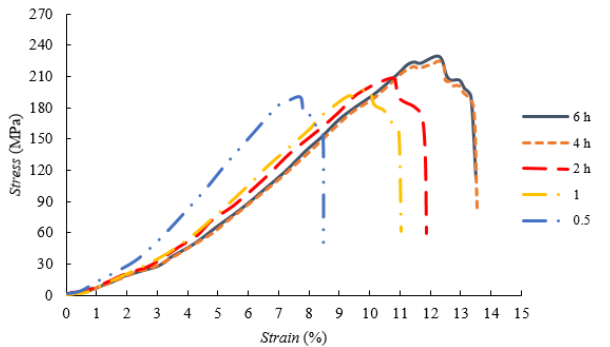


Fig. 8 Stress-strain curve of compression test for samples after milling at various times.

شکل 8 منحنی تنش- کرنش حاصل از آزمون فشار برای نمونه‌ها در زمان‌های مختلف آسیابکاری.

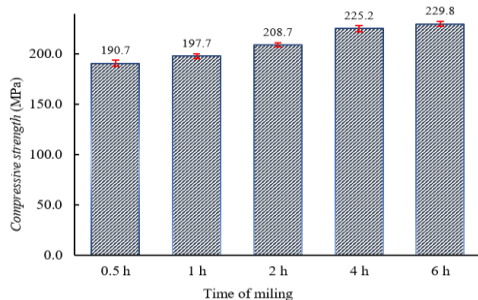


Fig. 9 Compressive strength of compression test for samples after milling at various times.

شکل 9 استحکام فشاری حاصل از آزمون فشار برای نمونه‌ها در زمان‌های مختلف آسیابکاری.

2-3-1- نتایج آزمون هایپکینسون

شکل‌های 10 و 11 به ترتیب منحنی تنش-کرنش فشاری و استحکام فشاری حاصل از آزمون هایپکینسون کامپوزیت‌های تهیه شده پس از 0.5، 1، 2، 4 و 6 ساعت آسیابکاری را نشان می‌دهند. مشابه آزمون فشار، افزایش زمان آسیابکاری بهبود خواص فشاری را به دنبال دارد. به علت توزیع مناسب ذرات Ni در زمینه Al، استحکام فشاری کامپوزیت با 6 ساعت آسیابکاری 274.9 MPa است که نسبت به نمونه با 0.5 ساعت آسیابکاری 42 درصد بیشتر است. مقایسه نتایج آزمون فشار با نرخ کرنش 0.01 s^{-1} با نتایج آزمون هایپکینسون با نرخ کرنش 1000 s^{-1} می‌توان به این نتیجه پی برد که با افزایش نرخ کرنش، استحکام فشاری افزایش و درصد کرنش کاهش می‌یابد.

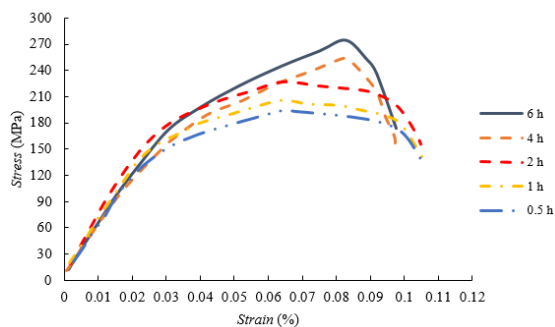


Fig. 10 stress-strain curve of SHPB test for samples after milling at various times.

شکل 10 منحنی تنش- کرنش حاصل از آزمون هایپکینسون نمونه‌ها در زمان‌های مختلف آسیابکاری.

2-2-3- نتایج آزمون STA

نتایج حاصل از آزمون STA برای کامپوزیت‌های تهیه شده بعد از 0.5، 1، 2، 4 و 6 ساعت آسیابکاری در شکل 7 نشان داده شده است. یک پیک گرمازا در حدود $585 \text{ }^\circ\text{C}$ برای نمونه‌های بار زمان آسیابکاری 2، 4 و 6 ساعت دیده می‌شود که با توجه به دیاگرام فاز Al-Ni، این پیک به تشکیل Al_3Ni مربوط می‌شود. این پیک در زمان‌های آسیابکاری 0.5 و 1 ساعت بسیار ناچیز است. با افزایش دما و نفوذ فازی پس تشکیل فاز Al_3Ni ، شرایط ترمودینامیکی برای تشکیل یک فاز غنی‌تر از Ni فراهم می‌شود [18]. در حدود $630 \text{ }^\circ\text{C}$ پیک دومی که مربوط به تشکیل Al_3Ni_2 است در تمامی نمونه‌ها دیده می‌شود؛ زیرا به‌طور کلی Al نرخ نفوذ بالاتری نسبت به Ni دارد که به اتم‌های Al اجازه می‌دهد تا به آسانی در سطح مشترک بین ذرات Al و Ni، جایی که واکنش تشکیل بین فلزی رخ می‌دهد، جمع شوند؛ بنابراین ترکیب بین فلزی اولیه تشکیل‌شده توسط واکنش Al-Ni باید Al_3Ni [11] و محصول واکنش ثانویه باید Al_3Ni_2 باشد. واکنش‌ها به ترتیب واکنش 1 و سپس واکنش 2 قابل انجام است. طبق مطالب بیان شده افزایش زمان آسیابکاری فرصت نفوذ به اجزای کامپوزیت و تشکیل نانوکامپوزیت را فراهم می‌کند، که این عاملی برای افزایش گرمای آزاد شده با افزایش مدت زمان آسیابکاری است. البته برای نمونه با 6 ساعت آسیابکاری به علت انجام برخی واکنش‌ها و تشکیل ترکیب‌های بین فلزی حین آسیابکاری میزان گرمای آزاد شده در مقایسه با نمونه با 4 ساعت آسیابکاری کم‌تر است [18].

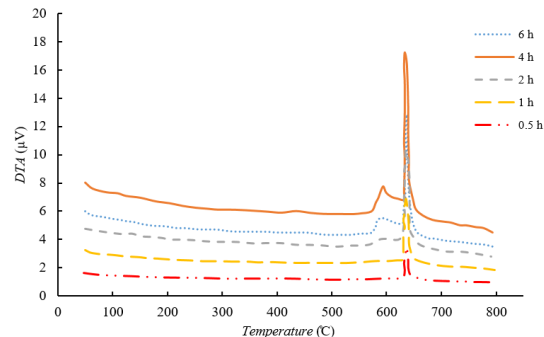


Fig. 7 DTA diagram of samples after milling for various times.

شکل 7 نمودار DTA نمونه‌ها برای زمان‌های مختلف آسیابکاری.

3-3- بررسی خواص مکانیکی کامپوزیت‌های تهیه شده

2-2-3- نتایج آزمون فشار

شکل‌های 8 و 9 به ترتیب منحنی تنش-کرنش فشاری و استحکام فشاری حاصل از آزمون فشار کامپوزیت‌های تهیه شده پس از 0.5، 1، 2، 4 و 6 ساعت آسیابکاری را نشان می‌دهند. افزایش زمان آسیابکاری بهبود خواص فشاری را به دنبال دارد به طوری که استحکام فشاری نمونه با 6 ساعت آسیابکاری نسبت به نمونه با 0.5 ساعت آسیابکاری 20٪ بیشتر است. در نمونه‌های با زمان آسیابکاری کم‌تر به علت عدم توزیع مناسب Ni در زمینه Al در هنگام اعمال فشار در مناطقی که تجمع نیکل وجود دارد تمرکز تنش رخ داده و شکست اتفاق می‌افتد. افزایش مدت زمان آسیابکاری باعث توزیع مناسب ذرات نیکل در زمینه آلومینیوم شده و باعث چسبندگی مناسب بین ذرات می‌شود (شکل 2) که در نتیجه سبب افزایش استحکام فشاری می‌شود.

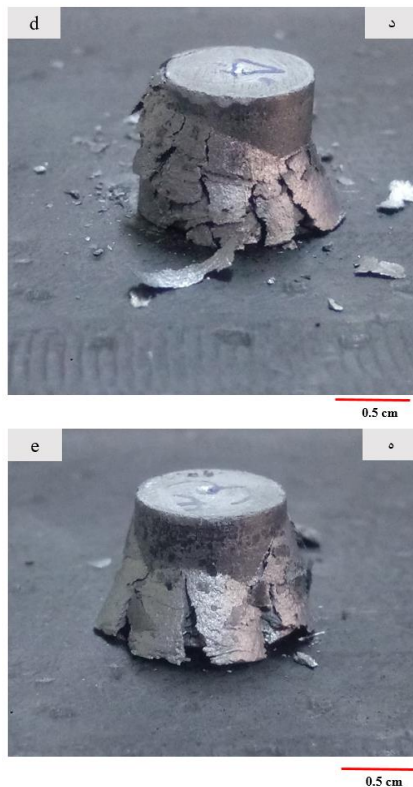


Fig. 12 Different types of failure modes of failed SHPB samples after a) 0.5, b) 1, c) 2, d) 4 and e) 6 hours milling times.

شکل 12 حالت‌های شکست نمونه‌ها تحت بارگذاری هاپکینسون پس از (الف) 0.5، (ب) 1، (ج) 2، (د) 4 و (ه) 6 ساعت آسیابکاری.

4- نتیجه‌گیری

1- الگو پراش اشعه X مربوط به پودر Al-Ni پس از 0.5، 1، 2، 4 و 6 ساعت آلیاژسازی مکانیکی نشان می‌دهد که تا زمان 4 ساعت فقط پیک‌های مربوط به فاز Al و Ni مشاهده شد، در صورتی که پس از 6 ساعت آسیابکاری، پیک‌های ترکیبی بین فلزی بصورت Al-Ni در الگو XRD مشاهده شد.

2- نتایج آزمون DSC برای کامپوزیت‌های واکنشی پس از 0.5، 1، 2، 4 و 6 ساعت آسیابکاری، یک پیک گرماگیر با دمای شروع °C 650.34 در نمونه 0.5 ساعت آسیابکاری شده با گرمای واکنش (آنتالپی) 26.87 J/g وجود دارد. این پیک به ذوب آلومینیوم باقی‌مانده در ساختار مربوط می‌شود. با افزایش زمان آسیابکاری دمای شروع و گرمای واکنش این پیک کاهش می‌یابد، به طوری که دمای شروع واکنش در نمونه 6 ساعت آسیابکاری شده به °C 645.84 می‌رسد و گرمای واکنش آن تا 14.84 J/g تنزل پیدا می‌کند.

3- نتایج آزمون STA برای کامپوزیت‌های واکنشی، دو پیک نسبتاً همپوشان گرمازا را در حدود °C 585 و °C 630 نشان می‌دهد که با توجه به دیاگرام فازی Al-Ni، پیک اولی به تشکیل Al_3Ni و پیک دومی به تشکیل Al_3Ni_2 مربوط می‌شود. افزایش مدت زمان آسیابکاری باعث افزایش گرمای آزاد شده در حین آزمون STA می‌شود.

4- استحکام فشاری حاصل از آزمون فشار برای نمونه‌ها با افزایش مدت زمان آسیابکاری افزایش می‌یابد. به طوری که استحکام فشاری نمونه با 6 ساعت آسیابکاری نسبت به نمونه با 0.5 ساعت آسیابکاری 190.7 MPa به 229.8 MPa افزایش یافت.

5- نتایج حاصل از آزمون هاپکینسون مشابه نتایج آزمون فشار بود که در آن افزایش مدت زمان آسیابکاری افزایش استحکام فشاری را به دنبال دارد.

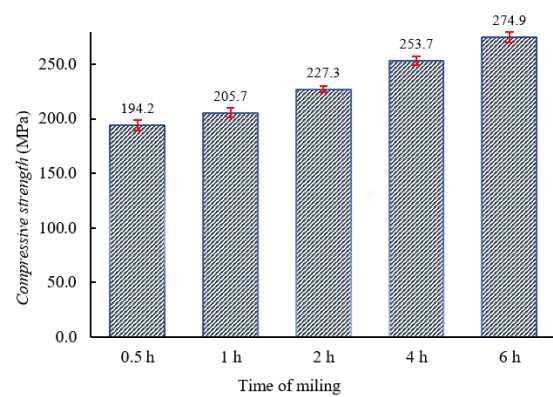
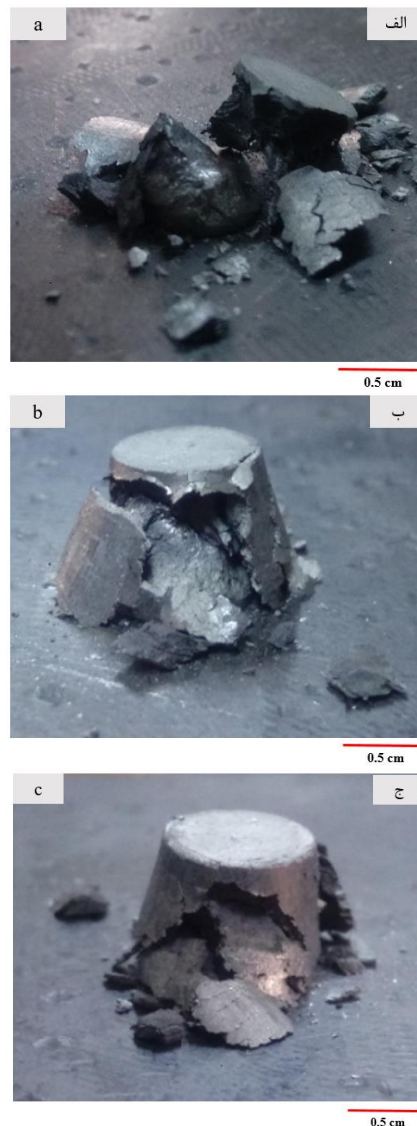


Fig. 11 Compressive strength of SHPB test for samples after milling at various times.

شکل 11 استحکام فشاری حاصل از آزمون هاپکینسون برای نمونه‌ها در زمان‌های مختلف آسیابکاری.

شکل 12 تصاویر کامپوزیت‌های ساخته شده بعد از آزمون هاپکینسون را نشان می‌دهد. هر چه مدت زمان آسیابکاری بیشتر می‌شود میزان تخریب نمونه‌ها کاهش پیدا می‌کند. همان‌طور که اشاره شد افزایش زمان آسیابکاری باعث توزیع مناسب ذرات و بهبود چسبندگی بین اجزای کامپوزیت شده است.



- [15] Hashemabad, S. G. and Ando, T., "Ignition Characteristics of Hybrid Al-Ni-Fe₂O₃ and Al-Ni-CuO Reactive Composites Fabricated by Ultrasonic Powder Consolidation", *Combustion and Flame*, Vol. 162, No. 4, pp. 1144-1152, 2015.
- [16] Sheikhpour, A., Hosseini, S. G., Tavangar, S. and Keshavarz, M. H., "The Influence of Magnesium Powder on the Thermal Behavior of Al-CuO Thermite Mixture", *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, Vol. 129, No. 3, pp. 1847-1854, 2017.
- [17] Pantoya, M. L. and Granier, J. J., "Combustion Behavior of Highly Energetic Thermites: Nano Versus Micron Composites", *Propellants, Explosives, Pyrotechnics: An International Journal Dealing with Scientific and Technological Aspects of Energetic Materials*, Vol. 30, No. 1, pp. 53-62, 2005.
- [18] Huang, C., Chen, J., Bai, S., Li, S., Tang, Y., Liu, X. and Ye, Y., "Enhancement of Energy Release Performance of Al-Ni Composites by Adding CuO", *Journal of Alloys and Compounds*, Vol. 835, pp. 155-271, 2020.
- استحکام فشاری کامپوزیت با 6 ساعت آسیاکاری 274.9 MPa است که نسبت به نمونه با 0.5 آسیاکاری 42 درصد بیشتر است.
- 6- با مقایسه نتایج آزمون فشار با نرخ کرنش 0.01 s^{-1} با نتایج آزمون هایپکینسون با نرخ کرنش 1000 s^{-1} می‌توان به این نتیجه پی برد که با افزایش نرخ کرنش، استحکام فشاری افزایش می‌یابد.
- ### 5- مراجع
- [1] Totten, G. E. and MacKenzie, D. S., "Handbook of Aluminum: Vol. 1: Physical Metallurgy and Processes," CRC press, 2003 .
- [2] Tayebi, M. Rahmat Abadi, D. Rashidi, R. and Hashemi, R., "Evaluation of mechanical properties and microstructure for Al/Ni%5 produced by cross accumulative roll bonding process", *In Persian, Journal of Science and Technology of Composites*, Vol. 05, No. 02, pp. 279-288, 2018.
- [3] Arpatappeh, F. A., Azghan, M. A. and Eslami-Farsani, R., "The Effect of Stacking Sequence of Basalt and Kevlar Fibers on the Charpy Impact Behavior of Hybrid Composites and Fiber Metal Laminates", *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part C: Journal of Mechanical Engineering Science*, Vol. 234, No. 16, pp. 3270-3279, 2020.
- [4] Upadhyaya, G., "Pease Lf Iii, West Wg: Fundamentals of Powder Metallurgy", *Metal Powder Industries Federation*, Vol. 36, No. 1, pp. 54-55, 2004.
- [5] Robatto, L., Rego, R., Righetti, V., Thim, G. and Borille, A., "Residual Stress Heterogeneity Induced by Powder Metallurgy Gear Manufacturing Chains", *International Journal of Precision Engineering and Manufacturing-Green Technology*, Vol. 9, pp. 473-484, (2022).
- [6] Azizi, Z., Rahmani, K., Taheri-Behrooz, F., "Study of microstructure and investigation of mechanical properties of pure aluminum-graphene nanocomposite using ball mill method in casting process with mechanical and electromagnetic stirring", *In Persian, Journal of Science and Technology of Composites*, Vol. 8, No. 2, pp. 1532-1542, 2021.
- [7] Delshad Gholami, M., Rahmatabadi, D., Shojaee, T., Hashemi, R., and Mohammadi, H., "Evaluation of Mechanical Properties and Fracture Toughness of Aluminum- Magnesium Aluminum Composite Produced by Cold Roll Bonding process", *In Persian, Journal of Science and Technology of Composites*, Vol. 8, No. 1, pp. 1317-1326, 2021.
- [8] Jung, S.H. and Lee, K., "Effect of Microstructure Control on Reaction Characteristics in Al/Ni Reactive Powder", *The 4th Research and Development Institute-2nd Directorate*, Daejeon, 34060, Korea, 2017.
- [9] Wu, J. X., Fang, X., Gao, Z. R., Wang, H. X., Huang, J. Y., Wu, S. Z. and Li, Y.C., "Investigation on Mechanical Properties and Reaction Characteristics of Al-PTFE Composites with Different Al Particle Size", *Advances in Materials Science and Engineering*, Vol. 2018, pp. 10-18, 2018.
- [10] Hadjiafxenti, A., Gunduz, I. E., Tsotsos, C., Kyratsi, T., Doumanidis, C. C. and Rebolz, C., "Synthesis of Reactive Al/Ni Structures by Ball Milling", *Intermetallics*, Vol. 18, No. 11, pp. 2219-2223, 2010.
- [11] Hadjiafxenti, A., Gunduz, I., Kyratsi, T., Doumanidis, C. and Rebolz, C., "Exothermic Reaction Characteristics of Continuously Ball-Milled Al/Ni Powder Compacts", *Vacuum*, Vol. 96, pp. 73-78, 2013.
- [12] Kuk, S. W., Ryu, H. J. and Yu, J., "Effects of the Al/Ni Ratio on the Reactions in the Compression-Bonded Ni-Sputtered Al Foil Multilayer", *Journal of alloys and compounds*, Vol. 589, pp. 455-461, 2014.
- [13] Mason, B., Groven, L. J. and Son, S. F., "The Role of Microstructure Refinement on the Impact Ignition and Combustion Behavior of Mechanically Activated Ni/Al Reactive Composites", *Journal of Applied Physics*, Vol. 114, No. 11, pp. 113--121, 2013.
- [14] Gunduz, I. E., Fadenberger, K., Kokonou, M., Rebolz, C., Doumanidis, C. C. and Ando, T., "Modeling of the Self-Propagating Reactions of Nickel and Aluminum Multilayered Foils", *Journal of Applied Physics*, Vol. 105, No. 7, pp. 74-93, 2009.