

## بهینه‌سازی پارامترهای ریخته‌گری دوغابی پودر نانوکامپوزیت آلومینا/ ایتریا جهت ساخت سرامیک‌های شفاف ایتیریم آلومینیم گارنت

گل آرا کفیلی<sup>۱</sup>، بهروز موحدی<sup>۱\*</sup> و مصطفی میلانی<sup>۲</sup>

۱. گروه مهندسی نانو فناوری، دانشکده علوم و فناوری‌های نوین، دانشگاه اصفهان، اصفهان

۲. پژوهشکده مواد پیشرفته و انرژی‌های نو، سازمان پژوهش‌های علمی و صنعتی ایران، تهران

(دریافت مقاله: ۱۳۹۵/۱۱/۰۱ - دریافت نسخه نهایی: ۱۳۹۶/۰۳/۰۳)

**چکیده** - در این پژوهش، به منظور ساخت سرامیک شفاف ایتیریم آلومینیم گارنت (YAG)، از تف‌جوشی پلاسمای جرقه‌ای (SPS) دو نمونه خام ریخته‌گری دوغابی شده و نمونه پودری از نانوکامپوزیت هسته- پوسته آلومینا/ ایتریا استفاده شد. فاز تشکیل دهنده، میزان عبور نور و همچنین ریزساختار قطعات سرامیکی تف‌جوشی شده با یکدیگر مقایسه شد. در فرایند ریخته‌گری دوغابی، از دولاپیکس ۶۴ به‌عنوان عامل پراکنده‌ساز جهت پایدارسازی دوغاب حاصل از پودر نانوکامپوزیتی استفاده شد. اثر غلظت دولاپیکس و مقدار اسیدیتنه بر پایداری دوغاب مطالعه و نمودارهای گرانی دوغاب در مقادیر مختلف اسیدیتنه و درصدهای مختلف وزنی دولاپیکس بررسی شد. رفتار رئولوژیکی دوغاب تهیه شده از پودر نانوکامپوزیتی در بارهای جامد ۶۰ تا ۷۰ درصد وزنی، با اندازه‌گیری گرانی و تنش برشی به‌عنوان تابعی از نرخ برشی مطالعه شد. نتایج نشان داد که دوغاب مورد بررسی، با افزودن ۲/۵ درصد وزنی دولاپیکس دارای پایین‌ترین مقدار گرانی در اسیدیتنه ۱۰ است. دوغاب با ۶۰ درصد وزنی بار جامد دارای رفتار نیوتونی است و این رفتار در بارهای جامد بالاتر نیز حفظ می‌شود. فرایند ریخته‌گری دوغابی موجب توزیع یکنواخت اندازه تخلخل و حذف تخلخل‌های بزرگ در نمونه خام و نهایتاً دستیابی به سرامیک شفاف YAG با عبور حدود ۶۰ درصد پس از فرایند SPS شد. این مقدار شفافیت بسیار بیشتر از عبور نمونه پودری SPS شده یعنی حدود ۳۰ درصد، تحت شرایط یکسان بود.

واژه‌های کلیدی: شکل‌دهی دوغابی، تف‌جوشی پلاسمای جرقه‌ای، ایتیریم آلومینیم گارنت، سرامیک شفاف.

### Optimization of Slip Casting Parameters of Alumina\ Yttria Nanocomposite Powder for Obtaining Transparent Yttrium Aluminum Garnet Ceramics

G. Kafili<sup>1</sup>, B. Movahedi<sup>1\*</sup> and M. Milani<sup>2</sup>

1. Department of Nanotechnology Engineering, Faculty of Advanced Sciences and Technologies, University of Isfahan, Isfahan, Iran.  
Advanced Materials & Renewable Energies Research Center, Iranian Research Organization for Science and Technology, Tehran, Iran.

**Abstract:** In this study, Spark Plasma Sintering (SPS) of both slip casted and powder specimens of alumina/yttria core-shell nanocomposite were utilized for fabricating transparent Yttrium Aluminum Garnet (YAG) ceramics. Phase evolution, optical

\* : مسئول مکاتبات، پست الکترونیکی: b.movahedi@ast.ui.ac.ir

transmittance and the microstructure of sintered samples were compared. In slip casting process, Dolapix CE64 was used as a dispersant for preparing the stable aqueous slurry of this nanocomposite powder. The effect of Dolapix concentration and pH value on the stability of the suspension was described, and the viscosity diagrams were investigated at different pH value and different weight percents of Dolapix. The rheological behavior of the nanocomposite powder slipped at 60-70 wt% solid loading was studied by measuring their viscosity and shear stress as a function of shear rate of the slurry. The results showed that, the suspension has a minimum viscosity at pH of 10 by addition of 2.5 wt% Dolapix. Also, the slurry with solid loading of 60 wt% showed the Newtonian behavior and this rheological behavior was preserved even above this solid loading values. Slip casting technique caused the uniform size and pores distribution as well as eliminating large pores in the green body. Consequently, transparent YAG ceramic with 60% optical transmittance was achieved after SPS process of slip casted green body which was much higher than that of nanocomposite powder, i.e. about 30% at the same sintering conditions.

**Keywords:** Slip casting, Spark plasma sintering, Yttrium aluminum garnet, Transparent ceramic.

## ۱- مقدمه

تخلخل (150 ppm) [۱۴]، مرز دانه‌های عاری از آلودگی و فاقد فاز ثانویه [۱۵] روبه‌رو است. برای حل این چالش‌ها، استفاده از پودر اولیه با خلوص بالا و همچنین روش‌های شکل‌دهی و فرآوری مورد نیاز است. اگر چه پژوهش‌های فراوانی در زمینه سرامیک‌های شفاف انجام شده است، با این وجود فعالیت‌های کمتری در زمینه فرایندهای شکل‌دهی سرامیک‌ها جهت دستیابی به سرامیک‌هایی با کیفیت بسیار بالا صورت گرفته است. در بیشتر تحقیقات انجام شده از روش پرس خشک<sup>۱۲</sup> برای ساخت سرامیک استفاده شده و تنها در چند مورد به روش شکل‌دهی دوغابی برای ساخت سرامیک شفاف YAG پرداخته شده است [۱۶-۲۰]. روش ریخته‌گری دوغابی و سایر روش‌های شکل‌دهی کلونیدی<sup>۱۳</sup>، روش‌های مناسبی برای ساخت سرامیک شفاف YAG به حساب می‌آیند، زیرا مشکلاتی مانند تشکیل توده‌ها<sup>۱۴</sup> و آگلومره‌ها برطرف شده و پراکندگی یکنواختی حاصل می‌شود [۲۱]. وجود تخلخل‌ها، آخال‌ها و فازهای ثانویه موجب کاهش شفافیت سرامیک‌های YAG می‌گردند، لذا فرایند ریخته‌گری دوغابی باید با استفاده از دوغاب‌های به‌طور یکنواخت پراکنده شده<sup>۱۵</sup> انجام شود.

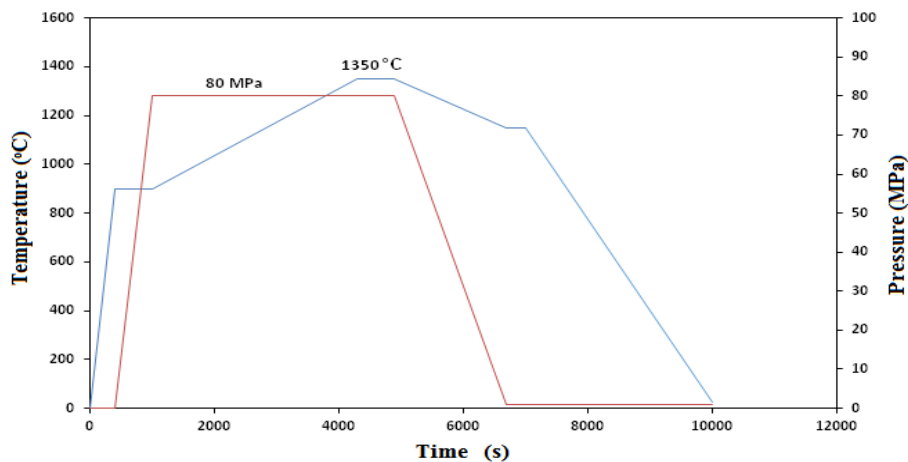
در این پژوهش، از روش شکل‌دهی ریخته‌گری دوغابی پودر نانوکامپوزیت آلومینا/ایتريا با ساختار هسته-پوسته برای ساخت سرامیک شفاف YAG استفاده شده است. ریخته‌گری دوغابی منجر به توزیع یکنواخت تخلخل در بدنه قطعه خام می‌شود و تخلخل‌های بزرگ را حذف می‌کند. این موضوع سبب می‌شود که در مرحله تف‌جوشی، حذف تخلخل‌ها از نظر ترمودینامیکی راحت‌تر صورت گیرد و دمای تف‌جوشی کاهش یابد. تأثیر پارامترهای ساخت دوغاب از جمله اسیدیته، غلظت پراکنده‌ساز و بار جامد بر رفتار

در سیستم دو فازی آلومینا و ایتريا، سه فاز پایدار آلومینات ایتريم با نام‌های ایتريم آلومینیم پروسکایت<sup>۱</sup> (YAP)، ایتريم آلومینیم مونوکلینیک<sup>۲</sup> (YAM) و ایتريم آلومینیم گارنت<sup>۳</sup> (YAG) وجود دارند [۱]. ایتريم آلومینیم گارنت، سرامیکی با پایداری شیمیایی مناسب و خواص اپتیکی و مکانیکی عالی است. این محصول سرامیکی به‌عنوان پوشش دیرگداز لوازم الکترونیکی و همچنین میزبان لیزر حالت جامد<sup>۴</sup> کاربرد دارد [۲]. سنتز پودر YAG به روش‌های مختلفی از جمله سل-ژل [۳ و ۴]، رسوب‌گذاری همگن<sup>۵</sup> [۵]، هم‌رسوبی<sup>۶</sup> [۶]، حرارت حلالی<sup>۷</sup> [۷] و سایر روش‌های شیمی تر<sup>۸</sup> انجام می‌شود، اما سنتز پودر نانو کامپوزیت هسته-پوسته آلومینا/ایتريا به‌روش شیمی تر جزئی<sup>۹</sup> منجر به تشکیل ذراتی با مورفولوژی کروی می‌گردد که در ساخت سرامیک‌های شفاف پارامتر بسیار مهمی است [۸-۱۰]. همچنین در این پودر به‌دلیل استفاده از نانوذرات آلومینا به‌عنوان هسته و پوسته ایتريا با ضخامت چند نانومتری بر سطح ذرات هسته، مسیرهای نفوذ بین دو فاز نسبت به سایر فرایندهای حالت جامد کاهش می‌یابد. در نتیجه تشکیل فاز YAG در دماهای پایین‌تر و زمان‌های کوتاه‌تر در حین فرایند تکلیس [۹] یا تف‌جوشی<sup>۱۰</sup> [۸] تسهیل می‌یابد.

فرآوری سرامیک‌های شفاف بس‌بلور<sup>۱۱</sup> مزایایی در ابعاد و قابلیت شکل‌دهی دارد که در فرایند رشد تک‌بلور وجود ندارد. این مزایا همچنین موجب تولید با صرفه اقتصادی سرامیک‌های بس‌بلور به‌خصوص در صنایع نظامی و کاربردهای لیزر می‌گردد [۱۱-۱۳]. ساخت سرامیک‌های شفاف با چالش‌هایی از قبیل غلظت بسیار پایین

جدول ۱- مشخصات پودر نانوکامپوزیتی هسته- پوسته آلومینا/ ایتریا

میانگین اندازه ذرات (نانومتر)	سطح ویژه (مترمربع بر گرم)	نقطه هم‌باری (اسیدیته)
۱۰۰	۲۰	۹/۸



شکل ۱- سیکل تف‌جوشی دستگاه پلاسمای جرقه‌ای برای نمونه شکل‌دهی شده به روش ریخته‌گری دوغابی و نمونه پودری

۷۰ درصد وزنی از پودر نانوکامپوزیتی آلومینا/ ایتریا به همراه ۲/۵ درصد وزنی دولاپیکس به‌عنوان عامل پراکنده‌ساز در محدوده اسیدیته ۸ تا ۱۱ تهیه شدند. برای پراکندگی یکنواخت ذرات پودر در دوغاب، از دستگاه فراصوت پروب‌دار به مدت ۶۰ ثانیه استفاده شد.

رئولوژیکی دوغاب بررسی شده است. همچنین ریزساختار بدنه خام و سرامیک شفاف YAG مورد مطالعه قرار گرفته است.

## ۲- فعالیت‌های تجربی

### ۱-۲- سنتز پودر نانوکامپوزیتی هسته- پوسته

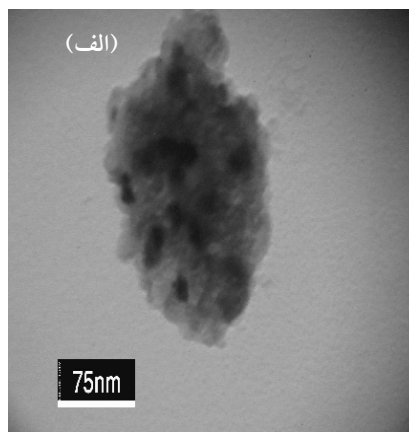
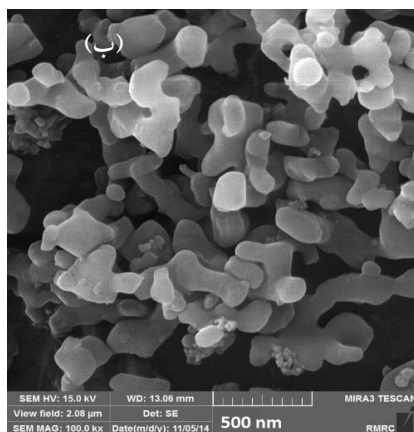
از آنجایی که پودر نانوکامپوزیتی هسته- پوسته آلومینا/ ایتریا به‌صورت تجاری در دسترس نیست، پودر مورد استفاده در این پژوهش به‌روش شیمی تر جزئی که جزئیات آن در مرجع [۸] (پژوهش اخیر گروه) ارائه شده است، سنتز شد. مشخصات کلی پودر سنتز شده شامل اندازه ذرات، مساحت سطح ویژه و نقطه هم‌باری<sup>۱۶</sup> (اسیدیته‌ای که در آن بار روی سطح ذرات صفر است) در جدول (۱) ارائه شده است.

### ۲-۲- آماده‌سازی دوغاب

از آب یون‌زدایی شده (با خلوص ۹۹/۵ درصد) به‌عنوان محیط پراکنده‌ساز و Zschimmer and Schwarz Dolapix CE۶۴ (پراکنده‌ساز و عامل پراکنده‌ساز استفاده شد. دوغاب‌هایی با بار جامد ۶۰-

### ۲-۳- ریخته‌گری دوغابی و فرایند تف‌جوشی

جهت ریخته‌گری دوغابی، ابتدا قالب شیشه‌ای (قطر داخلی ۱۹ میلی‌متر و ارتفاع سه سانتی‌متر) روی لوح آلومینایی با چگالی نسبی ۵۰ درصد (قطر چهار سانتی‌متر و ارتفاع شش سانتی‌متر) چسبانده شد. سپس دوغاب‌ها داخل قالب شیشه‌ای ریخته‌گری شدند. پس از خشک شدن به‌مدت دو روز در دمای محیط، نمونه‌های شکل‌دهی شده از قالب خارج شدند و به‌مدت ۲۴ ساعت در خشک‌کن در دمای ۵۰ درجه سانتی‌گراد خشک شدند. سپس جهت حذف مواد آلی مورد استفاده در تهیه دوغاب، نمونه‌های شکل‌دهی شده به‌مدت سه ساعت در دمای ۶۰۰ درجه سانتی‌گراد پیش‌زیتر شدند. جهت تف‌جوشی، یک نمونه شکل‌دهی شده در داخل قالب گرافیتی قرار گرفت و مطابق سیکل تف‌جوشی نشان داده شده در شکل (۱)،



شکل ۲- پودر نانوکامپوزیتی هسته- پوسته آلومینا/ ایتریا: الف) تصویر میکروسکوپی الکترونی عبوری قبل از کلسینه، ب) تصویر میکروسکوپی الکترونی روبشی نشر میدانی بعد از کلسینه

رویشی نشر میدانی<sup>۱۷</sup> (FE-SEM) Tescan مدل Mira III و میکروسکوپ الکترونی عبوری<sup>۱۸</sup> (TEM) مدل Philips 30 cm استفاده شد. به منظور تعیین فاز، الگوهای XRD از نمونه‌ها (آنکستروم  $\lambda=1/54056$  Cu-K $\alpha_1$ ) توسط دستگاه پراش پرتو ایکس مدل Bruker D8 تحت زاویه پراش ۱۰ درجه تا ۸۰ درجه و نرخ اسکن ۰/۰۵ درجه بر ثانیه تهیه شدند. توزیع تخلخل نمونه ریخته‌گری شده با روش تخلخل سنجی جیوه‌ای (Pascal ۴۴۰، USA) انجام شد. برای ارزیابی عبور نمونه‌های تفجوشی شده، از دستگاه مادون قرمز با تبدیل فوریه مدل Shimadzu ۳۵۰۰S استفاده شد. فاصله منبع تا نمونه ۲۰ سانتی‌متر و نمونه تا آشکارساز ۸۰ سانتی‌متر تنظیم شد.

### ۳- نتایج و بحث

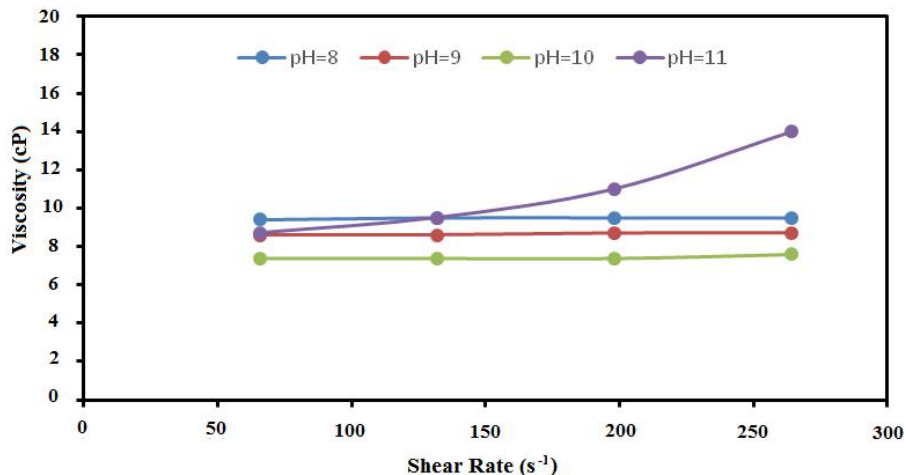
مطابق شکل (۲- الف) تصویر میکروسکوپی الکترونی عبوری از پودر نانوکامپوزیتی آلومینا/ ایتریا سستز شده را نشان می‌دهد، میانگین اندازه ذرات حدود ۱۰۰ نانومتر است. شکل (۲- ب) تصویر میکروسکوپی الکترونی روبشی نشر میدانی ذرات پودر کلسینه شده را نشان می‌دهد. همان‌طور که مشاهده می‌شود، گردنه زینتر<sup>۱۹</sup> اندکی پس از انجام فرایند تکلیس بین ذرات پودری ایجاد شده است. برای تهیه بدنه‌های خام با کیفیت بالا به روش ریخته‌گری

به روش پلاسمای جرقه‌ای (دستگاه SPS دانشگاه مالک اشتر اصفهان) در دمای ۱۳۵۰ درجه سانتی‌گراد و فشار ۸۰ مگاپاسکال به مدت ۱۰ دقیقه تفجوشی شد. برای مقایسه و بررسی تأثیر روش شکل‌دهی ریخته‌گری دوغابی قبل از فرایند تفجوشی، یک نمونه پودری (شکل‌دهی نشده) نیز داخل قالب گرافیتی ریخته و تحت همین سیکل، تفجوشی شد.

### ۲-۴- آزمون‌های مشخصه‌یابی

اسیدپتیه دوغاب‌ها با استفاده از pH متر ساخت شرکت Milwaukee با مدل Mi ۱۸۰ در دمای ۲۵ درجه سانتی‌گراد اندازه‌گیری شد. برای تغییر اسیدپتیه دوغاب از اسید نیتریک (۶۵ درصد Merck) و محلول آمونیاک (۲۵ درصد Merck) استفاده شد. گرانیوی دوغاب با یک ویسکومتر مدل DV۲T از شرکت Brookfield اندازه‌گیری شد. در طی اندازه‌گیری خواص رئولوژی دوغاب، تجهیزات در دمای ۲۵ درجه سانتی‌گراد ثابت نگاه داشته شد. اندازه‌گیری چگالی نمونه‌های خام و همچنین نمونه‌های تفجوشی شده با روش ارشمیدس در محیط آب انجام گرفت.

برای مشخصه‌یابی مورفولوژی نانوذرکات کامپوزیتی سستز شده و همچنین ریزساختار سرامیک ریخته‌گری شده و سرامیک‌های تفجوشی شده، از میکروسکوپ الکترونی

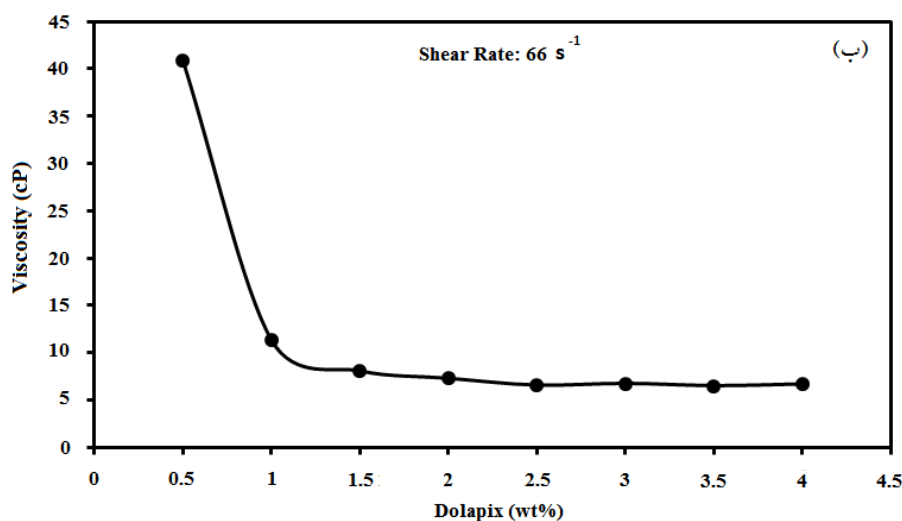
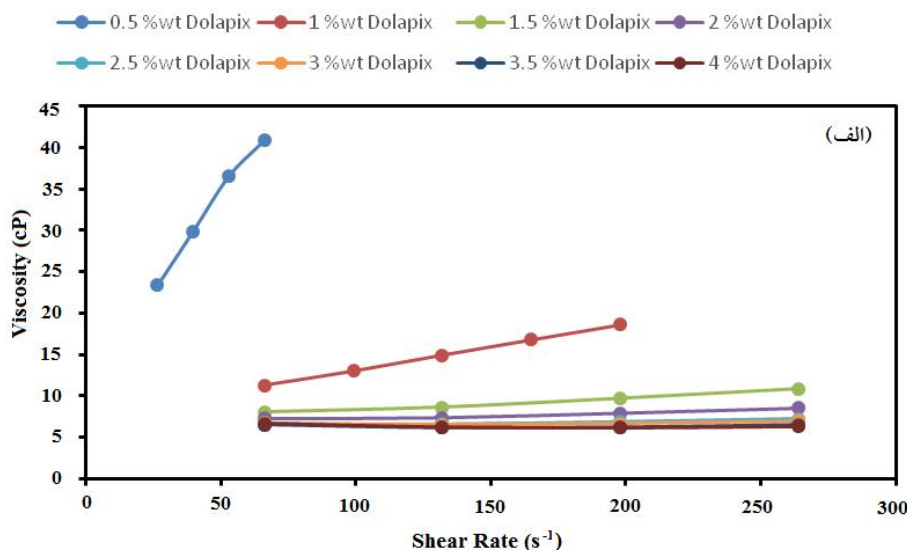


شکل ۳- نمودار گرانروی- نرخ برشی دوغاب پودر نانوکامپوزیتی آلومینا/ ایترا به عنوان تابعی از اسیدیت

بین یونهای  $\text{COO}^-$  و ذرات پودری با بار سطحی منفی، در اسیدیت ۱۱ (بالتر از نقطه هم‌باری) دوغاب دارای رفتار غلیظ شدن برشی است که برای تهیه دوغاب با پراکندگی یکنواخت کاملاً نامناسب است. همچنین در اسیدیت ۱۱، استحکام یونی بالا موجب افزایش بار در فاز مایع و کاهش اختلاف پتانسیل بین سطح پودر و فاز مایع می‌گردد که در نهایت موجب افزایش گرانروی و رفتار غیر نیوتونی دوغاب در این اسیدیت می‌شود [۱۷]. اما در محدوده اسیدیت ۸-۱۰ رفتار دوغاب بهینه است و کمترین میزان گرانروی و بهترین پراکندگی در اسیدیت ۱۰ دیده می‌شود. براساس نظریه ارائه شده توسط اوشیما<sup>۲۳</sup> [۲۳]، حرکت الکتروفوریتیک ذرات YAG به بار و غلظت لایه پراکنده‌ساز جذب شده به سطح ذرات وابسته است.

در شکل (۴)، رفتار رئولوژی دوغاب در اسیدیت ۱۰ با تغییر درصد وزنی دولاپیکس به عنوان عامل پراکنده‌ساز مورد مطالعه قرار گرفته است. مطابق شکل (۴-الف)، دوغاب حاوی ۰/۵ و یک درصد وزنی دولاپیکس دارای رفتار غلیظ شدن برشی است، اما با افزایش مقدار پراکنده‌ساز در مقادیر بالای ۱/۵ درصد وزنی دولاپیکس، رفتار دوغاب به سمت رفتار نیوتونی پیش می‌رود. در شکل (۴-ب)، تأثیر افزایش غلظت دولاپیکس بر گرانروی دوغاب بررسی شده است. مشاهده می‌شود که افزایش مقدار دولاپیکس تا ۲/۵ درصد وزنی موجب کاهش

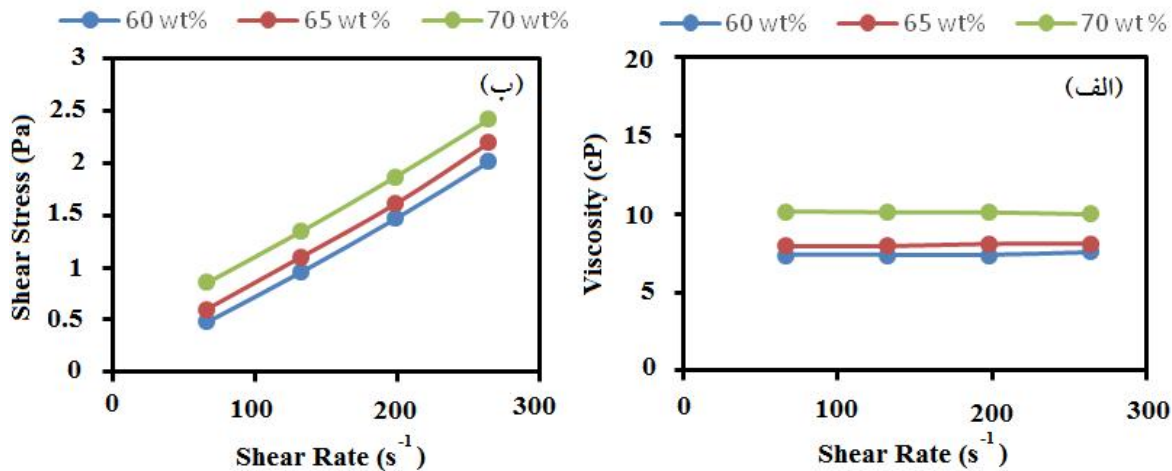
دوغابی، ایجاد پراکندگی یکنواخت در دوغاب‌هایی با بار جامد بالا ضروری است. در این پژوهش به منظور دستیابی به دوغابی با پراکندگی یکنواخت ذرات و رفتار رئولوژیکی مناسب، پارامترهای مختلف مؤثر بر رئولوژی دوغاب از جمله اسیدیت، غلظت پراکنده‌ساز و بار جامد دوغاب بررسی شد. در شکل (۳)، رفتار رئولوژیکی دوغاب حاوی ۱/۵ درصد وزنی دولاپیکس به عنوان تابعی از اسیدیت در محدوده ۸-۱۱ نشان شده است. مطابق این نمودار، در مقادیر اسیدیت ۸، ۹ و ۱۰ رفتار دوغاب نیوتونی است و با افزایش اسیدیت، گرانروی دوغاب کاهش می‌یابد. در اسیدیت ۱۱، رفتار غلیظ شدن برشی<sup>۲۰</sup> یا همان جریان دیلاتانت<sup>۲۱</sup> مشاهده می‌شود که مشخصه دوغاب‌هایی با بار جامد بالا و یا دوغاب‌هایی است که در آنها نیروهای دافعه الکترواستاتیکی شدیدی بین ذرات وجود دارد [۲۲]. پراکنده‌ساز دولاپیکس CE۶۴ به‌طور عمده پلی‌کربوکسیلیک اسید<sup>۲۲</sup> است که در مقادیر اسیدیت بالای ۹ به‌طور کامل تجزیه می‌شود و می‌تواند جذب سطح ذرات اکسیدی پراکنده شده در دوغاب گردد [۱۹]. در اسیدیت ۱۱، سطح ذرات پودر به‌علت جذب گروه‌های  $\text{OH}^-$  دارای بار سطحی منفی است. همچنین در این اسیدیت، پراکنده‌ساز دولاپیکس نیز به‌طور کامل تجزیه و گروه‌های  $\text{COO}^-$  ایجاد می‌شوند [۱۹]. بنابراین به‌علت ایجاد نیروهای دافعه بسیار شدید



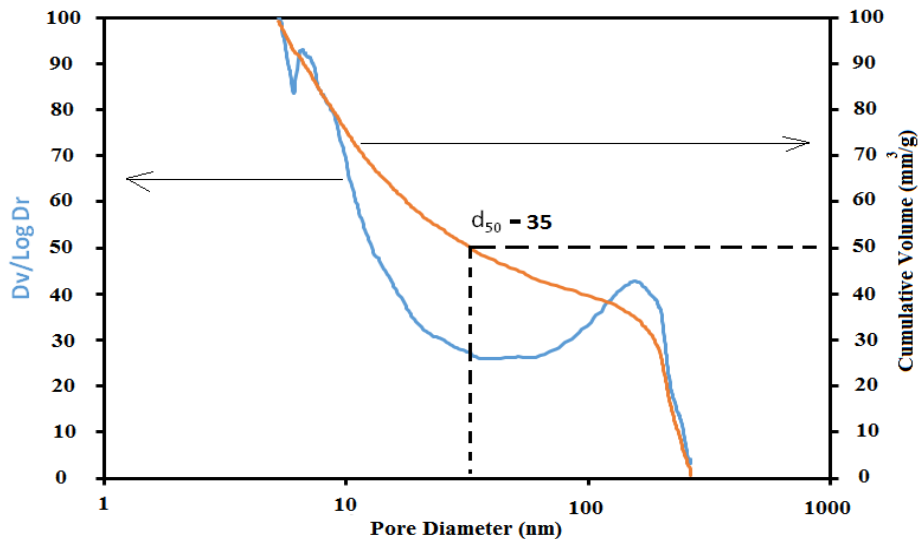
شکل ۴- الف) نمودار گرانروی - نرخ برشی دوغاب پودر نانوکامپوزیتی آلومینا/ ایتریا به عنوان تابعی از مقدار پراکنده ساز دولاپیکس در اسیدیته ۱۰، ب) روند تغییر گرانروی دوغاب با تغییر غلظت دولاپیکس

فشار ایجاد شده توسط دفع زنجیره‌های پلیمری جذب نشده بین دو ذره پوشش یافته با پراکنده‌ساز، هنگام نزدیک شدن به هم دوغاب لخته<sup>۲۷</sup> می‌شود [۱۶]. شکل (۵)، تأثیر افزایش بار جامد دوغاب حاوی ۲/۵ درصد وزنی پراکنده‌ساز در اسیدیته ۱۰ را نشان می‌دهد. مطابق این نمودارها، دوغاب در تمام‌بهارهای جامد (۶۰ تا ۷۰ درصد وزنی) رفتار نیوتونی دارد و با افزایش بار جامد، گرانروی دوغاب نیز افزایش می‌یابد. هدف از انجام فرایندهای شکل‌دهی قبل از فرایند

میزان گرانروی دوغاب می‌شود. اما افزایش بیشتر مقدار دولاپیکس، تأثیری بر روی گرانروی دوغاب نداشته و در واقع گرانروی دوغاب به یک مقدار ثابت می‌رسد. به عبارت دیگر می‌توان پیش‌بینی کرد که ۲/۵ درصد وزنی دولاپیکس، مقداری از پراکنده‌ساز است که به صورت یک تک‌لایه سطح ذرات پودری را پوشانده است. افزایش بیشتر مقدار دولاپیکس، به عنوان الکترولیت آزاد<sup>۲۴</sup> در سیستم عمل می‌کند و استحکام یونی<sup>۲۵</sup> را افزایش می‌دهد. در نتیجه در اثر نیروی اسمزی<sup>۲۶</sup> یا



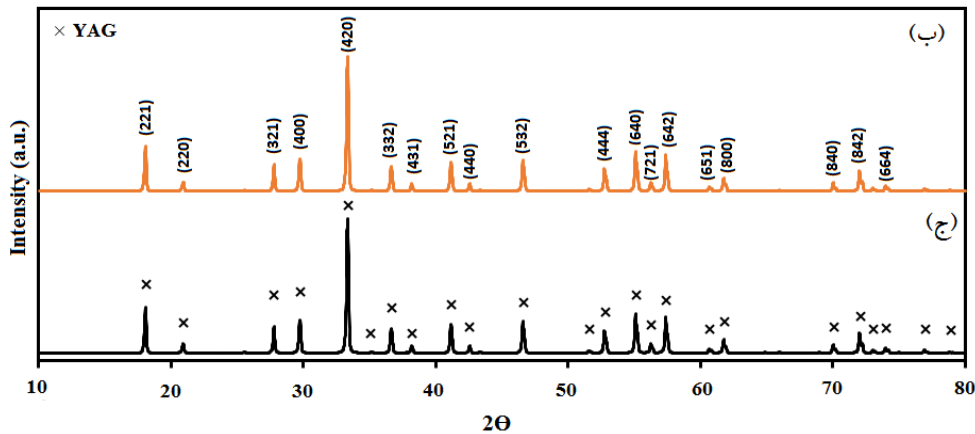
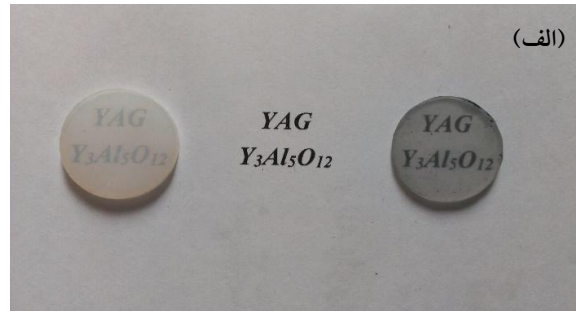
شکل ۵- الف) نمودار گرانروی- نرخ برشی و ب) نمودار تنش برشی- نرخ برشی دوغاب پودر نانوکامپوزیتی آلومینا/ ایتریا در اسیدیته ۱۰ برحسب تابعی از بار جامد



شکل ۶- نمودار توزیع تخلخل نمونه خام حاصل از ریخته‌گری دوغابی

تخلخل‌ها دارای اندازه زیر ۳۵ نانومتر می‌باشند. تخلخل‌هایی با این ابعاد حین فرایند تف‌جوشی به راحتی قابل حذف می‌باشند. شکل (۷-الف) تصاویر نمونه‌های سرامیکی شفاف که با فرایند SPS، تف‌جوشی شده‌اند را نشان می‌دهد. تصویر سمت راست مربوط به نمونه حاصل از ریخته‌گری دوغابی و تصویر سمت چپ متعلق به نمونه پودری نانوکامپوزیتی هسته/ پوسته تف‌جوشی شده است. همان‌طور که در تصویر نیز مشخص

تف‌جوشی، به دست آوردن قطعه‌ای خام با توزیع اندازه تخلخل یکنواخت است تا این تخلخل‌ها حین تف‌جوشی با سهولت حذف شوند و از رشد شدید دانه‌ها جلوگیری به عمل آید. مطابق نمودار ارائه شده در شکل (۶)، توزیع تخلخل نمونه حاصل از ریخته‌گری دوغابی، به صورت دوگانه<sup>۲۸</sup> است، اما بیشتر تخلخل‌ها دارای اندازه زیر ۱۰۰ نانومتر می‌باشند. d<sub>۵۰</sub> به دست آمده از نمودار تجمعی نشان می‌دهد که ۵۰ درصد



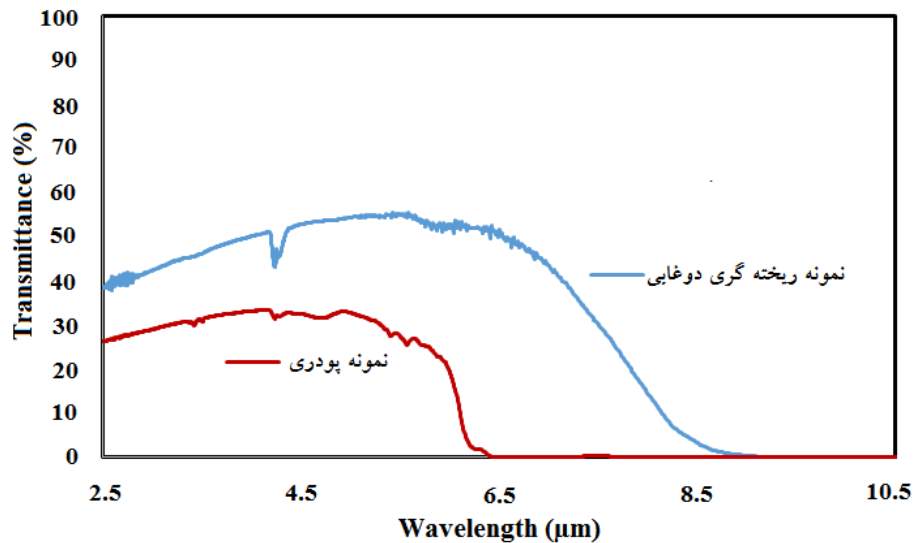
شکل ۷- الف) تصاویر نمونه‌های سرامیکی تفجوشی شده به روش پلاسمای جرقه‌ای (سمت راست: نمونه حاصل از ریخته‌گری دوغابی، سمت چپ: نمونه پودری)، ب) الگوی پراش پرتو ایکس نمونه ریخته‌گری دوغابی بعد از تفجوشی، ج) الگوی پراش پرتو ایکس نمونه پودری بعد از تفجوشی

شکل دهی قبل از تفجوشی است.

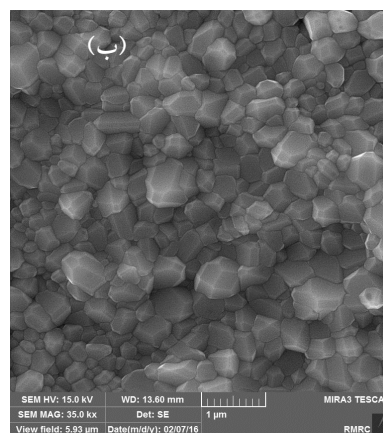
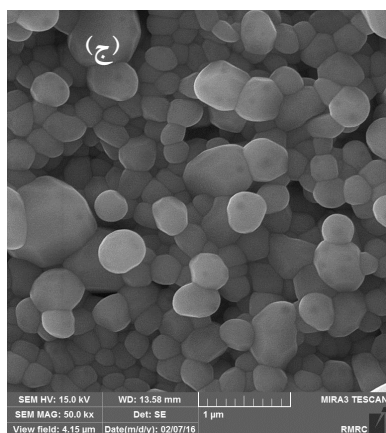
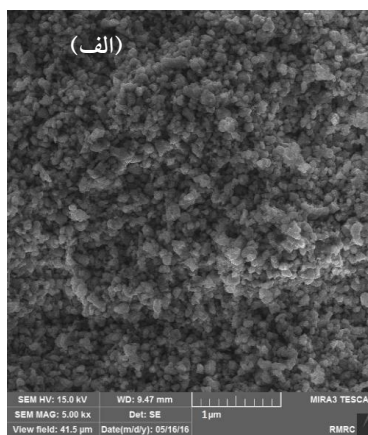
شکل (۹)، تصاویر سطح مقطع شکست قطعه خام حاصل از ریخته‌گری دوغابی با چگالی نسبی ۶۵ درصد و نمونه‌های تفجوشی شده به روش پلاسمای جرقه‌ای را نشان می‌دهد. همان‌طور که مشاهده می‌شود در نمونه خام شکل دهی شده به روش ریخته‌گری دوغابی، ذرات به‌طور کاملاً یکنواخت و متراکم کنار هم قرار گرفته‌اند و تقریباً توزیع یکنواختی از تخلخل‌ها در نمونه مشاهده می‌شود (شکل ۹-الف)). در نمونه ریخته‌گری دوغابی SPS شده، دانه‌ها رشد یکنواختی دارند و تخلخل‌ها حین فرایند تفجوشی حذف شده‌اند (شکل ۹-ب)). اما ریزساختار نمونه پودری SPS شده نشانگر وجود برخی تخلخل‌های حذف نشده است (شکل ۹-ج)). این تخلخل‌ها به‌عنوان مراکز پراکنش نور عمل کرده و باعث

است، میزان شفافیت نمونه حاصل از ریخته‌گری دوغابی (نمونه سمت راست) بیشتر از نمونه پودری (نمونه سمت چپ) است. الگوی پراش پرتو ایکس نمونه‌های SPS شده در شکل (۷-ب و ۷-ج)، گویای تشکیل ترکیب تک‌فاز YAG در هر دو نمونه سرامیکی است. همان‌طور که مشاهده می‌شود با تفجوشی پلاسمای جرقه‌ای، حتی بدون افزودن عامل کمک تفجوشی مانند  $\text{SiO}_2$  [۲۴ و ۲۵] یا  $\text{MgO}$  [۲۶ و ۲۷]، سرامیک‌های شفاف YAG به‌دست آمده است. مطابق شکل (۸)، میزان عبور برخط<sup>۲۹</sup> سرامیک‌های شفاف YAG حاصل از نمونه ریخته‌گری دوغابی حدود ۶۰ درصد و نمونه پودری حدود ۳۰ درصد برآورد شده است. بنابراین در شرایط یکسان تفجوشی، عبور برخط نمونه ریخته‌گری دوغابی شده حدود دو برابر نمونه پودری است که این نتیجه نمایانگر مزیت انجام فرایند





شکل ۸- منحنی‌های عبور نمونه حاصل از ریخته‌گری دوغابی و پودری بعد از تف‌جوشی به‌روش SPS (نمونه‌های شکل ۷- الف)



شکل ۹- تصاویر میکروسکوپی الکترونی روبشی نشر میدانی از سطح مقطع شکست: الف) نمونه خام حاصل از ریخته‌گری دوغابی، ب) نمونه شکل‌دهی شده به‌روش ریخته‌گری دوغابی و سپس تف‌جوشی شده به‌روش پلاسما جرقه‌ای، ج) نمونه پودری تف‌جوشی شده به‌روش پلاسما جرقه‌ای

#### ۴- نتیجه گیری

در این پژوهش، سرامیک شفاف YAG با عبور ۶۰ درصد، با عملیات تفجوشی پلاسمای جرقه‌ای نمونه خام شکل‌دهی شده به روش ریخته‌گری دوغابی در دمای ۱۳۵۰ درجه سانتی‌گراد و زمان توقف ۱۰ دقیقه به دست آمد که این میزان عبور حدود ۳۰ درصد بیشتر از عبور نمونه پودری تفجوشی شده تحت شرایط یکسان تفجوشی بود. فرایند ریخته‌گری دوغابی باعث ایجاد تخلخل‌های ریز و توزیع اندازه تخلخل یکنواخت در بدنه نمونه خام سرامیکی می‌شود. به گونه‌ای که این تخلخل‌ها حین فرایند تفجوشی به راحتی حذف می‌شوند و از رشد افراطی دانه نیز ممانعت به عمل می‌آورند. همچنین نتایج نشان داد که پایدارترین دوغاب در اسیدیته ۱۰ به دست می‌آید که در این حالت دارای پایین‌ترین مقدار گرانروی است. دوغاب حاوی ۲/۵ درصد وزنی دولاپیکس در اسیدیته ۱۰ دارای رفتار نیوتونی است و این رفتار حتی در دوغاب با بار جامد ۷۰ درصد وزنی نیز حفظ می‌شود. چنین نمونه‌ای دارای چگالی نسبی بالای ۶۰ درصد و ریزساختار یکنواخت است.

کاهش شفافیت قطعه نهایی شده است (شکل (۸)). بنابراین دستیابی به قطعه خام با توزیع یکنواخت اندازه تخلخل با انجام فرایند شکل‌دهی ریخته‌گری دوغابی، عامل کلیدی در دستیابی به نمونه سرامیکی شفاف با عبور نور بالا و ریزساختار یکنواخت پس از فرایند تفجوشی است. میانگین اندازه دانه‌های نمونه‌های تفجوشی شده حدود ۴۰۰-۵۰۰ نانومتر است شکل (۹-ب و ۹-ج) که در مقایسه با اندازه دانه نمونه‌های سرامیکی تفجوشی شده به روش خلأ<sup>۳</sup> که توسط سایر محققین گزارش شده [۹] بسیار کوچک‌تر است. به عبارت دیگر دمای تفجوشی پایین‌تر و زمان تفجوشی بسیار کوتاه‌تر در فرایند پلاسمای جرقه‌ای، در مقایسه با روش تفجوشی در خلأ، عامل اصلی و تأثیرگذار در دستیابی به سرامیک شفاف YAG با ساختار ریزدانه شده است. همچنین مشاهده می‌شود که رشد دانه در نمونه ریخته‌گری شده نسبت به نمونه پودری تفجوشی شده یکنواخت‌تر است و گاهاً رشد دانه غیرنرمال<sup>۳۱</sup> در ریزساختار نمونه پودری تفجوشی شده به چشم می‌خورد.

#### واژه‌نامه

1. Yttrium Aluminum Perovskite (YAP)
2. Yttrium Aluminum Monoclinic (YAM)
3. Yttrium Aluminum Garnet (YAG)
4. solid state laser
5. homogeneous precipitation
6. co-precipitation
7. solvothermal
8. wet chemical routes
9. partial wet route
10. spark plasma sintering (sps)
11. polycrystalline transparent ceramics
12. dry pressing
13. colloidal forming techniques
14. aggregates
15. well dispersed slurries
16. iso-electric point (iep)
17. field emission scanning electron microscopy
18. transmission electron microscopy
19. neck sintering
20. shear thickening
21. dilatant flow
22. polycarboxylic acid
23. Ohshima
24. free electrolyte
25. ionic strength
26. Osmotic force
27. flocculation
28. bimodal
29. in-line transmission
30. vacuum sintering
31. abnormal

- Edney, C., Condrate, R. A., Crandall, W., and Washburn, M., "A Spectral Investigation of  $Y_2O_3-Al_2O_3$  Materials Prepared by a Sol-Gel Process", *Materials Letters*, Vol. 4, pp. 470-474, 1986.
- Abell, J., Harris, I., Cockayne, B., and Lent, B., "An Investigation of Phase Stability in the  $Y_2O_3-Al_2O_3$  System", *Journal of Materials Science*, Vol. 9, pp. 527-537, 1974.
- Hassanzadeh-Tabrizi, S., Taheri-Nassaj, E., and Sarpoolaky, H., "Synthesis of an Alumina-YAG Nanopowder Via Sol-Gel Method", *Journal of Alloys and Compounds*, Vol. 456, pp. 282-285, 2008.
- Fu, Y. P., Wen, S. B., and Hsu, C. S., "Preparation and Characterization of  $Y_3Al_5O_{12}:Ce$  and  $Y_2O_3:Eu$  Phosphors Powders by Combustion Process", *Journal of Alloys and Compounds*, Vol. 458, pp. 318-322, 2008.
- Sordelet, D., Akinc, M., Panchula, M., Han, Y., and Han, M., "Synthesis of Yttrium Aluminum Garnet Precursor Powders by Homogeneous Precipitation", *Journal of the European Ceramic Society*, Vol. 14, pp. 123-130, 1994.
- Wang, H., Gao, L., and Niihara, K., "Synthesis of Nanoscaled Yttrium Aluminum Garnet Powder by the Co-Precipitation Method", *Materials Science and Engineering: A*, Vol. 288, pp. 1-4, 2000.
- Li, X., Liu, H., Wang, J., Cui, H., Han, F., and Boughton, R., "Production of Nanosized YAG Powders with Spherical Morphology and Nonaggregation via a Solvothermal Method", *Journal of the American Ceramic Society*, Vol. 87, pp. 2288-2290, 2004.
- Kafili, G., Movahedi, B., and Milani, M., "A Comparative Approach to Synthesis and Sintering of Alumina/Yttria Nanocomposite Powders using Different Precipitants", *Materials Chemistry and Physics*, Vol. 183, pp. 136-144, 2016.
- Sang, Y., Qin, H., Liu, H., Zhao, L., Wang, Y., and Jiang, H., "Partial Wet Route for YAG Powders Synthesis Leading to Transparent Ceramic: A Core-Shell Solid-State Reaction Process", *Journal of the European Ceramic Society*, Vol. 33, pp. 2617-2623, 2013.
- Guo, D., Zhao, L., Sang, Y., Liu, H., Liu, S., and Sun, X., " $Al_2O_3/Yttrium$  Compound Core-Shell Structure Formation with Burst Nucleation: A Process Driven by Electrostatic Attraction and High Surface Energy", *RSC Advances*, Vol. 4, pp. 55400-55406, 2014.
- Greskovich, C., and Chernoch, J., "Polycrystalline Ceramic Lasers", *Journal of Applied Physics*, Vol. 44, pp. 4599-4606, 1973.
- Sekita, M., Haneda, H., Yanagitani, T., and Shirasaki, S., "Induced Emission Cross Section of Nd:  $Y_3Al_5O_{12}$  Ceramics", *Journal of Applied Physics*, Vol. 67, pp. 453-458, 1990.
- Lu, J., Prabhu, M., Xu, J., Ueda, K-i., Yagi, H., and Yanagitani, T., "Highly Efficient 2% Nd: Yttrium Aluminum Garnet Ceramic Laser", *Applied Physics Letters*, Vol. 77, pp. 3707-3709, 2000.
- Ikesue, A., Yoshida, K., Yamamoto, T., and Yamaga, I., "Optical Scattering Centers in Polycrystalline Nd: YAG Laser", *Journal of the American Ceramic Society*, Vol. 80, pp. 1517-1522, 1997.
- Dubinskii, M., Merkle, L. D., Goff, J. R., Quarles, G. J., Castillo, V. K., and Schepler, K. L., "Processing Technology, Laser, Optical and Thermal Properties of Ceramic Laser Gain Materials", *International Society for Optics and Photonics*, Vol. 5792, pp. 1-9, 2005.
- Appiagyei, K. A., Messing, G. L., and Dumm, J. Q., "Aqueous Slip Casting of Transparent Yttrium Aluminum Garnet (YAG) Ceramics", *Ceramics International*, Vol. 34, pp. 1309-1313, 2008.
- Li, X., and Li, Q., "YAG Ceramic Processed by Slip Casting via Aqueous Slurries", *Ceramics International*, Vol. 34, pp. 397-401, 2008.
- Ji, X., Deng, J., Kang, B., Huang, H., Wang, X., and Jing, W., "Fabrication of Transparent Neodymium-Doped Yttrium Aluminum Garnet Ceramics by High Solid Loading Suspensions", *Ceramics International*, Vol. 39, pp. 7921-7926, 2013.
- Guo, W., Huang, J., Lin, Y., Huang, Q., Fei, B., and Chen, J., "A Low Viscosity Slurry System for Fabricating Chromium Doped Yttrium Aluminum Garnet (Cr: YAG) Transparent Ceramics", *Journal of the European Ceramic Society*, Vol. 35, pp. 3873-3878, 2015.
- Lv, Y., Zhang, W., Tan, J., Sang, Y., Qin, H., and Hu, J., "Dispersion of Concentrated Aqueous Neodymia-Yttria-Alumina Mixture with Ammonium Poly (Acrylic Acid) as Dispersant", *Journal of Alloys and Compounds*, Vol. 509, pp. 3122-3127, 2011.
- Lewis, J. A., "Colloidal Processing of Ceramics", *Journal of the American Ceramic Society*, Vol. 83, pp. 2341-2359, 2000.
- Lange, F. F., "Powder Processing Science and Technology for Increased Reliability", *Journal of the American Ceramic Society*, Vol. 72, pp. 3-15, 1989.
- Chou, K. S., and Lee, L. J., "Effect of Dispersants on the Rheological Properties and Slip Casting of Concentrated Alumina Slurry", *Journal of the American Ceramic Society*, Vol. 72, pp. 1622-1627, 1989.
- Ikesue, A., and Kamata, K., "Microstructure and Optical Properties of Hot Isostatically Pressed Nd: YAG Ceramics", *Journal of the American Ceramic Society*, Vol. 79, pp. 1927-1933, 1996.
- Ikesue, A., Yoshida, K., and Kamata, K., "Transparent  $Cr^{4+}$ -Doped YAG Ceramics for

- Tunable Lasers”, *Journal of the American Ceramic Society*, Vol. 79, pp. 507-509, 1996.
26. Ikesue, A., Kamata, K., and Yoshida, K., “Effects of Neodymium Concentration on Optical Characteristics of Polycrystalline Nd: YAG Laser Materials”, *Journal of the American Ceramic Society*, Vol. 79, pp. 1921-1926, 1996.
27. Li, Y., Zhou, S., Lin, H., Hou, X., Li, W., and Teng, H., “Fabrication of Nd: YAG Transparent Ceramics with TEOS, MgO and Compound Additives as Sintering Aids”, *Journal of Alloys and Compounds*, Vol. 502, pp. 225-230, 2010.