



## جوشکاری و تقویت همزمان آلیاژهای آلومینیوم با نانو ذرات اکسیدی و ترکیبات بین فلزی به روش سنتز احتراقی

احسان بهرامی مطلق<sup>۱</sup>، جلیل وحدتی خاکی<sup>۲</sup>، محسن حداد سبزواری<sup>۳</sup>

### چکیده

در این تحقیق، انرژی گرمایی آزاد شده از واکنش های سنتز احتراقی در سیستم پودری Al-Ni-CuO برای جوشکاری آلیاژ آلومینیوم ۱۱۰۰ مورد استفاده قرار گرفت. قرص پودری واکنش کننده بین دو صفحه‌ی آلیاژی آلومینیوم، که قبلاً آماده سازی سطحی شده بودند، قرار گرفت و این مجموعه تا بالاتر از دمای شروع واکنش حرارت داده شد. سطح مقطع اتصال بدست آمده که شامل نواحی جوش، محیط واکنش کرده و فلز پایه است به کمک میکروسکوپ‌های نوری و الکترونی روبشی مجهز به آنالیزگر EDS و همچنین با استفاده از آزمایش پراش اشعه ایکس مورد بررسی قرار گرفت. میکروسختی سنجی ویکرز نیز در سطح مقطع جوش انجام شد. نتایج نشان داد که ضخامتی حدود  $800\mu\text{m}$  از سطح فلزات پایه ذوب شده است و عناصر آلیاژی از قرص واکنش کننده به داخل فلز پایه نفوذ کرده و ترکیبات بین فلزی مختلفی مانند  $\text{Al}_3\text{Ni}_2$  و  $\text{Al}_7\text{Cu}_4\text{Ni}$  تشکیل داده‌اند. نانو ذرات  $\text{Al}_2\text{O}_3$  نیز به صورت درجا و در نتیجه-ی اتفاق افتادن واکنش ترمیت تشکیل شده‌اند. این ترکیبات بین فلزی و اکسیدی به عنوان فاز تقویت کننده عمل کرده و سختی نواحی جوش و قرص پودری واکنش کرده را نسبت به فلز پایه بسیار افزایش داده‌اند. استحکام برشی اتصال بدست آمده حدود ۲۷ مگاپاسکال تعیین شد.

**واژه‌های کلیدی:** سنتز احتراقی، جوشکاری، آلومینیوم، ترکیبات بین فلزی، نانو ذرات.

۱- دانشجوی کارشناسی ارشد، شناسایی و انتخاب مواد مهندسی، دانشگاه فردوسی مشهد، ebahramimotlagh@gmail.com

۲- استاد، گروه مهندسی متالورژی و مواد دانشگاه فردوسی مشهد

۳- دانشیار، گروه مهندسی متالورژی و مواد دانشگاه فردوسی مشهد

## ۱. مقدمه

واکنش ترمیت برای اولین بار در سال ۱۸۹۷ در جوشکاری ریل‌های راه آهن به کار گرفته شد. در این واکنش پودرهای  $Fe_2O_3$  و  $Al$  با هم مخلوط شده و بعد از شروع حرارتی با یکدیگر واکنش داده تا  $Fe$  و  $Al_2O_3$  مذاب تولید کند، از آنجایی که گرمای آزاد شده از واکنش‌های شیمیایی مورد استفاده قرار می‌گیرد این فرایند از لحاظ اقتصادی بسیار مقرون به صرفه می‌باشد [1]. بالا بودن دمای شروع واکنش در این مخلوط‌های گرمازا، مانع اصلی در بکارگیری آن‌ها برای جوشکاری موادی مانند آلیاژهای آلومینیوم و به طور کلی موادی با نقطه ذوب پایین بوده است؛ چرا که معمولاً این دما از نقطه ذوب این مواد بالاتر است. روش‌هایی مانند آلیاژسازی (فعال سازی) مکانیکی برای کاهش دمای شروع واکنش توسعه یافته و به این ترتیب نانو کامپوزیت‌های فعال (نیمه پایدار) مختلفی تولید شده‌اند [2-4]. در بین آن‌ها نانو کامپوزیت‌های  $Al-CuO$  توجه ویژه‌ای را به خود جلب نموده‌اند زیرا این واکنش به شدت گرمازا است [2,5] و دمای آن می‌تواند کنترل شود به گونه‌ای که بتواند مس در فاز گازی و یا به صورت مذاب تولید کند [2]. اخیراً ترکیب فعال سازی مکانیکی و حرارتی واکنش‌های شیمیایی کاربردهای ممکن برای هر دو روش را توسعه داده است [6, 7]. در این فرایند، فعال‌سازی مکانیکی واکنش‌ها به عنوان یک مرحله میانی و به منظور بهبود سینتیک واکنش‌ها طی عملیات حرارتی بعدی استفاده می‌شود [6]. مشاهده شده است که فعال‌سازی مکانیکی می‌تواند دمای لازم برای تکامل واکنش‌ها را به طور قابل ملاحظه‌ای کاهش دهد. هنگامی که کامپوزیت‌های فعال شده‌ی مکانیکی به عنوان یک پیش‌ماده استفاده شوند محدودیت‌های آلیاژسازی مکانیکی کمینه شده و کارایی آن افزایش می‌یابد. در نتیجه تمامی مزایای فرایند مکانو-شیمیایی حفظ شده در حالی که محدودیت‌ها به شدت کاهش می‌یابند. در این تحقیق، فرایند فعال‌سازی مکانیکی - حرارتی در سیستم پودری  $14Al+Ni+3CuO$  برای جوشکاری آلیاژ آلومینیوم ۱۱۰۰ استفاده شد. بدین ترتیب، کاربردهای واکنش ترمیت به جوشکاری مواد غیر دیرگداز نیز توسعه یافت. مزایای این فرایند از دو دیدگاه قابل توجه می‌باشد: اولاً نیاز به منبع تغذیه جوشکاری حذف می‌شود و ثانیاً چون بخشی از مواد اولیه اکسید فلزات می‌باشد مرحله‌ی احیاء در فرایند جوشکاری ادغام می‌شود که هر دو عامل فرایند را از لحاظ اقتصادی مقرون به صرفه می‌سازند.

## ۲. روند تجربی

واکنش ترمیت مورد استفاده در این تحقیق متشکل از پودرهای  $(Al(99\%, 30 \mu m), Ni(99,99\%, 20 \mu m)$  و  $CuO(\mu m, >99\%)$  بود. صفحاتی از جنس آلیاژ آلومینیوم ۱۱۰۰ نیز با ابعاد  $20 \text{ mm} \times 20 \text{ mm}$  جهت جوشکاری تهیه شد که ترکیب شیمیایی آن در جدول ۱ آورده شده است. مقدار ۳

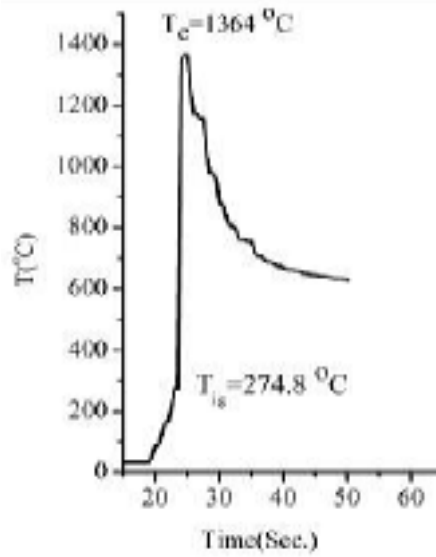
گرم از مخلوط ترمیت مذکور با نسبت استوکیومتری "Ni+14Al+3CuO" به مدت ۵ ساعت بال میل شد. شرایط بال میل (که به گونه‌ای انتخاب شده بود تا از اتفاق افتادن واکنش سنتز در ظرف بال میل جلوگیری شود و تنها فعال سازی مکانیکی حاصل شود) عبارت بود از: نسبت وزنی گلوله به پودر ۱۰، سرعت چرخشی ۲۰۰ دور بر دقیقه که ۴ میلی لیتر هگزان نیز به عنوان عامل کنترل کننده‌ی فرآیند (PCA) استفاده شد. قرص‌های پودری ۰/۲ گرمی از مخلوط پودری بدست آمده تحت فشار تک محوره‌ی ۲۷۶ مگاپاسکال در قالب فولادی با قطر ۱۷ میلی متر تهیه شد. جهت تعیین دمای شروع واکنش سنتز احتراقی در این مخلوط پودری یک سیم ترموکوپل در یک قرص پودری پرس شد و با استفاده از دستگاه ثبت داده (Data Acquisition) دمای فرآیند ثبت شد. سپس، جهت جوشکاری دو آلیاژ آلومینیوم ۱۱۰۰ به یکدیگر، یک قرص پودری بین دو صفحه قرار گرفت و این مجموعه دوباره تحت فشار ۱۵۷ مگاپاسکال پرس شد. مجموعه‌ی بدست آمده در گیره‌ی فولادی بسته شد و تا دمای شروع واکنش سنتز احتراقی تحت فشار استاتیک حرارت داده شدند که در نتیجه صفحات به یکدیگر جوش خوردند. استحکام برشی نمونه‌ی جوشکاری شده با استفاده از نیروی فشاری دستگاه تست کشش (Zwick/Z 250) و گیره‌ی فولادی که به همین منظور طراحی شده بود اندازه‌گیری شد. همچنین، نمونه‌های بدست آمده در جهت عمود بر فصل مشترک برش زده شده و مورد آزمایش‌های XRD، EDS و میکروسختی سنجی قرار گرفتند. تصاویر میکروسکوپ نوری و الکترونی از این مقاطع تهیه شد و فازهای تشکیل شده شناسایی شده و ضخامت متوسط ناحیه‌ی جوش تعیین شد.

جدول ۱. ترکیب شیمیایی آلیاژ مورد استفاده

عنصر	Sn	Ni	Cr	Ti	Zn	Mg	Mn	Cu	Fe	Si	Al
درصد وزنی	0.003	0.002	0.005	0.002	0.009	0.007	0.01	0.014	0.266	0.096	باقیمانده

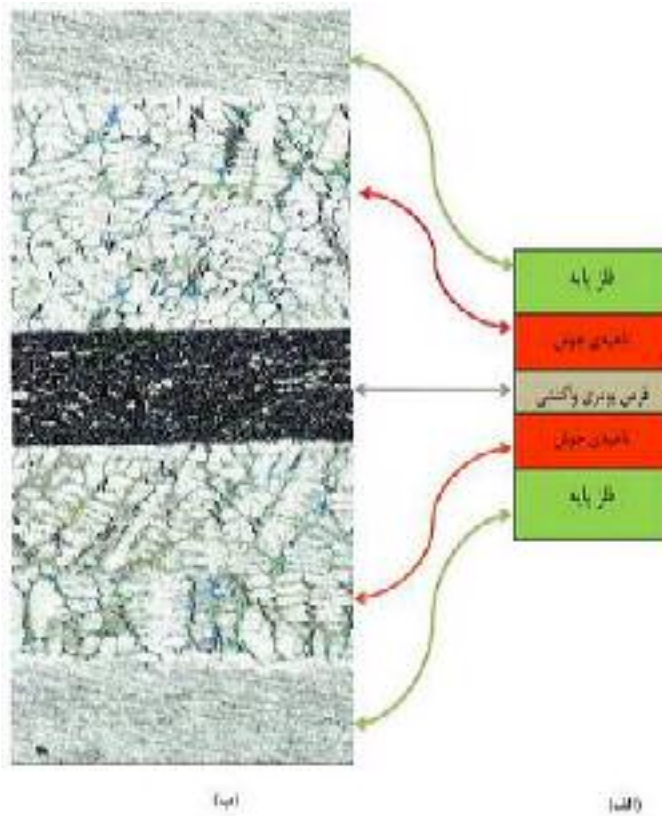
### ۳. نتایج و بحث

شکل ۱ منحنی دما بر حسب زمان مخلوط پودری مورد استفاده را بعد از فعال سازی مکانیکی نشان می‌دهد. از این نمودار دو واقعیت قابل برداشت است: اول اینکه مخلوط پودری پتانسیل انجام واکنش سنتز احتراقی را دارد (افزایش ناگهانی و شدید دما این امر را اثبات می‌کند)؛ دوم اینکه دمای شروع واکنش به حدود  $274^{\circ}\text{C}$  کاهش یافته است. لذا اگر بخواهیم از گرمای واکنش سنتز احتراقی (ترمیت) برای جوشکاری استفاده کنیم حداقل دمای فرآیند باید برابر با این دما باشد. جهت حصول اطمینان از اتفاق افتادن واکنش یک سیکل حرارتی با حداکثر دمای  $650^{\circ}\text{C}$  انتخاب شد.



شکل ۱. منحنی دما- زمان مخلوط پودری مورد استفاده.

شکل های ۲ (الف) و (ب) به ترتیب شماتیک و تصویر میکروسکوپ نوری از سطح مقطع چیدمان جوشکاری را نشان می دهند. این مقاطع از سه ناحیه ی متمایز شامل فلز پایه، ناحیه ی جوش و قرص پودری واکنش کرده تشکیل شده اند.



شکل ۲. (الف) شماتیک و (ب) چیدمان واقعی نمونه های جوشکاری شده.

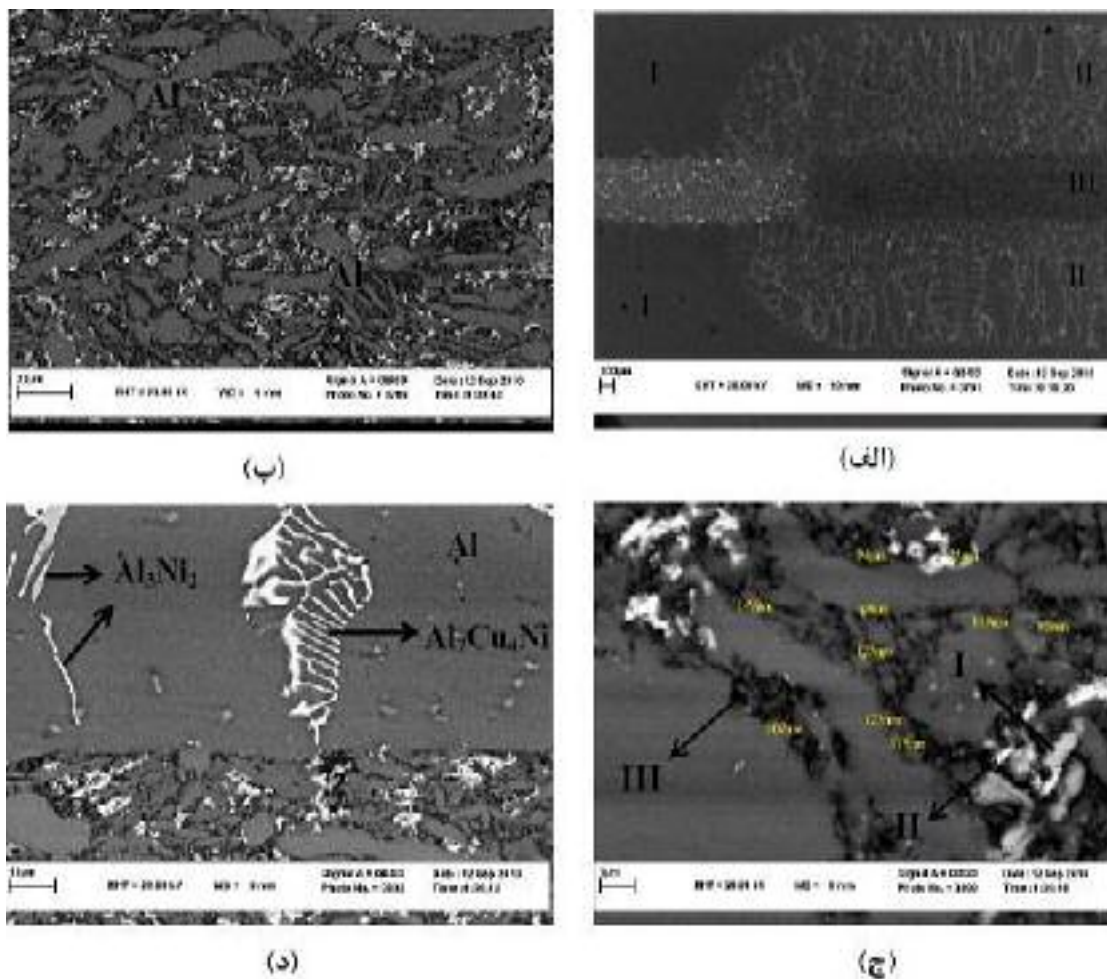
استحکام برشی متوسط نمونه‌هایی که به این روش متصل شده بودند برابر  $27 \text{ MPa}$  محاسبه شد که در مقایسه با استحکام نمونه‌هایی که تحت شرایط مشابه و به روش پیوند نفوذی متصل شده بودند ( $\text{MPa}$ ) ۸) بسیار بیشتر است. علت این امر با توجه به تصاویر میکروسکوپ نوری (شکل ۲ ب) که از سطح مقطع نمونه‌های جوشکاری شده تهیه شده‌اند، قابل توضیح است.

ناحیه‌ی جوش (که ساختار ریختگی و دندریتی دارد) در اثر گرمای آزاد شده از واکنش‌های سنتز احتراقی که در قرص پودری واکنش‌کننده اتفاق افتاده‌اند، به وجود آمده است. ضخامت این ناحیه حدود  $800 \mu\text{m}$  میکرومتر می‌باشد که در مقایسه با فواصل نفوذی حالت جامد (روش پیوند نفوذی) بسیار بیشتر است؛ از طرفی این نوع جوش یک کامپوزیت زمینه فلزی می‌باشد که توسط ترکیبات بین فلزی مختلف و همچنین اکسید آلومینیوم تقویت شده است این دو عامل منجر به استحکام بالاتر اتصال بدست آمده نسبت به روش پیوند نفوذی می‌شود.

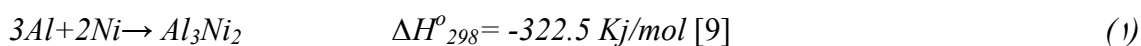
تصاویر میکروسکوپ SEM از سطح مقطع نمونه‌ی جوشکاری شده (شکل ۳ الف) نیز به وضوح سه ناحیه‌ی فلز پایه (I)، ناحیه‌ی جوش (II) و ناحیه‌ی قرص پودری واکنش‌کرده (III) را آشکار می‌سازد. شکل ۳ (ب) و (ج) ناحیه‌ی (III) را در بزرگنمایی‌های بالاتر نشان می‌دهد. ملاحظه می‌شود که این ناحیه یک کامپوزیت زمینه آلومینیومی (نواحی خاکستری رنگ) می‌باشد که توسط فازهای تیره و سفید رنگ مختلفی تقویت شده است. در ادامه به کمک آنالیزهای EDS، XRD و همچنین با توجه به مورفولوژی آن‌ها به شناسایی این فازها پرداخته می‌شود.

مطابق الگوی پراش اشعه ایکس، شکل ۴، فازهای Al،  $\text{Al}_3\text{Ni}_2$ ،  $\text{Al}_7\text{Cu}_4\text{Ni}$  و  $\text{Al}_2\text{O}_3$  در ریز ساختار اتصال وجود دارند. آنالیز EDS اثبات می‌نماید که نواحی خاکستری رنگ فاز Al می‌باشد (شکل ۵ الف). فازهایی که در تصویر ۳ (ج) با I، II و III برچسب خورده‌اند مطابق آنالیز EDS مربوط به آن‌ها در شکل ۵ (ب) تا (د)، به ترتیب، متشکل از عناصر آلومینیوم - نیکل، آلومینیوم - نیکل - مس و آلومینیوم - اکسیژن می‌باشند؛ لذا این فازها به ترتیب ترکیبات بین فلزی  $\text{Al}_3\text{Ni}_2$  و  $\text{Al}_7\text{Cu}_4\text{Ni}$  و اکسید آلومینیوم می‌باشند که به صورت درجا و در اثر اتفاق افتادن واکنش‌های سنتز احتراقی به وجود آمده‌اند. گواه دیگر بر صحت شناسایی فازها مورفولوژی آن‌هاست به عنوان مثال مورفولوژی گزارش شده برای ترکیب بین فلزی  $\text{Al}_7\text{Cu}_4\text{Ni}$  به صورت ذرات کشیده و یا اسکلت مانند می‌باشد [8] که اولی در ناحیه‌ی قرص پودری واکنش‌کرده (شکل ۳ ج فاز II) و دومی در ناحیه‌ی جوش (شکل ۳ د) قابل مشاهده می‌باشند.

با در نظر گرفتن مخلوط پودری اولیه و ترکیبات به وجود آمده بر اساس الگوی پراش اشعه ایکس می‌توان نتیجه گرفت که واکنش‌های سنتز احتراقی ذیل حین فرایند جوشکاری به وقوع پیوسته‌اند:



شکل ۳. تصاویر میکروسکوپ الکترونی از سطح مقطع اتصال بدست آمده



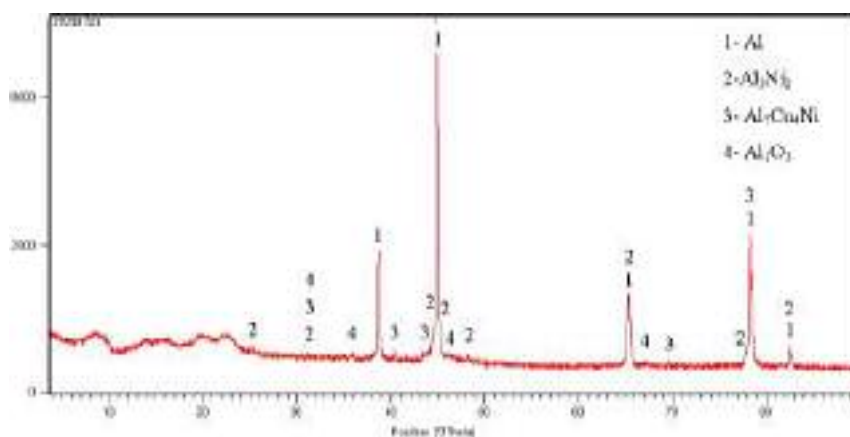
گرمای آزاد شده از این واکنش‌ها سبب ذوب شدن صفحات فلز پایه به صورت سطحی و نهایتاً اتصال آن‌ها شده است. در ادامه حین سرد شدن مذاب ایجاد شده، ترکیب بین فلزی  $Al_7Cu_4Ni$  مطابق واکنش زیر تشکیل می‌شود؛ این تئوری توسط منابع نیز [10] تأیید می‌شود.



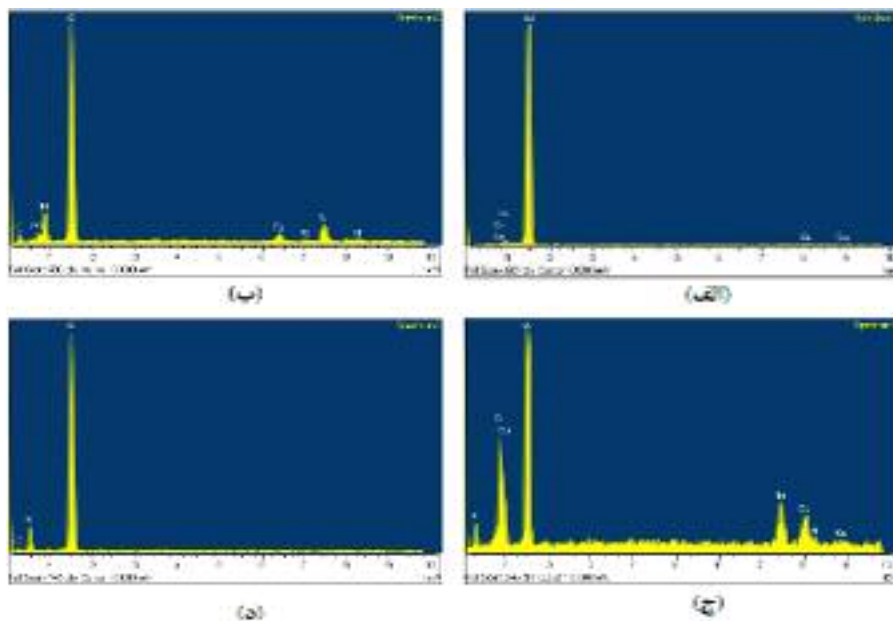
نکته‌ی قابل توجه دیگر در تصویر ۳ (ج) حضور نانو ذرات اکسید آلومینیوم می‌باشد که به صورت درجا و مطابق واکنش (۲) تولید شده‌اند. مطابق منابع [6] فازهای تقویت کننده‌ای که به صورت درجا

توليد شوند از آن جايی که فصل مشترک تميز تری با زمينه دارند (نسبت به فازهای مشابهی که از خارج وارد سيستم شوند) استحکام بالاتری نیز دارند.

شکل ۳ (د) فصل مشترک ناحیهی جوش و قرص پودری واکنش کرده را نشان می دهد. در نتیجهی نفوذ عناصر آلایزی از قرص پودری به سمت فلز پایه، غلظت این عناصر به حدی رسیده است که ترکیبات بین فلزی در ناحیهی جوش نیز تشکیل شده اند (غلظت این عناصر در آلایز پایه بسیار پایین است جدول ۱ را ببینید). به علاوه، هیچ گونه ترک و یا عیبی در فصل مشترک ملاحظه نمی شود؛ این امر پتانسیل روش سنتز احتراقی در جوشکاری آلایزهای آلومینیوم را آشکار می سازد.

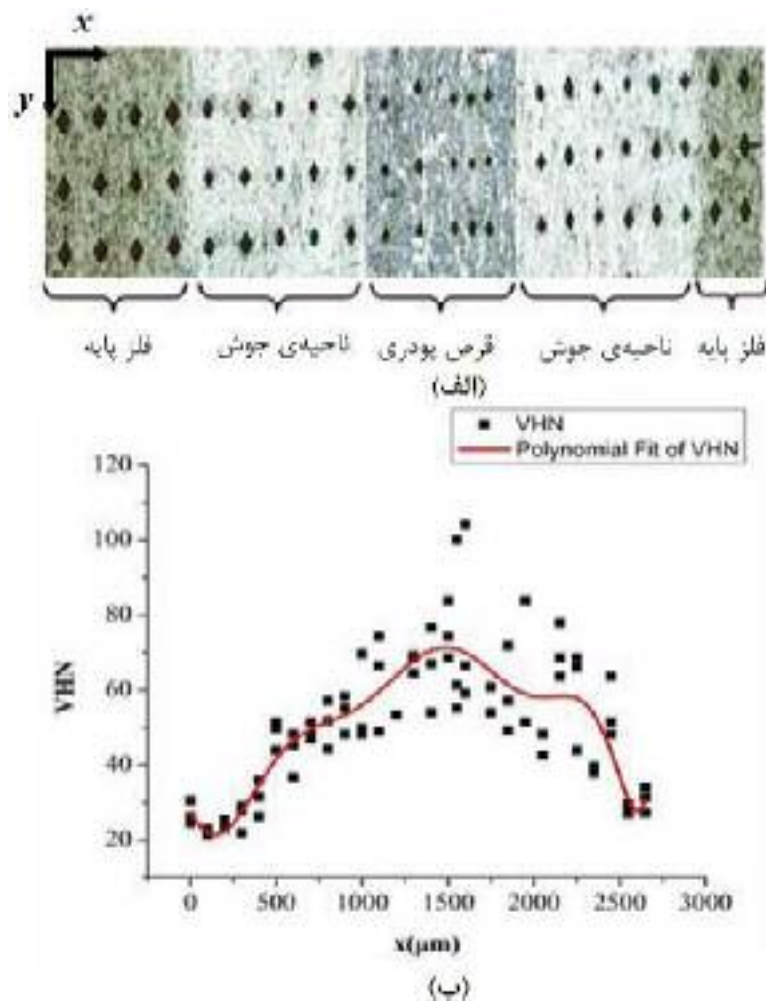


شکل ۴. الگوی پراش اشعه ایکس بدست آمده از سطح مقطع جوش



شکل ۵. نتایج آنالیز EDS از نواحی خاکستری رنگ؛ (ب)، (ج) و (د) به ترتیب از فازهای مشخص شده با I، II و III نشان داده شده در شکل ۲.

شکل ۶ (الف) سطح مقطعی از اتصال را نشان می‌دهد که مورد آزمایش میکروسختی سنجی ویکرز قرار گرفته است. به منظور جلوگیری از برهم کنش اثرات کرنشی ناشی از میکروسختی سنجی و اجتناب از خطا، فواصل میکروسختی سنجی در جهت محورهای X و Y به ترتیب برابر ۵۰ و ۱۰۰ میکرومتر انتخاب شد. نتایج در قسمت (ب) ترسیم شده‌اند. علی‌رغم پراکندگی زیاد موجود در نتایج میکروسختی (که به دلیل حضور فازهای مختلف با سختی‌های بسیار متفاوت، مانند آلومینیوم و ترکیبات بین فلزی و اکسیدی می‌باشد) می‌توان نتیجه گرفت که متوسط داده‌های سختی در سه سطح مختلف قرار می‌گیرند. بیشترین مقادیر سختی در ناحیه‌ی مرکزی اتصال ملاحظه می‌شود که همان ناحیه‌ی قرص پودری واکنش کرده است. این امر با توجه به این واقعیت که در این ناحیه هر دو ترکیبات بین فلزی ( $Al_3Ni_2$ ,  $Al_7Cu_4Ni$ ) و اکسیدی ( $Al_2O_3$ ) تشکیل شده‌اند منطقی می‌باشد. نواحی جوش که متشکل از آلومینیوم و ترکیبات بین فلزی (فاقد فاز اکسید آلومینیوم) است در پله‌ی دوم سختی قرار دارد. نهایتاً کمترین سختی مربوط به فلزات پایه می‌باشد که در آن هیچ کدام از ترکیبات بین فلزی و یا اکسیدی حضور ندارند.



شکل ۶. (الف) سطح مقطع سختی سنجی شده؛ (ب) نتایج میکروسختی سنجی.



#### ۴. نتیجه گیری

ترکیب فرایندهای فعال‌سازی مکانیکی و حرارتی مخلوط پودری  $14Al+Ni+3CuO$  به طور موفقیت‌آمیزی در جوشکاری آلیاژ آلومینیوم ۱۱۰۰ بکار گرفته شد. در این فرایند ترکیبات بین فلزی  $Al_7Cu_4Ni$  و  $Al_3Ni_2$  و همچنین نانو ذرات اکسید آلومینیوم به صورت درجا در محل جوش تشکیل شدند به گونه‌ای که گرمای آزاد شده از واکنش‌های تشکیل آن‌ها (سنتز احتراقی) منجر به ذوب سطحی و جوشکاری صفحات شد. استحکام برشی نمونه‌هایی که به این روش جوشکاری شده‌اند حدود ۲۷ مگاپاسکال می‌باشد که در مقایسه با نمونه‌هایی که تحت شرایط مشابه و به روش پیوند نفوذی متصل شده بودند (۸ MPa) بسیار بیشتر است. این امر پتانسیل روش مکانیکی-شیمیایی را در جوشکاری مواد غیر دیرگداز آشکار می‌سازد.

#### ۵. مراجع

- 1- K. J. Blobaum, M. E. Reiss, J. M. Plitzko Lawrence, T. P. Weihs, "Deposition and characterization of a self-propagating CuOx /Al thermite reaction in a multilayer foil geometry". *Journal of Applied Physics*, 94, 2003, 2915-2922.
- 2- Swati M. Umbrajkar, M. Schoenitz, E. L. Dreizin, "Exothermic reactions in Al-CuO nanocomposites", *Thermochimica Acta*, 451, 2006, 34-43.
- 3- J. Li, F. Li, K. Hu, "Preparation of Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanocomposite powder by high-energy ball milling and subsequent heat treatment", *Journal of Materials Processing Technology*, 147, 2004, 236-240.
- 4- V. Udhayabanu, K.R. Ravi, V. Vinod, B.S. Murty, "Synthesis of in-situ NiAl-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanocomposite by reactive milling and subsequent heat treatment", *Intermetallics*, 18, 2010, 353-358.
- 5- D. Stamatis, Z. Jiang, V. K. Hoffmann, M. Schoenitz, E. L. Dreizin, "Fully Dense, Aluminum-Rich Al-CuO Nanocomposite Powders for Energetic Formulations", *Combustion Science and Technology*, 181, 2009, 97-116.
- 6- B. S. B. Reddy, K. Das, S. Das, "A review on the synthesis of in situ aluminum based composites by thermal, mechanical and mechanical-thermal activation of chemical reactions", *Journal of Materials Science*, 42, 2007, 9366-9378.
- 7- E. B. Motlagh, H. Nasiri, J. Vahdati Khaki, M. Haddad Sabzevar, "Formation of metal matrix composite reinforced with Nano sized Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>+Ni-Al intermetallics during coating of Al substrate via combustion synthesis", *Surface & Coatings Technology*, 205, 2011, 5515-5520.
- 8- ASM International, *Metallography and Microstructures*, vol. 9, 2004
- 9- Dongmin Shi, Bin Wen Roderick Melnik, Shan Yao, Tingju Li, First-principles studies of Al-Ni intermetallic compounds, *Journal of Solid State Chemistry*, 182, 2009, 2664-2669.
- 10- Vadim S. Zolotarevsky, Nikolai A. Belov, Michael V. Glazoff, *Casting Aluminum Alloys*, Linacre House, Jordan Hill, Oxford, 2007.

## Simultaneous welding and reinforcing of aluminum alloys with oxide Nano particles and intermetallic compounds using combustion synthesis

E. Bahrami Motlagh\*, J. Vahdati Khaki, M. Haddad Sabzevar

\* Corresponding Author Address: Department of Materials Science and Engineering, Engineering Faculty, Ferdowsi University of Mashhad, Mashhad, Iran.  
E-mail address: [ebahramimotlagh@gmail.com](mailto:ebahramimotlagh@gmail.com), Tel./Fax (+98511) 8763305,

### Abstract

In this work, the released heat from the combustion synthesis reactions in Al -CuO -Ni system was used for welding of Aluminum 1100 alloy. The drawback for this process has been the high ignition temperature of the reaction which is higher than the melting point of Aluminum. Using arrested reactive milling (ARM) and adding a small amount of elemental Nickel to the thermite mixture its ignition temperature was decreased, so that this thermite mixture became applicable for welding of non- refractory materials. The reactive media and the weld zone were investigated using scanning electron microscopy (SEM). X-ray diffraction experiment was carried out in order to evaluate the reaction products. Vickers micro-hardness profile across the joint and the shear strength of the joints were determined. The weld zone thickness in each of the parent alloys was measured to be 800  $\mu\text{m}$ . In situ production of different intermetallic compounds ( $\text{Al}_3\text{Ni}_2$  and  $\text{Al}_7\text{Cu}_4\text{Ni}$ ) as well as  $\text{Al}_2\text{O}_3$  nanoparticles in the interface, results in a high hardness and strength compared to the parent alloy hardness and diffusion bonded plates, respectively. The mean shear strength of the obtained joints was about 27 MPa.

**Keywords:** welding, combustion synthesis, intermetallic compounds, nano particles.