



بررسی اتصال بین کاربید سیلیسیم و اکسید آلومینیوم با استفاده از لایه فلزی مس

رضا احدی دولت‌سرا^۱، عزیز شهرکی^۲، آدرینه ملک خاچاطوریان^۳، محمد گل محمد^۴، علی نعمتی^۵

^۱ کارشناسی ارشد، دانشکده مهندسی و علم مواد، دانشگاه صنعتی شریف، تهران، ایران

^۲ دکترا، دانشکده مهندسی و علم مواد، دانشگاه صنعتی شریف، تهران، ایران

^۳ استادیار، دانشکده مهندسی و علم مواد، دانشگاه صنعتی شریف، تهران، ایران

^۴ استادیار، گروه انرژی‌های تجدیدپذیر، پژوهشگاه نیرو، تهران، ایران

^۵ استاد، دانشکده مهندسی و علم مواد، دانشگاه صنعتی شریف، تهران، ایران



نویسنده اول:

مهندس رضا احدی دولت‌سرا

نویسنده مسئول:

دکتر علی نعمتی

دانشگاه صنعتی شریف

* نوع مقاله: پژوهشی

صفحه‌های: ۸۴ تا ۹۶

شاپا چاپی: ۱۷۳۵-۳۳۵۱

شاپا الکترونیکی: ۳۰۹۷-۳۷۸۳

زبان نشریه: فارسی

دسترس پذیر در نشانی:

www.JICERS.ir

تاریخ دریافت:

۱۴۰۳/۰۳/۰۱

تاریخ پذیرش:

۱۴۰۳/۰۴/۲۰

DOR: 20.1001.1.17363351.1403.19.0.2.9

چکیده: مطالعه و ساخت قطعات غیریک پارچه با جنس‌های مختلف و یا ساخت قطعات کامپوزیتی از طریق روش‌هایی مانند اتصال و ساخت افزایشی، به صورت گسترده در حال بررسی می‌باشد. در بسیاری از تحقیقات، پیوند سرامیک‌های اکسیدی مانند اکسید آلومینیوم به خود و همچنین سرامیک‌های کاربردی مانند کاربید سیلیسیم به خود بررسی شده است. در این تحقیق، مکانیسم‌های اتصال دو نوع سرامیک از جنس کاربید سیلیسیم و اکسید آلومینیوم با استفاده از یک لایه فلزی از جنس مس و همچنین ایجاد لایه‌های میانی بین لایه فلز و سرامیک از جنس مواد اولیه موجود در فاز سرامیکی بررسی شده است. ساختار اسپینل برای فصل مشترک مس و اکسید آلومینیوم و کامپوزیت Cu-SiC، تولید شده با روش آلیاژسازی مکانیکی، برای فصل مشترک مس و کاربید سیلیسیم، مورد بررسی قرار گرفته است که ضخامت هر دو لایه کم‌تر از ۱ میکرومتر می‌باشد. روش مورد استفاده جهت اتصال قطعات در این تحقیق، فرآیند نفوذ حالت جامد می‌باشد. ساختار، ریزساختار و خواص مکانیکی نمونه‌های ساخته شده، با استفاده از روش‌های آنالیز پراش اشعه ایکس (XRD)، میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM)، طیف سنجی تفکیک انرژی پرتو ایکس (EDS) و آزمون خمش بررسی شده است. بر اساس نتایج به دست آمده، استحکام خمشی در فصل مشترک برابر با ۱۹۰ نیوتن بر میلی‌متر مربع است که در مقایسه با تحقیقات قبلی، به مقدار قابل توجهی افزایش یافته است. در نهایت می‌توان نتیجه گرفت که با اعمال لایه میانی مناسب، اتصال به خوبی انجام می‌شود.

کلمات کلیدی: سرامیک‌های اکسیدی، اتصال سرامیک/فلز، نفوذ حالت جامد، کاربید سیلیسیم، اکسید آلومینیوم.

۱- مقدمه

امروزه ساخت قطعه یک پارچه با مواد مختلف و یا اتصال اجزای متفاوت به یکدیگر در کاربردهای متفاوت از جمله مدارهای الکترونیکی، کامپوزیت‌ها، پوشش‌های عایق حرارتی، پیل‌های سوختی، کاتالیزورها، موتورهای احتراقی و ابزارهای تراش از اهمیت ویژه‌ای برخوردار است [۱]. اتصال مواد را می‌توان به صورت نزدیک کردن دو ماده به یکدیگر به طوری که سطوح این دو ماده یک رابط تشکیل دهند، تعریف کرد [۲]. وقتی دو قسمت به یکدیگر متصل می‌شوند، فصل مشترک به دست آمده تقویت شده و به طور همزمان از خواص هر دو ماده بهره‌مند می‌شود [۳]. تمامی روش‌های اتصال سرامیک/سرامیک و سرامیک/فلز در یکی از



سه دسته اتصال مکانیکی، اتصال مستقیم، و اتصال غیرمستقیم، قرار می‌گیرند [۳، ۴]. تعریفی از پیوند نفوذی، ایجاد اتصال بین دو سطح قابل تغییر با اعمال گرما و فشار در یک بازه زمانی به منظور ایجاد یک پیوند حالت جامد است [۵]. به طور کلی، چسبندگی بین بخش‌های غیرمشابه به دلیل فعل و انفعالات اتمی و مولکولی در محل اتصال ایجاد می‌شود. این تعاملات به دلیل تفاوت در هماهنگی بین اتم‌های سطحی و اتم‌های داخل ماده ایجاد می‌گردند. اتم‌های سطح، انرژی اضافی دارند که برای فلزات بسیار زیاد است [۶]. در زمینه اتصال مواد به یکدیگر، روش پرس گرم تک‌محوری به عنوان یکی از رایج‌ترین و فراگیرترین روش‌های اعمال فشار در دمای اتصال شناخته می‌شود. دمای محل اتصال با استفاده از روش‌های متداولی نظیر گرمایش تابشی یا گرمایش القایی به دست می‌آید. اصول این فرآیند از دهه ۱۹۸۰ به شدت شناخته شده و تا حد زیادی از آن زمان تغییری نکرده‌اند [۷]. همچنین، نوآوری‌هایی در زمینه تولید گرما با استفاده از این روش‌ها به وجود آمده است [۸-۱۲]. یکی از نوآوری‌های اخیر در این روش توسط اوزتورک و همکاران [۱۳] ارائه شده است که نشان می‌دهد زیرکونیای پایدار شده جزئی (Y-PSZ) را در ناحیه سطوح فصل مشترک با استفاده از یک لایه رسوب‌شده الکتروفوریتیک متصل کرده‌اند. آن‌ها این فرآیند را با اعمال فشار ۰/۲ مگاپاسکال در دمای ۱۴۵۰°C انجام دادند، که منجر به اتصال قطعات به یکدیگر شد. با این حال، این پیوند نفوذی خالص در نظر گرفته می‌شود، زیرا به‌طور کامل به نفوذ لایه جداگانه بین سرامیک‌های اصلی که از دو طرف توسط این قسمت‌ها احاطه شده‌اند، وابسته است. تحقیق دیگری توسط اسپوزیتو و همکاران [۱۴] در مورد پیوند آلومینا-آلومینا با استفاده از یک لایه مس انجام شده است. در این تحقیق، چرخه پیوند در خلاء با فشار ۱-۱۰ مگاپاسکال با استفاده از کوره پرس گرم اجرا شده است. هنگامی که کوره به دمای اتصال در بازه ۹۰ تا ۹۴ درصد نقطه ذوب مس رسید، فشار ۵۰ مگاپاسکال اعمال شد. مشاهده شد که افزایش دما بر میزان نفوذ فاز فلزی به فاز سرامیکی تأثیر می‌گذارد و با افزایش دما، هم میزان عمق نفوذ و هم مقاومت خمشی افزایش می‌یابد. همچنین، با افزایش دمای اتصال به میزان ۲۰°C، مقادیر مقاومت خمشی و مقاومت در برابر شکست تقریباً دو برابر می‌شوند. به نظر می‌رسد که در این سیستم، تغییر مقاومت خمشی با تغییر مقاومت در برابر شکست رابطه مستقیم دارد که می‌توان آن را با نظریه گریفیت [۱۵] مرتبط دانست. در تحقیقی دیگر، که در توسط گاو و همکاران [۱۶] انجام شده است، تأثیر عملیات اصلاح سطح در پیوند بین اکسید آلومینیوم و فلز مس بررسی شده است. در تحقیقی که توسط کارزینسکا و همکاران [۱۷] انجام شد، اتصال مس و آلومینا تحت شرایط انجماد یوتکتیک مس (II) اکسید-مس مورد مطالعه قرار گرفت. در این تحقیق، مشاهده شد که بین ترکیبات سرامیکی حاوی مس و آلومینا یک لایه سطحی ناهمگن نازک وجود دارد که از دو بستر تشکیل شده است: لایه اول اکسید نانوبلور پیچیده مس یا $(CuAlO_2)$ است. این لایه به تدریج به یک بستر اسپینل مس کریستالی تبدیل می‌شود. در تحقیق دیگری توسط کیم و همکاران [۱۸]، خواص پیوند مس-آلومینا مورد بررسی قرار گرفت و نشان داده شد که پیوندهایی که در اتمسفر اکسیژن موجود در محیط انجام می‌شود، منجر به رشد اکسیدهای سطحی می‌شود. این اکسیدها از طریق نفوذ به فلز مس متصل شده و با واکنش با آلومینا به تشکیل ساختارهای اسپینل مس $(CuAl_2O_4)$ و ساختار دلافوسیت $(CuAl_2O_4)$ می‌انجامد. زیرا، مس ترجیح می‌دهد از طریق واکنش با صفحه (۰۰۰۱) آلومینا، ساختار اسپینل و از طریق واکنش با صفحه (۱۱۲۰)، ساختار دلافوسیت [۱۹] تشکیل شود. در نهایت مشخص شد که با افزایش مقدار مس، فاز دلافوسیت افزایش می‌یابد و به تبع آن، استحکام نیز افزایش می‌یابد. علاوه بر این، مقایسه شیمی سطوح تشکیل شده در فاز مشترک آلفا آلومینا-مس و گاما آلومینا-مس توسط باکاس و همکاران بررسی شده است [۲۰]. همچنین ترمودینامیک ساختارهای اسپینل و دلافوسیت نیز توسط ژاکوب و همکاران [۲۱] بررسی شده است. تحقیقات زیادی در زمینه اتصال مس به اکسید آلومینیوم انجام شده است که روش‌ها و مکانیسم اتصال در این تحقیقات با یکدیگر متفاوت است [۲۲-۲۶]. با وجود اهمیت بالای اتصال مواد مختلف به یکدیگر در تولید قطعات یکپارچه، بررسی اتصال کاربیدسیلیسیم به مس تاکنون به دلیل چالش‌های فنی و ساختار سد نفوذی در فصل مشترک مورد تحقیقات کافی قرار نگرفته است. از این رو، در بسیاری از مقالات تحقیقاتی ادعا شده است که اتصال مستقیم این دو ماده به یکدیگر ممکن نیست. این ادعاها به ایجاد سد نفوذی در فصل مشترک اشاره دارند که مانع از نفوذ مس به داخل ساختار کاربیدسیلیسیم می‌شود. با این حال، تحقیقات گذشته نشان داده‌اند که برخی فلزات نظیر نیکل [۲۷، ۲۸] و ترکیباتی نظیر ساختارهای شیشه سرامیک و آلیاژهای فلزی، قابلیت اتصال به کاربیدسیلیسیم را دارند و این مسئله به‌عنوان یک چالش مهم در حوزه اتصال مواد مختلف بررسی می‌شود [۲۹].



در نهایت، هدف این پژوهش بررسی اتصال اکسید آلومینیوم به کاربیدسیلیسیم با استفاده از لایه فلزی از جنس مس به عنوان عامل اتصال است. اکثر کوره‌های مورد استفاده برای دماهای بالا، از النمت‌های پایه سیلیسیم مانند کاربید سیلیسیم و مولیبدن‌دی‌سیلیساید ساخته شده‌اند. با توجه به اینکه قطعات سرامیکی قابلیت تعمیر را ندارند، بدین منظور می‌توان از مواد دیگری نظیر فلزات یا سرامیک‌ها برای تعمیرات، استفاده کرد. مهم‌ترین دلیل استفاده از آلومینا، در دسترس بودن و توانایی بالای آن برای ایجاد فصل مشترک با سایر فلزات است. فلز مس نیز به دلایل دارا بودن هدایت حرارتی و الکتریکی بالا، تمایل به ایجاد فصل مشترک با بسیاری از سرامیک‌ها و همچنین پایداری تا دماهای بالا، مناسب‌ترین مورد برای این پژوهش می‌باشد. علاوه بر آن، اتصال فلز مس به کاربید سیلیسیم، مورد توجه محققین قرار نگرفته است. مشکل اصلی برای اتصال این قطعات به یکدیگر، تفاوت ضریب انبساط حرارتی آن‌ها است که به منظور کاهش تاثیر این عامل و همچنین افزایش چسبندگی در فصل مشترک‌های سرامیک-فلز از ترکیبات متفاوتی بهره گرفته شده است. در لایه کاربید سیلیسیم-مس، از پودر کامپوزیتی SiC-Cu ساخته شده به روش آلیاژسازی مکانیکی برای کاهش تاثیر عامل اختلاف ضرایب انبساط حرارتی و در نتیجه، کاهش تمرکز تنش استفاده شده است. همچنین، در لایه اکسید آلومینیوم-مس از ذرات اسپینلی آلومینات مس سنتز شده به روش هم‌رسوبی، استفاده شد.

۲- روش پژوهش

در این پژوهش از مواد زیر به عنوان مواد اولیه استفاده شده است: پودر اکسید آلومینیوم با اندازه ذرات متوسط ۵۰ میکرومتر (White Corundum, Iran)، پودر کاربیدسیلیسیم با اندازه ذرات متوسط ۵۰ میکرومتر (Fine-Nano, Iran)، چسب پلی‌وینیل‌الکل (PVA) با وزن مولکولی ۷۲۰۰۰ (CAS Number: #9002-89-5, Merck, Germany)، پودر مس (CAS Number: #7440-50-8, Merck, Germany) با اندازه ذرات متوسط ۲۰ میکرومتر، نیترات مس سه‌آبه (CAS Number: #10031-43-3, Merck, Germany)، نیترات آلومینیوم نه‌آبه (CAS Number: #7784-27-2, Merck, Germany) و دی‌اتیل‌آمین (CAS Number: #109-89-7, Merck, Germany).

جهت ساخت قطعات اکسید آلومینیوم و کاربیدسیلیسیم، ابتدا، پودرهای اکسید آلومینیوم و کاربیدسیلیسیم به صورت جداگانه با چسب PVA محلول در آب با غلظت حجمی ۲۰ درصد، به مقدار ۵ تا ۸ درصد وزنی، مخلوط شدند. سپس، این مخلوط با فشارهای مختلف پرش شد. با توجه به نتایج به دست آمده، برای اکسید آلومینیوم ۱۷۰ مگاپاسکال و برای کاربید سیلیسیم، ۱۹۰ مگاپاسکال مناسب‌ترین مقادیر فشار اعمالی بود. این نمونه‌ها در ابعادی با قطر ۱۵ و ضخامت ۱۰ میلی‌متر پرس شدند. در نهایت، نمونه‌های فشرده شده در داخل کوره با اتمسفر محیط برای اکسید آلومینیوم و اتمسفر خلاء برای کاربیدسیلیسیم با نرخ ۲/۵ درجه بر دقیقه به مدت ۱۰ ساعت و ماندگاری در دمای ۱۶۰۰°C به مدت ۲ ساعت در داخل کوره قرار گرفتند تا فرآیند تف‌جوشی به‌طور کامل انجام شود.

برای تولید لایه میانی مس-کاربیدسیلیسیم از ترکیب کامپوزیتی تهیه شده به روش آلیاژسازی مکانیکی در اتمسفر محیط استفاده شد. به این منظور، پودرهای مس و کاربید سیلیسیم به مدت ۳۰ دقیقه در دستگاه آسیاب دیسکی با نسبت ۳:۱ (پودر سرامیک: فلز) مخلوط شدند و به صورت سطحی به یکدیگر متصل گردیدند. برای لایه میانی فلز و اکسید آلومینیوم، ذرات اسپینل آلومینات مس به روش هم‌رسوبی سنتز شد. جهت سنتز این ذرات، ابتدا نیترات مس سه‌آبه و نیترات آلومینیوم نه‌آبه در آب یونیزه شده حل شده و به مدت ۱۵ دقیقه توسط همزن مغناطیسی همزده شد تا محلول شفاف به دست آید. سپس، دی‌اتیل‌آمین به آرامی به محلول اضافه شد تا رسوب تشکیل شود. رسوب حاصل با استفاده از آب دیونیزه، چندین بار شسته شد و سپس در دمای ۸۰°C به مدت ۲۴ ساعت خشک شد. در نهایت، رسوب خشک شده به مدت ۲ ساعت در دمای ۸۰۰°C، کلسینه شد.

جهت اعمال لایه‌های میانی از دستگاه پوشش‌دهی غوطه‌وری استفاده شد. ابتدا برای هر یک از پودرهای سنتز شده با استفاده از چسب PVA با غلظت ۱۰ درصد حجمی دوغابی تهیه شد و سپس نمونه با سرعت بهینه ۱۵ میلی‌متر بر دقیقه به سمت دوغاب حرکت کرد و به محض تماس نمونه با سطح دوغاب فرآیند متوقف شد و مجدداً همین فرآیند برای نمونه‌های دیگر انجام شد. با توجه به روش مورد استفاده، باقی سطوح نیز از دوغاب تهیه شده پوشش داده شد اما فقط سطح اتصال به دلیل در تماس بودن با

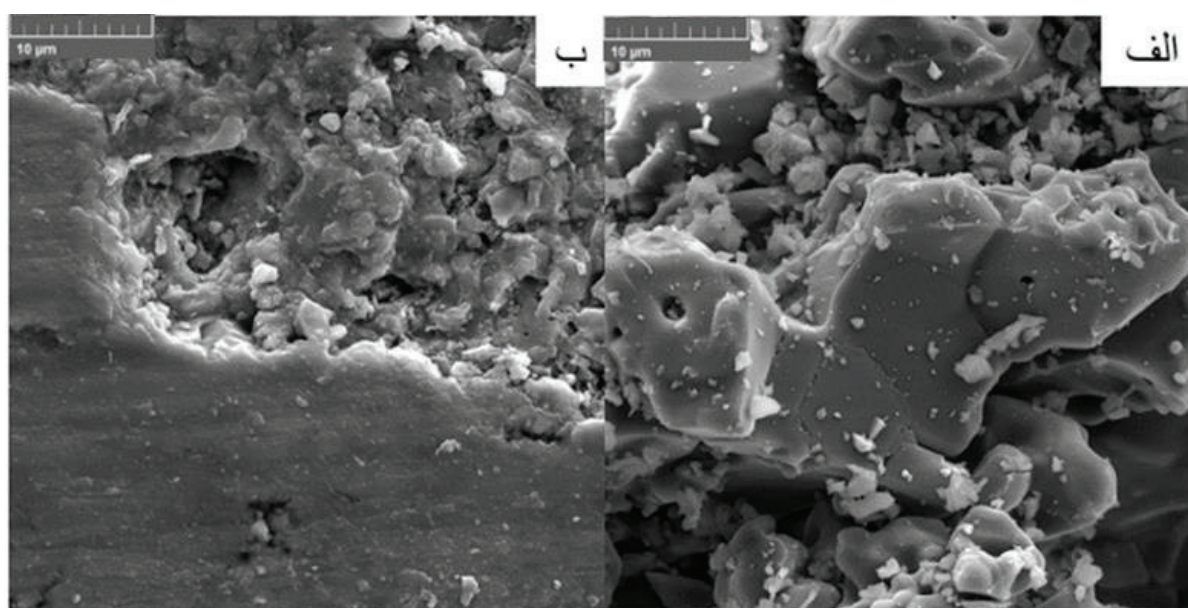
دیگر مواد مورد بررسی قرار گرفت. در نهایت جهت اتصال قطعات سرامیکی آلومینا و کاربید سیلیسیم، لایه مس فلزی در میان قطعه آلومینایی و SiC پوشش داده شده تحت فشار ۱۰ مگاپاسکال قرار گرفتند و سپس در دمای ۹۷۰°C به مدت ۲ ساعت تحت عملیات حرارتی در اتمسفر خلاء به مقدار ۲-۱۰ پاسکال قرار گرفتند تا از اکسید شدن لایه مس در محل اتصال جلوگیری کند و مانع تشکیل اکسید مس شود. سپس چرخه حرارتی مشابه مجدداً در اتمسفر محیط، به دلیل بررسی تاثیر این اتمسفر با توجه به کاربرد گفته شده بر روی نمونه‌ها انجام شد.

نمونه‌های متصل شده از عرض برش و با استفاده از سنباده صیقل داده شد تا ساختار و ریزساختار آن‌ها، با استفاده از روش‌های آنالیز پراش اشعه ایکس (XRD)، میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) و طیف‌سنجی تفکیک انرژی پرتو ایکس (EDS) بررسی شوند. در نهایت، استحکام خمشی نمونه‌های تهیه شده، بر اساس استاندارد خمش سه‌نقطه‌ای (ASTM-D790) اندازه‌گیری شد.

۳- نتایج و بحث

۳-۱- بررسی ریزساختار آلومینا و کاربید سیلیسیم زینتر شده

شکل ۱، تصویر SEM ریزساختار قطعات آلومینا و کاربید سیلیسیم پرس شده پس از تفجوشی (قبل از اتصال) را نشان می‌دهد. با توجه به شکل، مشخص می‌شود که فرآیند تفجوشی در هر دو، به طور کامل انجام شده‌است. سایز ذرات نیز بعد از فرآیند تفجوشی تغییر کرده است که می‌توان آنرا ناشی از دو چیز دانست: (۱) اعمال فشار در حین فرآیند پرس کاری و (۲) رشد ذرات در حین فرآیند تفجوشی که ناشی از اعمال حرارت می‌باشد. جدول ۱، مقدار تخلخل میانگین در این نمونه‌ها که با روش آرشمیدس محاسبه شده است را نشان می‌دهد. با توجه به نتایج به دست آمده در بخش‌های بعدی، می‌توان نتیجه گرفت که مقدار تخلخل موجود برای نفوذ و ایجاد اتصال مناسب است.



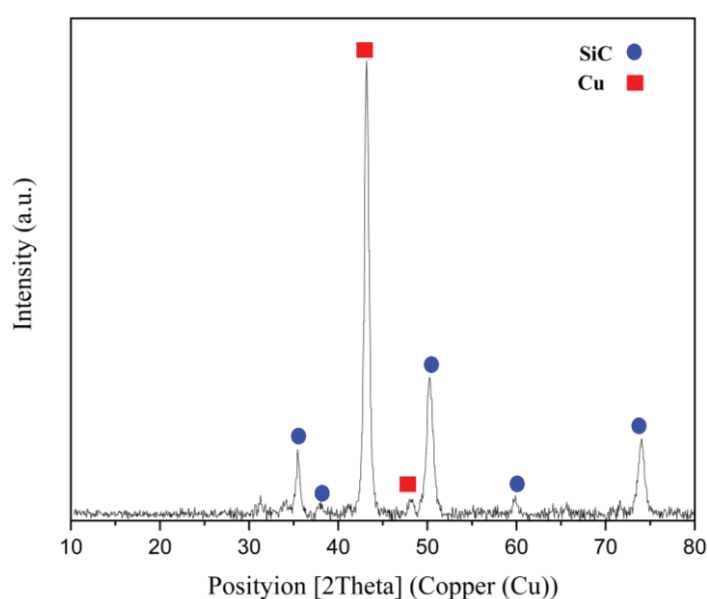
شکل ۱: تصویر SEM از نمونه‌های الف) آلومینا و ب) کاربید سیلیسیم تفجوشی شده.

جدول ۱: نتایج مربوط به چگالی نظری آرشمیدس برای نمونه‌های تفجوشی شده

ترکیب	درصد تخلخل (%)
SiC	۱۶±۰/۱
Al ₂ O ₃	۱۴±۰/۲

۳-۲- بررسی ساختاری و ریزساختاری کامپوزیت SiC-Cu

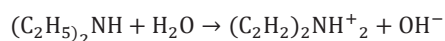
به منظور اتصال بهتر لایه Cu فلزی به SiC، ترکیب کامپوزیتی از Cu و SiC با آلیاژسازی مکانیکی تهیه شد. هدف از تهیه ذرات کامپوزیتی با آلیاژسازی مکانیکی، نزدیک شدن خواص (نقطه ذوب، ضریب انبساط حرارتی و ...) دو لایه فلز و سرامیک توسط لایه فصل مشترک جهت ایجاد اتصال مناسب تر می باشد. شکل ۲ و ۳، به ترتیب گراف XRD و تصویر SEM این آلیاژ با نسبت پودر سرامیک به فلز ۳:۱ را نشان می دهد. با توجه به کارت های شناسایی فاز این ماده (کدهای مرجع: ۰۰-۰۰۴-۰۸۳۶ و ۰۰-۰۴۹-۱۴۲۸) و همانطور که از شکل مشخص است، ذرات هیبریدی سنتز شده تقریباً همگن بوده و ذرات مس و کاربید سیلیسیوم به صورت سطحی به یکدیگر متصل شده است که این امر سبب تغییر بعضی خواص که در بالا گفته شده است، می شود. مشکل اصلی در این بخش، اکسیداسیون پودرها در حین فرآیند آلیاژسازی است که می توان با استفاده از دستگاه آسیاب اتمسفر کنترل، از اکسیداسیون پودرها جلوگیری نمود. علت انتخاب این ترکیب، نزدیک کردن خواص آلیاژ مد نظر به خواص فلزی است تا در نهایت از ایجاد ترک در فصل مشترک جلوگیری کند.



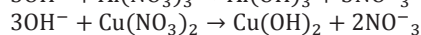
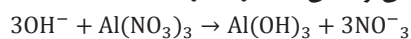
شکل ۲: الگوی پراش اشعه ایکس برای آلیاژ مکانیکی SiC:3Cu.

۳-۳- بررسی ساختاری و ریزساختاری ذرات اسپینل CuAl₂O₄

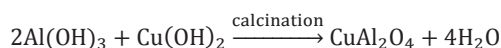
به منظور اتصال بهتر لایه Cu فلزی به آلومینا، ترکیب اسپینل مس با روش هم رسوبی تهیه شد. ابتدا نیترات آلومینیوم و نیترات مس در آب یونیزه شده حل شد. پس از افزودن دی اتیل امین به محلول، طبق واکنش زیر، این ماده شکافته شده و گروه عاملی هیدروکسید تشکیل می شود [۲۲]:



سپس نیترات فلز با این گروه عاملی واکنش داده و هیدروکسید فلز را تشکیل می دهد. این واکنش ها عبارتند از [۳۰]:

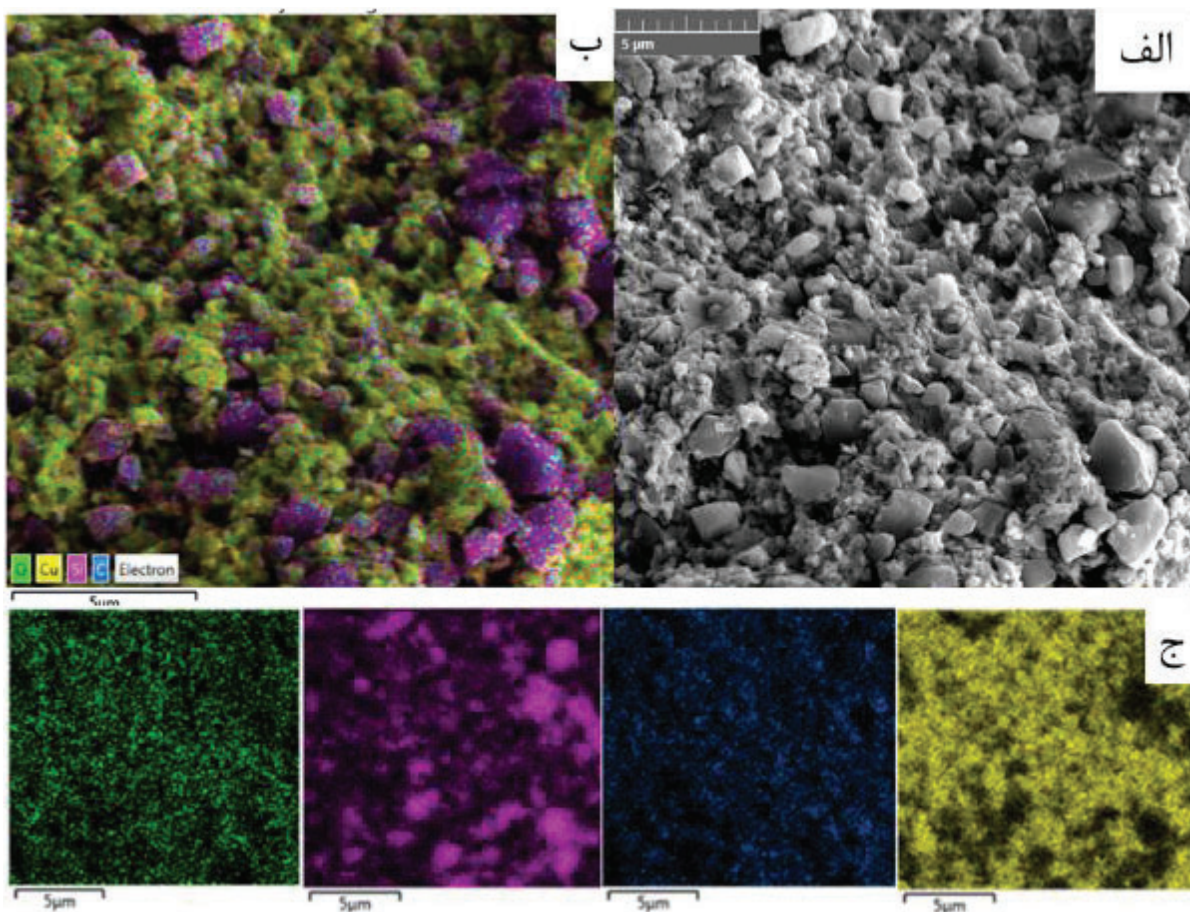


در نهایت طبق واکنش زیر ساختار اسپینل پس از کلسیناسیون تشکیل می گردد [۲۲].

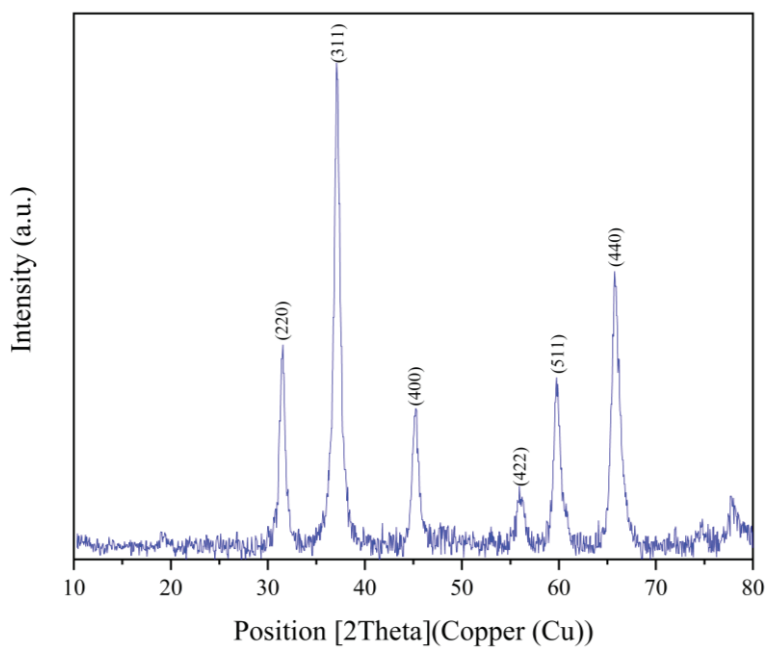


جهت بررسی ساختاری و ریزساختاری ذرات سنتز شده به ترتیب از آنالیز XRD و میکروسکوپ SEM استفاده شد. با توجه به شکل ۴ و همچنین کارت شناسایی فاز مورد نظر (کد مرجع: ۰۰-۰۰۱-۱۱۵۳) مشاهده می شود که تمامی پیک های پراش در طیف XRD مربوط به دسته صفحات اسپینلی CuAl₂O₄ می باشد و هیچ پیک اضافه ناشی از وجود فازهای ناخالص و یا ماده اضافی از نیترات های اولیه مشاهده نشده است. در شکل ۵ نیز ریزساختار ذرات اسپینلی سنتز شده نشان داده شده است. مشاهده می شود که

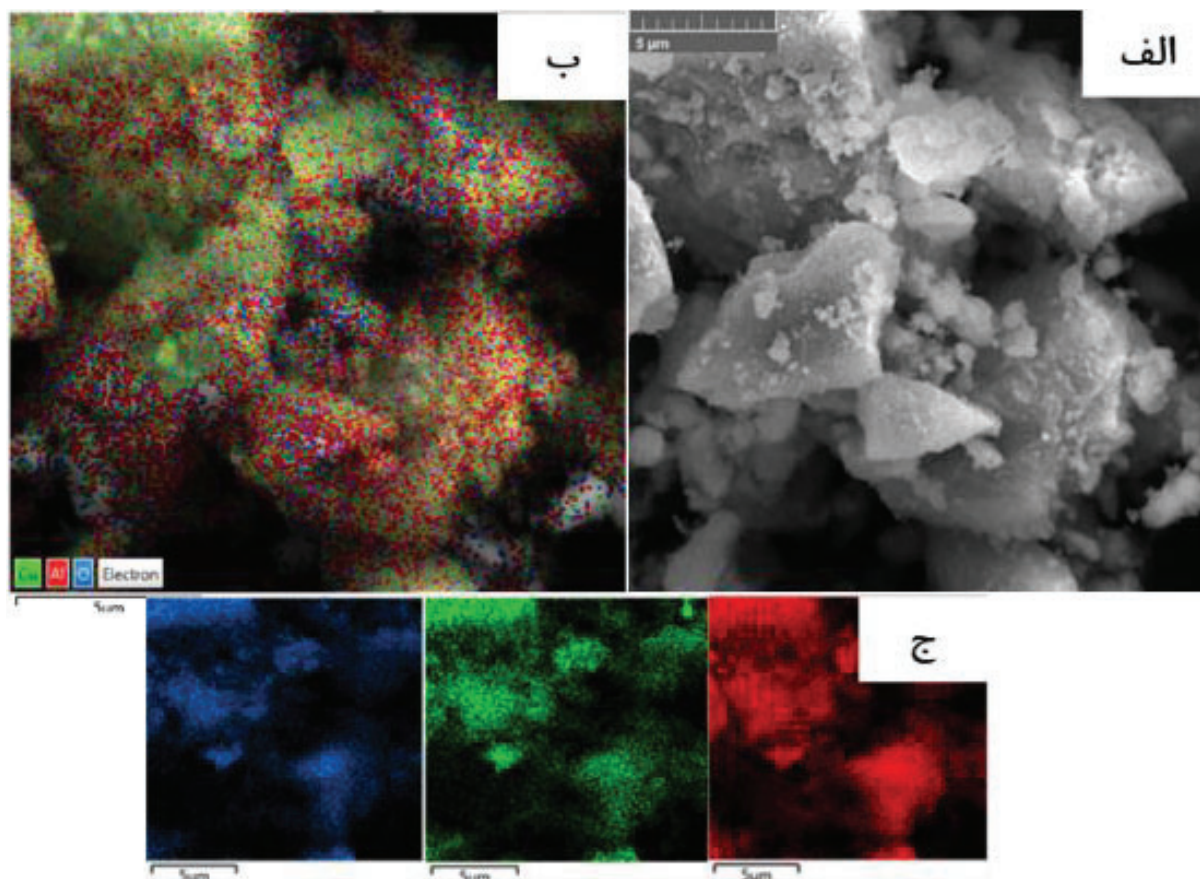
ذرات اسپینل کلسینه شده در ابعاد میکرونی و با مورفولوژی نامنظم می‌باشند.



شکل ۳: الف) تصویر SEM، ب و ج) نقشه عنصری ذرات آلیاژ مکانیکی SiC:3Cu.



شکل ۴: طیف XRD ذرات CuAl₂O₄.



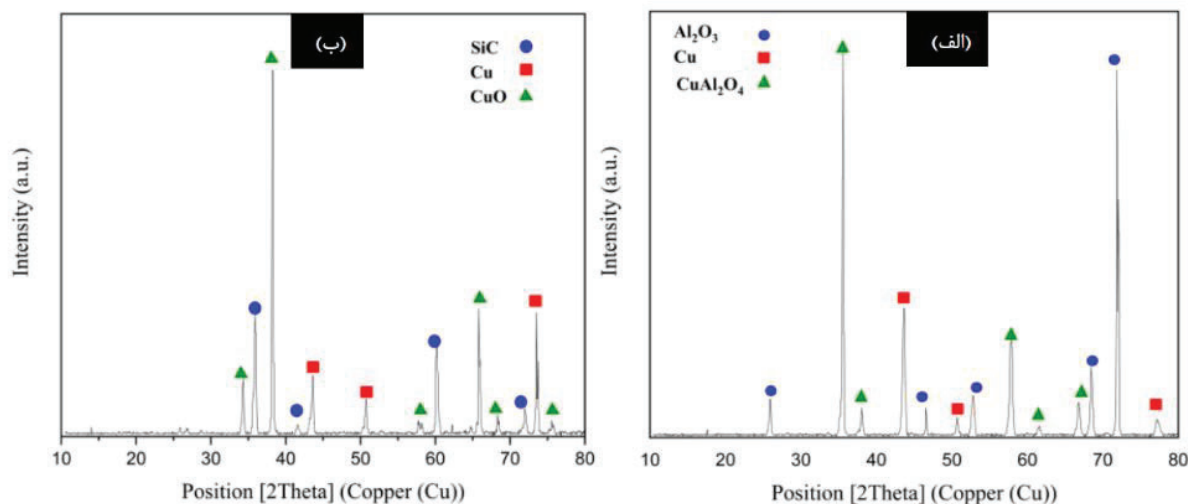
شکل ۵: الف) تصویر SEM، ب و ج) نقشه عنصری ذرات CuAl_2O_4 .

۳-۴- بررسی اتصال $\text{SiC-Cu-Al}_2\text{O}_3$

همان‌طور که قبلاً اشاره شد جهت بهبود اتصال سرامیک/فلز، لایه CuAl_2O_4 برای فصل مشترک مس و اکسید آلومینیوم و لایه کامپوزیت Cu-SiC برای فصل مشترک مس و کاربید سیلیسیم، استفاده شد. شکل ۶ (الف و ب) به ترتیب طیف XRD فصل مشترک SiC-Cu و $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Cu}$ نمونه ساخته شده پس از عملیات حرارتی را نشان می‌دهد. همان‌طور که از شکل ۶ (الف) مشخص است، فازهای Al_2O_3 ، Cu و CuAl_2O_4 در فصل مشترک $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Cu}$ شناسایی شده‌اند. از آنجا که فرآیند اتصال اولیه در اتمسفر خلاء و فرآیند ثانویه در اتمسفر محیط بوده است، پیش‌بینی می‌شود که فاز CuO نیز در این فصل مشترک تشکیل شود. تشکیل اکسید مس باعث کاهش استحکام در فصل مشترک می‌شود و برای جلوگیری از این امر، فرآیند اتصال باید در اتمسفر خنثی انجام شود. در این صورت در محل فصل مشترک، ساختار اسپینل مس و دلافوسیت تشکیل می‌شود که مقدار استحکام را افزایش می‌دهد. سپس چرخه حرارتی مشابه مجدداً در اتمسفر محیط، به دلیل بررسی تاثیر این اتمسفر بر روی نمونه‌ها انجام شد. حضور فاز CuO توسط شناسایی XRD شناسایی نشده است. از دلایل عدم مشاهده پیک‌های مربوط به فاز CuO احتمالاً مقدار کم فاز CuO تولیدشده جهت شناسایی توسط آنالیز XRD و یا واکنش CuO تولیدشده با آلومینا و تشکیل ساختار اسپینل را می‌باشد. گزینه دوم محتمل‌تر به نظر می‌رسد، زیرا مقدار فاز اولیه اسپینل، که به عنوان لایه میانی در اتصال قرار داده شده بود، کمتر از حد تشخیص توسط XRD می‌باشد. علاوه بر این، در این گراف، تمامی پیک‌های مربوط به ساختار اسپینل شناسایی شده‌اند که مجدداً می‌توان نتیجه گرفت که در ناحیه فصل مشترک، فاز CuAl_2O_4 تشکیل شده است.

همان‌طور که در شکل ۶ ب نشان داده شده است، در فصل مشترک SiC-Cu ، تنها فازهای اولیه اعم از Cu و SiC و CuO شناسایی شده‌اند. فاز CuO در مرحله ثانویه عملیات حرارتی در اتمسفر اکسید تشکیل می‌شود. به طور کلی می‌توان گفت که این دو ماده با یکدیگر واکنشی نداشته‌اند، و اتصال آن‌ها فقط از نوع سطحی بوده و فلز مس به داخل شبکه SiC نفوذ کرده است [۳۱]. علت

استفاده از این آلیاژ مکانیکی نیز همین است که از تشکیل ساختار و لایه جدید در فصل مشترک جلوگیری به عمل آید. با ایجاد یک آلیاژ از این دو ساختار، ساختار جدید، دارای ضریب انبساط حرارتی بین دو ساختار اولیه است و اتصال مس به کاربیدسیلیسیم را تسهیل می‌کند.



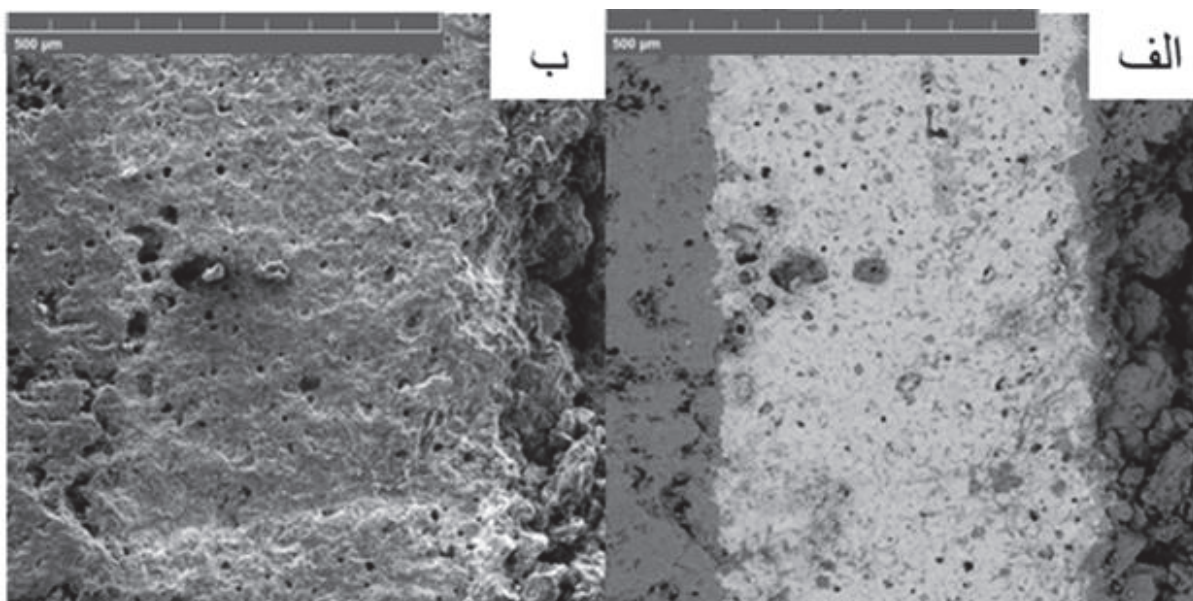
شکل ۶: طیف XRD برای فصل مشترک الف) Al_2O_3 -Cu و ب) SiC-Cu.

تصویر SEM از اتصال Al_2O_3 -Cu-SiC با استفاده از آلیاژ $SiC:3Cu$ در سمت SiC و $CuAl_2O_4$ و Al_2O_3 در سمت الکترون بازگشتی و الکترون ثانویه در شکل ۷ نشان داده شده است. در این نمونه، اتصال به طور کامل توسط هر دو ساختار سرامیکی Al_2O_3 و SiC انجام شده است. همانطور که در بخش‌های قبلی اشاره شد، با توجه به دمای اتصال که در این دما تمامی فازها در حالت جامد هستند، مکانیزم اتصال قطعات به یکدیگر نفوذ حالت جامد است. در محل اتصال به اکسید آلومینیوم، مشاهده می‌شود که علت شکستگی و جدا شدن در این فاز به دلیل فرآیند تفجوشی ناقص در آلومینا به دلیل کمبود دما یا زمان، و یا پایین بودن مقدار فشار اولیه برای فرآیند پرس سرد قطعه آلومینایی اولیه است. همچنین ممکن است که در طی فرآیند خنک‌سازی، کشش ناشی از انقباض مس در اثر ضریب انبساط حرارتی باعث شکستن دانه‌های آلومینا شده و پس از شکست نمونه اتصال، دانه‌های آلومینا سطحی را جدا کند. این نتایج نشان می‌دهند که فرآیند تفجوشی آلومینا به طور کامل انجام نشده است.

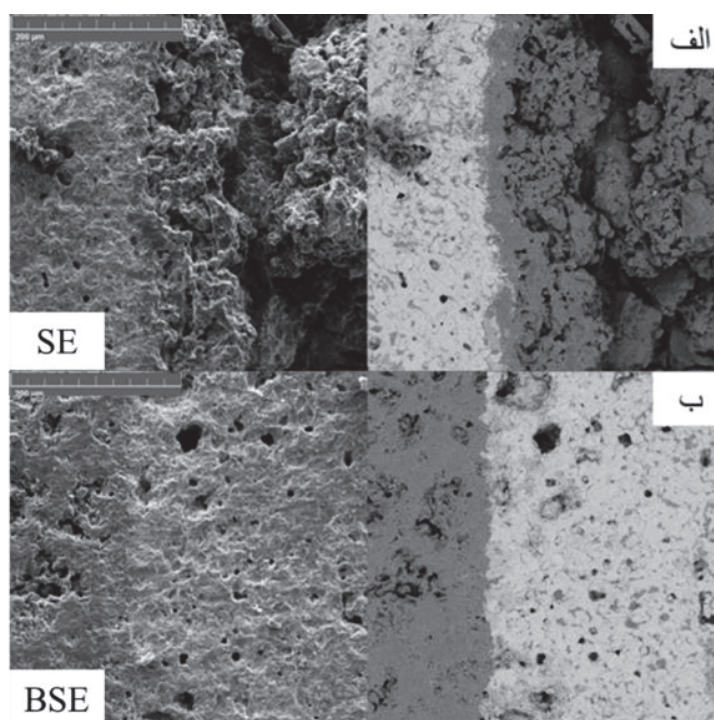
شکل ۸ الف و ب، تصاویر SEM فصل مشترک Al_2O_3 -Cu و SiC-Cu با استفاده از آلیاژ $SiC:3Cu$ در سمت SiC و $CuAl_2O_4$ در سمت Al_2O_3 را به ترتیب نشان می‌دهد. با توجه به تصاویر، می‌توان میزان نفوذ مس در سرامیک‌های اطراف را مشخص کرد. با در نظر گرفتن مقدار تخلخل موجود در نمونه‌های سرامیکی که در جدول ۱ بیان شده است، نمونه‌های سرامیکی متخلخل هستند که دلیل آن استفاده از فرآیند پرس سرد است. با افزایش مقدار تخلخل در نمونه‌ها، میزان نفوذ مس نیز افزایش می‌یابد که در نهایت به افزایش استحکام فصل مشترک منجر می‌شود. با این حال، مقدار تخلخل نباید از حد مجاز فراتر رود. مقادیر گزارش شده برای تخلخل در این تحقیق به نظر می‌رسد که در محدوده مناسبی قرار دارند و مقادیر کم‌تر یا بیش‌تر از این مقدار، منجر به کاهش استحکام می‌شوند. جدول ۲ میزان نفوذ فلز مس موجود در فصل مشترک را بر حسب میکرومتر در سرامیک‌های اطراف نشان می‌دهد.

جدول ۲: مقدار میانگین نفوذ مس بر حسب میکرومتر در سرامیک‌ها با آلیاژ $SiC:3Cu$.

عمق نفوذ مس بر حسب میکرومتر	ساختار سرامیکی
۱۸۰	Al_2O_3
۱۰۰	SiC

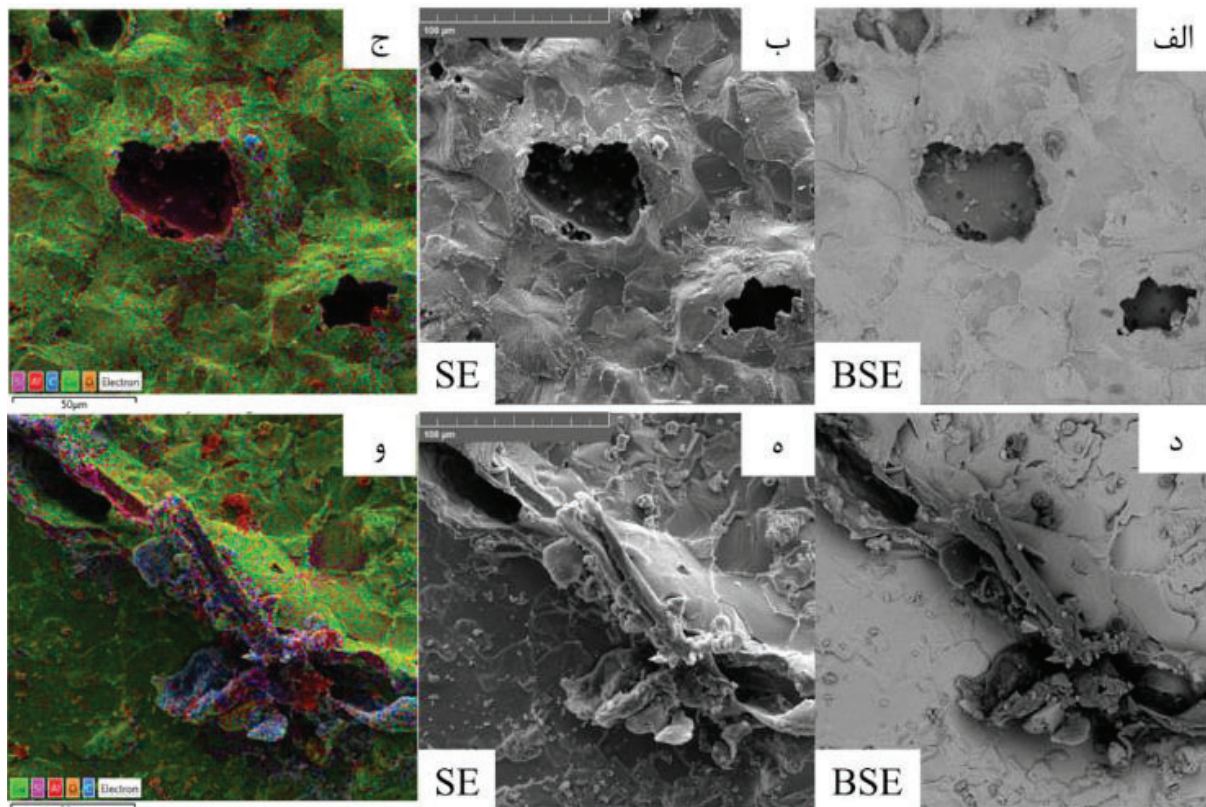


شکل ۷: تصویر SEM از اتصال $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Cu-SiC}$ با مد الف) الکترون بازگشتی و ب) الکترون ثانویه.



شکل ۸: تصویر SEM از فصل مشترک‌های الف) $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Cu}$ و ب) SiC-Cu

شکل ۹ نشان دهنده تصویر SEM و آنالیز عنصری سطح مقطع شکست فصل مشترک‌های $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Cu}$ و SiC-Cu می‌باشد. در سطح شکست، تمامی سه فاز اصلی شامل آلومینا، مس و کاربید سیلیسیم حضور دارند. این مشاهدات نشان دهنده نبود یک فاز خاص در ناحیه اتصال می‌باشند و به همین دلیل، تمامی فازها در محل شکست حاضر هستند. این اطلاعات نشان دهنده این است که استحکام ایجاد شده در این ناحیه با استحکام موجود در پیوندهای سطحی فازهای سرامیکی همخوانی دارد. اگر فرآیند تفجوشی سرامیک‌ها به طور کامل انجام شود، ناحیه شکست باید حاوی مقدار زیادی از فاز فلزی و مقدار بسیار کمی از فازهای سرامیکی باشد. این نکته نشان دهنده این است که مقدار بالای استحکام در این ناحیه بسیار مناسب است و در نتیجه، محل اتصال به راحتی دچار شکست نخواهد شد.



شکل ۹: تصویر SEM سطح شکست Al_2O_3-Cu در حالت الف) الکترون بازگشتی، ب) الکترون ثانویه و ج) نقشه عنصری. تصویر SEM در سطح شکست $SiC-Cu$ در حالت د) الکترون بازگشتی، ه) الکترون ثانویه و و) نقشه عنصری

در نهایت، مقدار مقاومت خمشی این اتصالات به ۱۹۰ نیوتن بر متر مربع رسید. بر اساس نتایج به دست آمده از اتصالات با استفاده از آلیاژ مکانیکی $SiC:3Cu$ و ساختار اسپینل به عنوان لایه میانی، مشخص شد که هر چه مقدار مس در لایه میانی آلیاژ مکانیکی مس-کاربید سیلیسیم و میزان اسپینل بیش تر باشد، استحکام بالاتری خواهد داشت. با توجه به مقادیر به دست آمده و مقایسه آن‌ها با اعداد ارایه شده در تحقیقات دیگر [۸-۱۰-۱۵]، مقدار مقاومت خمشی به دست آمده در این تحقیق بیش تر از آن‌ها بوده و می‌توان نتیجه گرفت که تمامی کارهای انجام شده برای این تحقیق مناسب بوده است.

۴- نتیجه گیری

برای بررسی اتصال اکسید آلومینیوم و کاربید سیلیسیم با استفاده از فلز مس، ساختار $CuAl_2O_4$ به عنوان یک لایه میانی برای فصل مشترک Al_2O_3-Cu و پودر کامپوزیتی از آلیاژ مکانیکی $SiC:3Cu$ به عنوان یک لایه میانی برای فصل مشترک $SiC-Cu$ استفاده شد. مشخص شد که انتخاب لایه‌های میانی جهت اتصال بهتر اکسید آلومینیوم و کاربید سیلیسیم به لایه فلزی مسی مناسب است. دلیل انتخاب ترکیب آلیاژ مکانیکی با نسبت بالای Cu به SiC افزایش امکان تکمیل فرآیند تفجوشی این آلیاژ در طول فرآیند اتصال به دلیل نقطه ذوب پایین تر می‌باشد. با بررسی تصاویر SEM، می‌توان مشخص نمود که در صورت کاهش درصد تخلخل، اندازه متوسط ذرات برای فاز فلزی و همچنین برای لایه‌های میانی باید کاهش یابد تا در اینصورت، نفوذ فاز فلزی به درون فاز سرامیکی مشاهده شود. مکانیزم‌های نفوذی که شامل نفوذ حجمی، مرزدانه‌ای و سطحی است، سازوکارهای اصلی این اتصال هستند که در میان آن‌ها با توجه به اینکه مواد اولیه متفاوت هستند، نفوذ سطحی اصلی‌ترین و سپس نفوذ شبکه‌ای، مهم‌ترین مکانیزم‌های نفوذی هستند. در واقع، علت تشکیل فازهای جدید در فصل مشترک، فرآیند نفوذ بوده که در آن اتم یا مولکول و یا یون به داخل شبکه ماده دیگر در سطح مجاور مهاجرت کرده و باعث ایجاد پیوندهای جدید می‌شود. در این پژوهش با استفاده از



فشار حدود ۱۰ مگاپاسکال هنگام ایجاد اتصال، مقدار مقاومت خمشی ۱۹۰ نیوتن بر متر مربع برای قطعات کامپوزیتی به دست آمد که در مقایسه با مراجع دیگر که از نیروهای بالاتری جهت ایجاد اتصال استفاده کرده بودند مقدار قابل قبولی می‌باشد. مشخص شد که ساختار اسپینل و آلیاژ مکانیکی مس-کاربید سیلیسیم می‌تواند به طور موثری در افزایش مقاومت خمشی در فرآیند اتصال مورد استفاده قرار گیرند. این نتیجه با توجه به اهمیت کاهش فشار در حین فرآیند اتصال برآورده شده است. برای تحقیقات آتی می‌توان با استفاده از کامپوزیت گفته شده، مقادیر متفاوت فشار و دما را مورد بررسی قرار داد. همچنین با محاسبه درصد فازهای اسپینل مس و دلفوسیت می‌توان تاثیر حضور هر فاز بر استحکام فصل مشترک را مقایسه نمود.

مراجع

- [1]. M. Uday, M. Ahmad-Fauzi, A. Noor and S. Rajoo, Current Issues and Problems in the Joining of Ceramic to Metal. *Join. Technol*, ed: InTech, 2016.
- [2]. F. A. Mir, N. Z. Khan and S. Parvez, Recent advances and development in joining ceramics to metals, *Materials Today: Proceedings*, vol. 46, pp. 6570-6575, 2021.
- [3]. J. A. Fernie, R. Drew and K. Knowles, Joining of engineering ceramics, *International Materials Reviews*, vol. 54, pp. 283-331, 2009.
- [4]. M. Locatelli, B. Dalgleish, K. Nakashima, A. Tomsia and A. Glaeser, New approaches to joining ceramics for high-temperature applications, *Ceramics International*, vol. 23, pp. 313-322, 1997.
- [5]. W. Czepułkowska, E. Wołowicz-Korecka and L. Klimek, The role of mechanical, chemical and physical bonds in metal-ceramic bond strength, *Archives of Materials Science and Engineering*, vol. 92, pp. 5-14, 2018.
- [6]. R. Jairaja and G. N. Naik, Single and dual adhesive bond strength analysis of single lap joint between dissimilar adherends, *International Journal of Adhesion and Adhesives*, vol. 92, pp. 142-153, 2019.
- [7]. K. Suganuma, T. Okamoto, M. Shimada and M. Koizumi, New Method for Solid-State Bonding Between Ceramics and Metals, *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 66, pp. c117-c118, 1983.
- [8]. Y. Kumashiro, *Electric refractory materials*: CRC Press, 2000.
- [9]. B. Krasnyi, N. Makarov, K. Ikonnikov, D. Lemeshev, D. Bernt, A. Galganova, et al., Ceramic and Refractory Materials Based on it—a Review. Part 1: Methods of the Synthesis of Calcium Zirconate, Glass and Ceramics, pp. 1-7, 2024.
- [10]. [10] K. Chouhan and M. Ali, Study of Lead Recycling by the Cupola Furnace and Rotary Furnace Using Different Refractory Materials, *Journal of Advanced Zoology*, vol. 45, 2024.
- [11]. C. Valverde, M.-M. Rodríguez-García, E. Rojas and R. Bayón, State of the art of the fundamental aspects in the concept of microwave-assisted heating systems, *International Communications in Heat and Mass Transfer*, vol. 156, p. 107594, 2024.
- [12]. G. Thomas, T. Volker and H. Andreas, *Diffusion bonding: influence of process parameters and material microstructure*, Joining Technologies, Intech Open Publishers, London, UK, 2016.
- [13]. K. Ozturk, R. Basu, C. Randall and M. Mayo, Diffusion bonding of rigid zirconia pieces using electrophoretically deposited particulate interlayers, *Scripta materialia*, vol. 41, pp. 1191-1195, 1999.
- [14]. L. Esposito, A. Bellosi, S. Guicciardi and G. De Portu, Solid state bonding of Al₂O₃ with Cu, Ni and Fe: characteristics and properties, *Journal of materials science*, vol. 33, pp. 1827-1836, 1998.
- [15]. A. A. Griffith, VI. The phenomena of rupture and flow in solids, *Philosophical transactions of the royal society of london. Series A, containing papers of a mathematical or physical character*, vol. 221, pp. 163-198, 1921.
- [16]. M. Gao, C. Scheu, T. Wagner, W. Kurtz and M. Rühle, Bonding between Cu and α -Al₂O₃, *International Journal of Materials Research*, vol. 93, pp. 438-443, 2022.
- [17]. A. Krzyńska, W. Włosiński and M. Kaczorowski, About the structure Cu-Al₂O₃ joints obtained by diffusion bonding, *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part B: Journal of Engineering Manufacture*, vol. 220, pp. 439-445, 2006.
- [18]. H. Kim, J. Jung, H. Choi and K. Jun, Analysis of interface structure and composition of Cu/Al₂O₃ for the high stability of DBC (direct bonded copper), in *PCIM Europe 2016; International Exhibition and Conference for Power Electronics, Intelligent Motion, Renewable Energy and Energy Management*, 2016, pp. 1-8.
- [19]. D. W. Susnitzky and C. B. Carter, The formation of copper aluminate by solid-state reaction, *Journal of materials research*, vol. 6, pp. 1958-1963, 1991.
- [20]. M. Backhaus-Ricoult and M.-F. Trichet, Comparison of interfacial chemistry at Cu/ α -alumina and Cu/ γ -alumina interfaces, *International Journal of Materials Research*, vol. 94, pp. 250-258, 2022.
- [21]. K. Jacob and C. Alcock, Thermodynamics of CuAlO₂ and CuAl₂O₄ and phase equilibria in the system Cu₂O-CuO-Al₂O₃, *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 58, pp. 192-195, 1975.
- [22]. R. Bushby and V. Scott, Joining aluminium/nicalon composite by diffusion bonding, *Composites Engineering*, vol. 5, pp. 1029-1042, 1995.
- [23]. J. Chen, Y. Li, W. Miao, C. Mai and M. Li, Bonding Cu to Al₂O₃ with Bi-B-Zn Oxide Glass Via Oxidation-Reduction Reaction, *Journal of Electronic Materials*, vol. 47, pp. 542-549, 2018.
- [24]. L. Wang, W. Jiang, Z. Yang, X. Wang, Y. Lu and W. Lv, Joining mechanism between Al₂O₃-Ag-Cu-Ti composite coating and GCr15 substrate, *Surface and Coatings Technology*, vol. 223, pp. 98-103, 2013.



- [25]. L. Yuan, W. Wang, X. Huang, Y. Qi and X. Li, Joining of Al_2O_3 to Cu with Cu-Sn-Ti active brazing filler alloy, *Welding in the World*, vol. 66, pp. 1471-1479, 2022.
- [26]. K. Hafez, M. El-Sayed and M. Naka, Joining of alumina ceramics to metals, *Science and Technology of Welding and Joining*, vol. 10, pp. 125-130, 2005.
- [27]. S. H. Han, R. Rosa, V. Casalegno, M. Salvo, P. Veronesi, M. Ferraris, et al., Microwave assisted Self-propagating High-temperature Synthesis for joining SiC ceramics and SiC/SiC composites by Ni-Al system, *Applied Mechanics and Materials*, vol. 727, pp. 213-218, 2015.
- [28]. M. Hattali, S. Valette, F. Ropital, G. Stremstoerfer, N. Mesrati and D. Tréheux, Study of SiC–nickel alloy bonding for high temperature applications, *Journal of the European Ceramic Society*, vol. 29, pp. 813-819, 2009.
- [29]. M. Vigneshwar, S. Selvamani, K. Tarun and K. Palanikumar, A novel approach for joining armor grade AA7075 metal matrix nano composites using various welding processes, *Materials today: proceedings*, vol. 16, pp. 1175-1181, 2019.
- [30]. S. Hassanzadeh-Tabrizi, R. Pournajaf, A. Moradi-Faradonbeh and S. Sadeghinejad, Nanostructured $CuAl_2O_4$: Co-precipitation synthesis, optical and photocatalytic properties, *Ceramics International*, vol. 42, pp. 14121-14125, 2016.
- [31]. M. Akbarpour and S. Alipour, Wear and friction properties of spark plasma sintered SiC/Cu nanocomposites, *Ceramics International*, vol. 43, pp. 13364-13370, 2017.



Investigating the Joining between Silicon Carbide and Aluminum Oxide using Copper Metal Layer

Reza Ahadi Dolatsara¹, Aziz Shahraki¹, Adrine Malek Khachatourian¹, Mohammad Golmohammad², Ali Nemati^{1*}

¹ Department of Materials Science and Engineering, Sharif University of Technology, Tehran, Iran

² Renewable Energy Department, Niroo Research Institute (NRI), Tehran, Iran

* nemati@sharif.edu

Abstract: Nowadays, the fabrication of integrated parts from different materials or composite parts using joining or additive manufacturing techniques is widely investigated. Many studies have focused on bonding oxide ceramics like aluminum oxide to itself and carbide ceramics like silicon carbide to itself. This research examines the bonding mechanisms of two types of ceramics, silicon carbide, and aluminum oxide, using a copper metal layer and the creation of intermediate layers between the metal and ceramic layers composed of raw materials in the ceramic phase. The spinel structure for the interface of copper and aluminum oxide and the Cu-SiC mechanical alloy composite for the interphase of copper and silicon carbide have been investigated, with both layer thicknesses being less than 1 micrometer. The solid-state diffusion process is used to connect the parts in this research. The structure, microstructure, and mechanical properties of the manufactured samples have been investigated using X-ray diffraction (XRD), scanning electron microscopy (SEM), X-ray energy dispersive spectroscopy (EDS), and bending tests. According to the results, the flexural strength in the interphase is 190 N/mm², which has significantly increased compared to previous research. Finally, it can be concluded that applying the appropriate intermediate layers results in a well-established connection.

Keywords: Oxide Ceramics, Ceramic/Metal Bonding, Solid-State Diffusion, Silicon Carbide, Aluminum Oxide.