

## تحضير سيراميك ثنائي $Al_2O_3-Y_2O_3$ وتوصيف بنيته البلورية وخواصه

صبا عياش<sup>(1)</sup> ومحمد عبد الحفيظ<sup>(2)</sup> ومحمد سوقية<sup>(3)</sup>

تاريخ الإيداع 2014/05/28

قبل للنشر في 2014/12/24

### الملخص

حضرت في هذا العمل عينات سيراميكية وفق التركيب الإيوتكتيكي:  $Al_2O_3-18mol\%Y_2O_3$  بطريقة تكنولوجيا المساحيق لأوكسيدي الألمنيوم والايتريوم مع المعالجة الحرارية عند الدرجة  $727^\circ C$  و  $1350^\circ C$ . كما جرى تحليل طوري بطريقة XRD للمساحيق الأولية المستخدمة  $Al_2O_3$  و  $Y_2O_3$  وللعينات المحضرة. أظهر التحليل الطوري نمواً واضحاً للطور  $YAM(Y_4Al_2O_9)$  على حساب الأوكسيدات الأوليين. كما بين اختبار القساوة زيادة في قساوة العينات المعالجة عند الدرجة  $727^\circ C$  و  $1350^\circ C$  مقارنة بحالة أكسيد الألمنيوم المستخدم بنحو 90% و 150% على الترتيب. وأظهرت الدراسة المجهرية بواسطة مجهر القوة الذرية AFM زيادة تراص بنية العينات السيراميكية بعد عملية المعالجة الحرارية.

الكلمات المفتاحية: تكنولوجيا المساحيق،  $Al_2O_3-Y_2O_3$ ، معالجة حرارية، تحليل طوري.

(1) طالبة دكتوراه، (2) أستاذ مساعد، قسم الفيزياء، كلية العلوم، جامعة دمشق، سورية.

(3) قسم الفيزياء، هيئة الطاقة الذرية، سورية.

## Binary ceramic $\text{Al}_2\text{O}_3 - \text{Y}_2\text{O}_3$ preparation and characterizations of its structure and properties

S. Ayash<sup>(1)</sup>, M. abdilhafiz<sup>(2)</sup> and M. Soukieh<sup>(3)</sup>

Received 28/05/2014

Accepted 24/12/2014

### ABSTRACT

In this work, ceramic samples were prepared with eutectic composition  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-18mol\%Y}_2\text{O}_3$  by the powder technology method of the aluminum and yttrium oxides using heat treatments at 727 and 1350°C. Phase analysis of the received powder ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3$ ) and treated samples were achieved using XRD. The phase analysis revealed the growing of new crystalline phase: YAM ( $\text{Y}_4\text{Al}_2\text{O}_9$ ). The hardness of the treated samples at 727 and 1350°C had increased by 90%, 150% respectively, in comparison with the aluminum oxide. The AFM microscopic study showed more compaction after the heat treatment of the samples.

**Key words:** Powder technology,  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Y}_2\text{O}_3$ , Heat treatment, Phase analysis.

---

<sup>(1)</sup>PhD., Student, <sup>(2)</sup>Associate professor, Department of Physics, Faculty of Sciences, Damascus University, Syria.

<sup>(3)</sup>Department of Physics, Atomic Energy Commission, Syria.

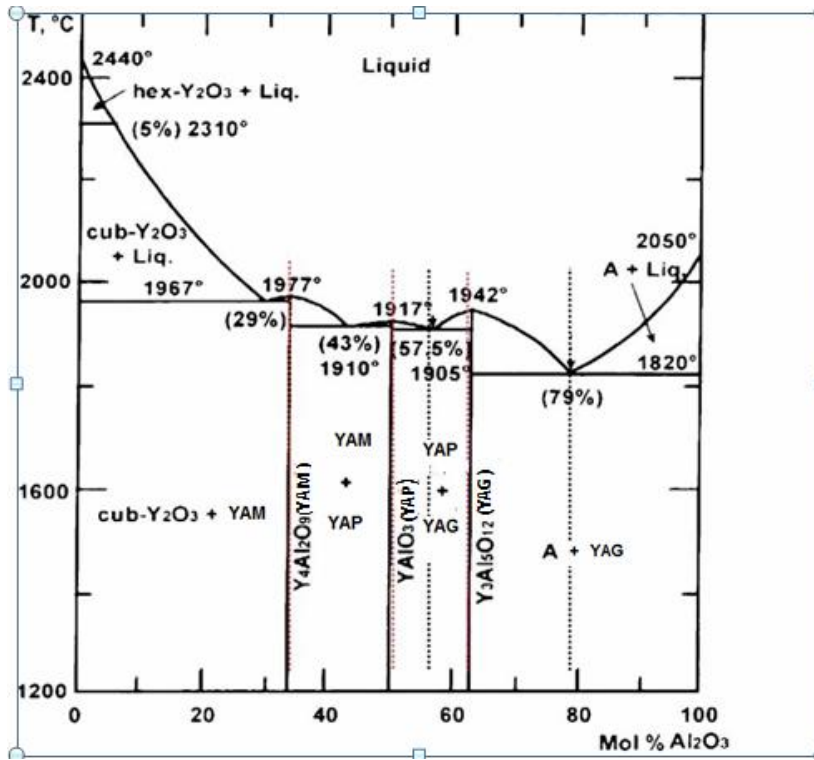
## المقدمة

تتميز المواد السيراميكية بالمقاومة العالية للتآكل والمتانة العالية عند درجات الحرارة المرتفعة، ولكنها تصنف من المواد القصفة (brittleness). يعدُّ أكسيد الألمنيوم من أكثر المواد السيراميكية أهميةً نظراً إلى درجة انصهاره المرتفعة ( $T_m=2054^\circ\text{C}$ ) واستقراره الكيميائي ومقاومته للتآكل وغيرها. ويحضر أكسيد الألمنيوم انطلاقاً من فلز البوكسيت ويملك عدداً من الأطوار البلورية يُشار إليها بالرموز الآتية:  $\alpha$ ،  $\delta$ ،  $\gamma$ ،  $\theta$ . ويُعدُّ الطور  $\alpha$  الأكثر استقراراً بسبب التحول الطوري الآتي:  $\alpha \rightarrow \theta \rightarrow \delta \rightarrow \gamma$  [1,2]. ويستخدم أكسيد الألمنيوم في تصنيع الأدوات الكاشطة والقاطعة وأجر الأفران وغيرها، إلا أن انخفاض متانته للكسر، قد تحد من استعماله في بعض التطبيقات الإنشائية. وقد تبيّن في السنوات الأخيرة أن إشبائه بأكاسيد أخرى مثل أكسيد الإيتريوم  $\text{Y}_2\text{O}_3$  وأو أكسيد الزركونيوم  $\text{ZrO}_2$  قد تؤدي إلى تحسين بنيته وخواصه [2,4,5]. حضرت خلال العقود الأخيرة كثير من المواد السيراميكية بخواص مميزة، مثل:  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-YAG}$  و  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-GdAlO}_3$  [3]. كما يتمتع أكسيد الإيتريوم باستقرار حتى درجة حرارة قريبة من درجة انصهاره ( $T_m=2350^\circ\text{C}$ ) مع متانة ميكانيكية مرتفعة [6]. توجه الاهتمام حديثاً لدراسة الجملة السيراميكية الثنائية  $\text{Y}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$  التي تعدُّ من الجمل الواعدة نتيجة لاستقرارها الحراري والكيميائي ومتانتها العالية عند درجات الحرارة المرتفعة [7].

تطرق معظم البحوث لدراسة تشكل الأطوار في الجملة الثنائية  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Y}_2\text{O}_3$ : الطور YAM (وفق الصيغتين  $\text{Y}_2\text{Al}_4\text{O}_7$ ،  $\text{Y}_4\text{Al}_2\text{O}_9$ ) والطور YAP ( $\text{YAlO}_3$ ) والطور YAG ( $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ ) [8,9]. يبيّن الشكل (1) المخطط الطوري للجملة:  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Y}_2\text{O}_3$  [10]. يلاحظ من هذا الشكل أن الطور YAG ( $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ ) يتشكل في أجل التركيز ( $\geq 62\text{mol.}\% \text{Al}_2\text{O}_3$ ) وضمن مجال درجات الحرارة  $1200\text{-}1800^\circ\text{C}$ ، ويقع التركيب المولي الإيوتكتيكي (Eutectic) لهذا الطور عند:  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-}18\text{mol}\% \text{Y}_2\text{O}_3$ .

خصّصت العديد من البحوث العلمية لدراسة المخطط الطوري للجملة:  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Y}_2\text{O}_3$  وخواصها نظراً إلى الأهمية الكبيرة للطور YAG الذي يستخدم كمادة حاملة أو مضيئة للعناصر الفعالة ليزرياً (مثل: Nd, Cr,...). كما يمكن استخدامه في تحضير العناصر البصرية وطلاء للحجز الحراري (Thermal barrier coating). كما تعدُّ بلورات YAG من المواد المرشحة للاستخدام كألياف داعمة للمواد السيراميكية [10, 11].

يمكن أن يُحضر المركب السيراميكي الإيوتكتيكي  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-YAG}$  انطلاقاً من المساحيق:  $\text{Al}_2\text{O}_3$  و YAP بعدة طرائق، مثل طريقة المعقد البوليميري Polymerized complex. وتكون بنية المركب الناتج منراصة ومتجانسة.



الشكل (1) مخطط الأطوار للجملة:  $Al_2O_3$ - $Y_2O_3$ .

كما يمكن تحضيره بطريقة الطحن الميكانيكي باستخدام مطحنة الكرات الكوكبية planetary ball mill. وقد درست التحولات الطورية من الجملة الإيوتكتيكية شبه المستقرة  $Al_2O_3$ -YAP إلى الجملة الإيوتكتيكية المتوازنة  $Al_2O_3$ -YAG. وتبين زيادة تركيز المراكز المفضلة لتتوية الطور YAG انطلاقاً من مزيج المساحيق ذات الأبعاد دون الميكروية ( $Al_2O_3$ , YAP) [12,13]. كما تُعد طريقة تكنولوجيا المساحيق من الطرائق الشائعة لتحضير المركبات السيراميكية، إذ تمزج في هذه الطريقة المساحيق الأولية بوجود مادة عضوية رابطة. ومن ثم يُعرض المزيج لضغط مناسب ضمن قالب وفق الأبعاد المطلوبة لتشكيل عينات سيراميكية. ومن ثم تعالج العينات حرارياً لتحقيق عملية التلييد sintering، التي تُعد من المراحل المهمة جداً في عملية التحضير من حيث دمج تكتلاتها المسحوقية بتأثير درجة الحرارة لتشكيل بنى مترابطة [14]. يعتمد تحضير الطور YAG على التركيب المولي للخلطة المتفاعلة  $Al_2O_3$ - $Y_2O_3$  وفقاً لمخطط الأطوار.

$$\frac{\text{Al}_2\text{O}_3}{\text{Y}_2\text{O}_3} = \frac{5}{3}$$

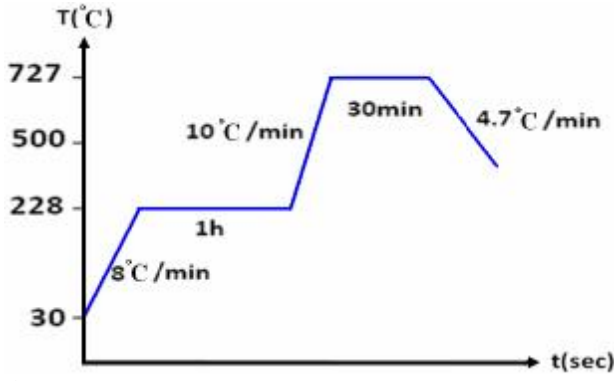
وتبلغ النسبة المثلى للتركيب نحو:

كما يؤثر في تحضيره وسائط المعالجة، وكذلك البنية الطورية لأكسيد الألمنيوم  $\text{Al}_2\text{O}_3$  المستخدم [15]. يحدث تفاعل الحالة الصلبة بين الإيتريا والألومينا وفق التسلسل الآتي: يتشكل أولاً الطور YAM نتيجة للتفاعل بين أكسيد الألمنيوم وأكسيد الإيتريوم، ثم يتحول الطور YAM للطور YAP الذي يستمر بدوره بالتفاعل مع أكسيد الألمنيوم لإنتاج الطور YAG. ويعدُّ نمو الطور YAG بواسطة تفاعل الحالة الصلبة عملية معقدة جداً إذ تجري عدة عمليات في الوقت نفسه وتتضمن: النمو الحبيبي للألومينا والإيتريا وانتشار أيونات  $\text{Al}^{3+}$  داخل شبكة الإيتريا، والتحول الطوري من النوع:  $\text{YAM} \rightarrow \text{YAP} \rightarrow \text{YAG}$  [9,8]. بينما تؤدي المعالجة الحرارية لمساحيق هذه الجملة  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Y}_2\text{O}_3$  عند درجات حرارة  $>1600^\circ\text{C}$  إلى تشكل الأطوار البينية (الطور YAM و YAP) وطور الألومينا مع الطور YAG. في حين يسهم ارتفاع درجة حرارة المعالجة  $<1600^\circ\text{C}$  في الحصول على الطور YAG من خلال تسريع الانتشار الأيوني وفقاً لتفاعل الحالة الصلبة [9,8].

لذا هدف هذا العمل إلى تحضير عينات سيراميكية ثنائية:  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Y}_2\text{O}_3$  وفق التركيب المولي الإيونتكيني (Eutectic):  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-18mol\% Y}_2\text{O}_3$  بطريقة تكنولوجيا مساحيق من أكسدي الألمنيوم والإيتريوم مع المعالجة الحرارية عند الدرجة  $1350^\circ\text{C}$ . كما درست في هذا العمل بنية العينات السيراميكية المُحضرة وأطوارها وبعض أهم خواصها.

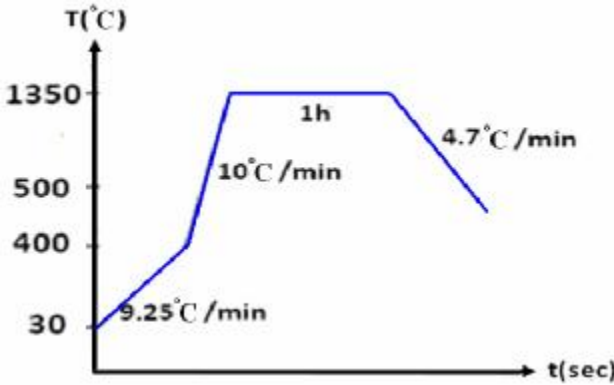
### العمل التجريبي

حُضرت في هذا العمل خلطة سيراميكية ثنائية من أكسيد الألمنيوم  $\text{Al}_2\text{O}_3$  وأكسيد الإيتريوم  $\text{Y}_2\text{O}_3$ . استخدمت مساحيق نانوية الأبعاد (10-50nm) من أكسيد الألمنيوم (بنقاوة 99.99%) وأكسيد الإيتريوم (بنقاوة 99.99%) (من شركة rare- CO.,LTD (China metals)). جرت عملية التحضير من خلال مزج المساحيق النانوية وفق نسبة موافقة للتركيب  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-18mol\% Y}_2\text{O}_3$  بوجود رابط عضوي من البولي فينيل الكحول (PVA) للحصول على خلطة متجانسة. ومن ثم جُففت الخلطة الناتجة للتخلص من الرابط العضوي؛ وذلك بتسخينها عند الدرجة  $228^\circ\text{C}$  مدة 1h (الموافقة لدرجة تبخر البولي فينيل الكحول). ومن ثم عُولجت الخلطة حرارياً ضمن فرن أنبوبي عند الدرجة  $727^\circ\text{C}$ ، كما هو مبين في الشكل (2).



الشكل (2) مخطط مراحل معالجة العينات السيراميكية عند الدرجة  $727^{\circ}C$ .

وضعت الخلطة ضمن مكبس ميكانيكي وطُبقت عليها قوة 66KN مدة 10 دقائق لتحضير أقراص سيراميكية بقطر 13mm وثنائية 1mm. ومن ثم عُولجت الأقراص المحضرة حرارياً (تلييد بغرض زيادة كثافتها وتماسكها) داخل فرن أنبوبي عند الدرجة  $1350^{\circ}C$  في الهواء مدة 1h، ومن ثم بُردت إلى درجة حرارة الغرفة بمعدل  $4.7^{\circ}C/min$  كما هو مبين الشكل (3).



الشكل (3) مخطط مراحل معالجة العينات السيراميكية عند الدرجة  $1350^{\circ}C$  بعد الضغط.

أجريت اختبارات القساوة الميكروية ( $HK$ ) microhardness للعينات وفق مقياس نوب من خلال تطبيق حمولات مختلفة على العينة:  $F = 25, 50, 75, 100g$  خلال مدة زمنية  $t = 10s$ . تتحدد عملياً قساوة العينات من قياس بعد الأثر المحدث على سطح العينة بطريقة نوب باستخدام العلاقة الآتية:

$$HK = \frac{F}{C \times d^2}$$

إذ:  $F$  - الحمولة المطبقة،  $d$  - قطر الأثر المقيس.

أُخذت خمس قراءات لكل اختبار قساوة ومن أجل كل حمولة، ومن ثم أخذت القيمة الوسطية لكل اختبار، ومنه قدرت دقة قياس القساوة (نحو 8%). كما جرى اختبار طوبوغرافيا العينات المحضرة باستخدام مجهر القوة الذرية (AFM) (easy scan 2 flex) شركة (Nano surf). وجرى التحليل الطوري للعينات المحضرة بطريقة انعراج الأشعة السينية XRD ( $\text{Cu, K}\alpha$ ) (ADP200، شركة Ital Structures) وفق مرحلتين:

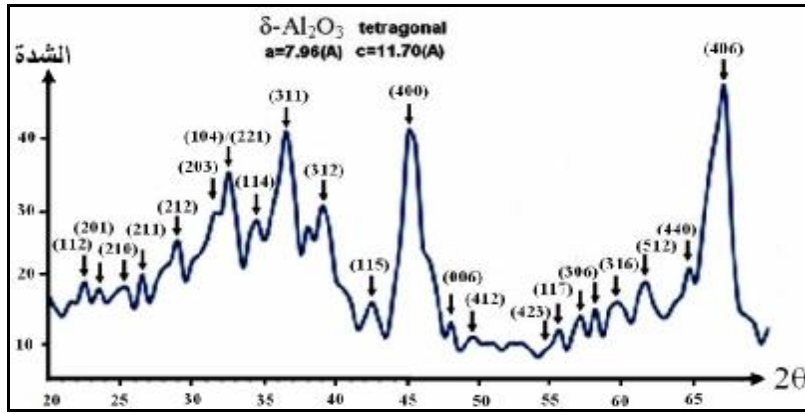
1- الحصول على الطيف التجريبي لانعراج الأشعة السينية وحساب المسافات بين المستويات البلورية المختلفة  $d_{hkl}$  (من معرفة زاوية الانعراج  $2\theta$  وتطبيق علاقة براغ  $(2 \times d_{hkl} \times \sin q = l$ ).

2- مقارنة قيم  $d_{hkl}$  التجريبية بقيم  $d_{hkl}$  العيارية لأطوار الجملة (Al-Y-O) المتوفرة في قاعدة بيانات ASTM والمتوفرة ضمن مكتبة برنامج Winsearch والبحث عن حالات التطابق بينها.

### النتائج التجريبية والمناقشة

#### التحليل الطوري للأكاسيد الأولية والخطة السيراميكية:

يبين الشكل (4) مخطط انعراج الأشعة السينية XRD لمسحوق أكسيد الألمنيوم المستخدم في هذا العمل. أظهرت مقارنة معطيات مخطط انعراج  $\text{Al}_2\text{O}_3$  (القيم التجريبية للمسافات بين المستويات البلورية  $d_{hkl}$ ) بالمعطيات المرجعية  $d_{hkl}$  الواردة في المرجع [16] وجود تطابق تام بين هذه المعطيات التجريبية مع قيم  $d_{hkl}$  العائدة للطور  $\delta\text{-Al}_2\text{O}_3$  (مثلاً: المستويات البلورية (406), (400), (311), (221), (112) (hkl) كما هو مبين في الشكل (4) والجدول (1). ولم تلاحظ أي قيم انعراج أخرى ومن ثم مسحوق أكسيد الألمنيوم المستخدم في هذا العمل هو مسحوق وحيد الطور من النوع  $\delta\text{-Al}_2\text{O}_3$ . ويتميز هذا الطور ببنية رباعية tetragonal مع ثوابت خلية أولية:  $a=b=7.96(\text{Å})$ ,  $c=11.70(\text{Å})$  وذلك وفقاً لمعطيات المرجع [16]. كما أظهرت مقارنة القيم التجريبية  $d_{hkl}$  المحسوبة من مخطط انعراج XRD في حالة مسحوق أكسيد الإيتريوم (الشكل 5 والجدول 2) تطابقها بشكل تام مع معطيات البطاقة المرجعية ICDDNo:05-0574 العائدة للإيتريا  $\text{Y}_2\text{O}_3$  ذي البنية المكعبية مع ثابت خلية أولية  $a=10.604(\text{Å})$ . كما تبين أيضاً أن مسحوق الإيتريا المستخدم في هذا العمل هو مسحوق وحيد الطور.



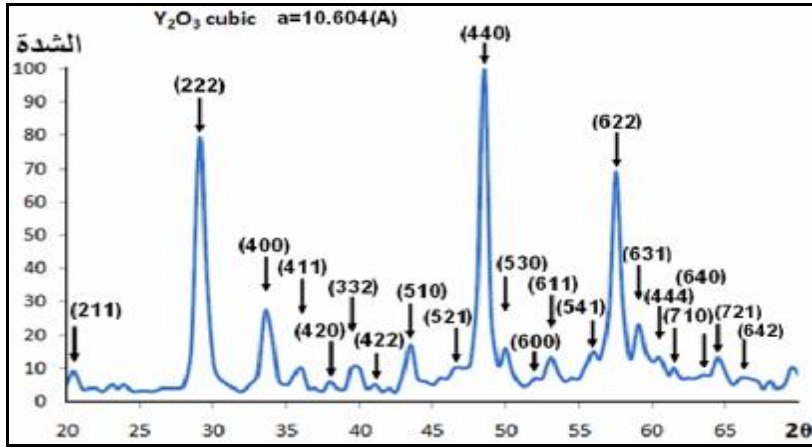
الشكل (4) مخطط انعراج XRD لمسحوق أكسيد الألمنيوم المستخدم.

الجدول (1) تحليل مخطط انعراج XRD لمسحوق أكسيد الألمنيوم المستخدم

[16] $d-Al_2O_3$		القيم العيارية $d_{hkl}(A^{\circ})$ الموافقة للطور		القيم التجريبية	
(hkl)	I/I <sub>0</sub>	$d_{hkl}(A^{\circ})$	توصيف الشدة (تجريبي)	$d_{hkl}(A^{\circ})$	2θ
(112)	20	4.05	ض	3.95	22.5
(201)	2	3.75	ض	3.78	23.5
(210)	7	3.56	ض	3.55	25.1
(211)	10	3.40	ض	3.36	26.5
(212)	10	3.03	م	3.09	28.9
(203)	30	2.783	م	2.77	32.2
(221)/(104)	30	2.737	ق	2.73	32.8
(114)	70	2.593	م	2.61	34.4
(311)	70	2.457	ق	2.46	36.5
(312)	40	2.311	م	2.31	38.9
(115)	25	2.156	ض	2.13	42.4
(400)	70	1.989	ق	2.01	45.1
(006)	60	1.950	ض	1.89	48
(412)	2	1.833	ض	1.85	49.3
(423)	10	1.616	ض	1.65	55.5
(226)/(117)	15	1.602	ض	1.62	56.9
(306)	1	1.572	ض	1.59	58
(316)	10	1.543	م	1.55	59.5
(512)	20	1.507	م	1.51	61.4
(440)	60	1.407	م	1.45	64.4
<b>(406)</b>	<b>100</b>	<b>1.392</b>	<b>ق</b>	<b>1.40</b>	<b>67</b>

ق: شدة قوية، م: شدة متوسطة، ض: شدة ضعيفة.





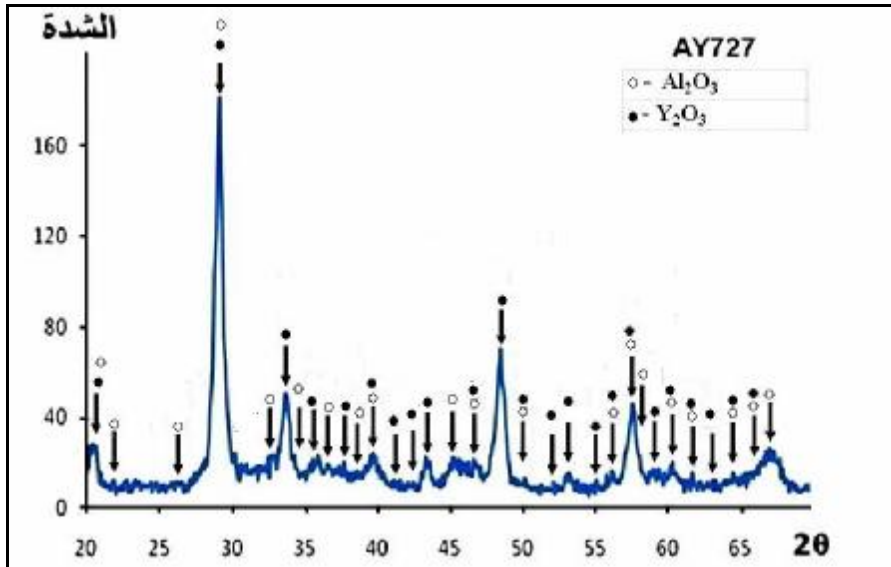
الشكل (5) مخطط انعراج XRD لمسحوق أكسيد الإيتريوم.

الجدول (2) تحليل مخطط انعراج XRD لمسحوق أكسيد الإيتريوم المستخدم.

القيم العيارية $d_{hkl}$ (°A) الموافقة للبطاقة المرجعية (05-0574)			القيم التجريبية $d_{hkl}$ (°A)		
(hkl)	$I/I_0$	$d_{hkl}$ (°A)	توصيف الشدة (تجريبي)	$d_{hkl}$ (°A)	$2\theta$
(211)	16	4.34	ض	4.33	20.5
(222)	100	3.06	ق	3.08	29
(400)	30	2.652	م	2.67	33.5
(411)	7	2.5	ض	2.50	36
(420)	1	2.372	ض ج	2.37	38
(332)	8	2.261	ض	2.27	39.7
(422)	1	2.165	ض ج	2.16	41.8
(510)	12	2.08	م	2.09	43.3
(521)	3	1.936	ض ج	1.95	46.5
(440)	46	1.874	ق	1.88	48.4
(530)	2	1.818	ض	1.83	50
(600)	1	1.769	ض ج	1.76	52
(611)	5	1.72	ض	1.73	53
(541)	4	1.636	ض	1.64	56
(622)	31	1.599	ق	1.60	57.5
(631)	7	1.563	م	1.56	59
(444)	5	1.531	ض	1.53	60.5
(710)	2	1.499	ض	1.51	61.4
(640)	1	1.47	ض ج	1.47	63
(721)	3	1.443	ض	1.44	64.5
(642)	2	1.417	ض	1.41	66.0

ق: شدة قوية، م: شدة متوسطة، ض: شدة ضعيفة، ض ج: شدة ضعيفة جدا.

يبين الشكل (6) مخطط انعراج XRD للعينات السيراميكية  $Al_2O_3-18mol\% Y_2O_3$  المعالجة حرارياً عند الدرجة  $727^{\circ}C$  (AY727). كما يبين الجدول (3) مطابقة بين القيم التجريبية  $d_{hkl}$  للعينات السيراميكية المعالجة حرارياً (AY727) مع القيم العيارية  $d_{hkl}$  وقرائن ميللر لأهم أطوار الجملية (Al-Y-O). يُلاحظ من الشكل (6) والجدول (3) سيطرة طور أكسيد الإيتريوم على طيف الانعراج نظراً إلى انتماء القمم ذات الشدات المرتفعة لطيف أكسيد الإيتريوم على الرغم من انخفاض النسبة المولية لأكسيد الإيتريوم في التركيب الثنائي، كما يلاحظ أيضاً الاحتفاظ ببعض القمم الموافقة لأكسيد الألمنيوم والمتمثل انتماؤها للطور  $\delta$  أو الطور  $\theta$  وفقاً للقمة:  $2\theta=67, d=1.39A$  المتوافقة مع الشدة العليا في بطاقة الطور  $\delta$  والطور  $\theta$ .



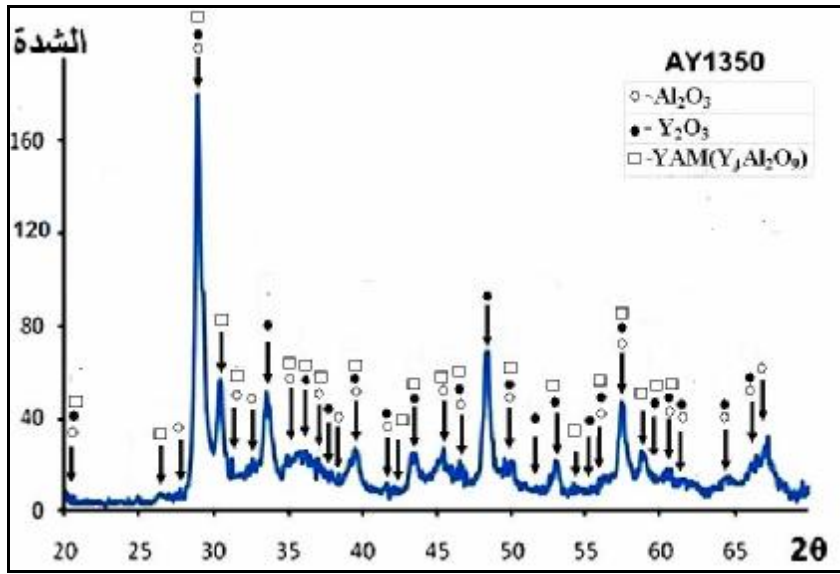
الشكل (6) مخطط انعراج XRD لعينات المركب السيراميكي  $Al_2O_3-18mol\% Y_2O_3$  بعد المعالجة عند الدرجة  $727^{\circ}C$  (AY727).

الجدول (3) التحليل الطوري للعينات السيراميكية  $Al_2O_3-Y_2O_3$  المعالجة عند الدرجة  $727^\circ C$ .

القيم العيارية						القيم التجريبية		
$Y_2O_3$ (Card No:05-0574)			$Al_2O_3$ (card NO:04-0877)			توصيف الشدة (تجريبي)	$d_{hkl}$ ( $^\circ A$ )	زاويا الانعراج 2 $\theta$
(hkl)	I/I <sub>0</sub>	$d_{hkl}$ ( $^\circ A$ )	(hkl)	I/I <sub>0</sub>	$d_{hkl}$ ( $^\circ A$ )			
(211)	16	4.34	(113)	12	4.57	م	4.33	20.5
-	-	-	(114)/(105)	12	4.07	ض ج	4.04	22
-	-	-	(116)	4	3.23	ض ج	3.36	26.5
<b>(222)</b>	<b>100</b>	<b>3.06</b>	(214)/(107)	4	3.05	ق	3.03	29.5
-	-	-	(222)	30	2.728	ض	2.73	32.7
(400)	30	2.652	-	-	-	م	2.67	33.5
-	-	-	(302)/(118)	25	2.601	ض	2.58	34.7
(411)	7	2.5	-	-	-	ض	2.50	36.0
-	-	-	(312)	60	2.460	ض	2.43	36.9
(420)	1	2.372	-	-	-	ض	2.38	37.7
-	-	-	(314)/(305)	8	2.315	ض ج	2.36	38.1
(332)	8	2.261	(226)	40	2.279	ض	2.26	39.5
(422)	1	2.165	-	-	-	ض ج	2.12	42.5
(510)	12	2.08	-	-	-	ض	2.08	43.5
-	-	-	(400)	75	1.986	ض	1.99	45.5
(521)	3	1.936	(0.0.12)	40	1.953	ض	1.95	46.5
(440)	46	1.874	-	-	-	م	1.87	48.5
(530)	2	1.818	(426)/(3.1.11)	8	1.810	ض ج	1.84	49.5
(600)	1	1.769	-	-	-	ض ج	1.77	51.5
(611)	5	1.72	-	-	-	ض	1.73	52.9
(620)	1	1.677	-	-	-	ض ج	1.66	55.0
(541)	4	1.636	(1.1.14)	8	1.628	ض	1.63	56.0
(622)	31	1.599	(513)	4	1.604	م	1.60	57.4
(631)	7	1.563	-	-	-	ض	1.56	59.0
(444)	5	1.531	(1.1.15)	8	1.538	ض	1.53	60.5
(710)	2	1.499	(523)/(516)	16	1.517	ض	1.51	61.4
(640)	1	1.47	-	-	-	ض ج	1.47	62.9
(721)	3	1.443	(440)	8	1.456	ض ج	1.44	64.5
(642)	2	1.417	(4.0.12)	50	1.407	م	1.40	66.3
-	-	-		<b>100</b>	<b>1.396</b>	م	1.39	67

ق: شدة قوية، م: شدة متوسطة، ض: شدة ضعيفة، ض ج: شدة ضعيفة جدا.

يبين الشكل (7) مخطط انعراج XRD للعينات السيراميكية  $Al_2O_3$ -18mol%  $Y_2O_3$  المعالجة حرارياً عند الدرجة  $1350^\circ C$  (AY1350). ويظهر الجدول (4) مطابقة بين القيم التجريبية  $d_{hkl}$  للعينات السيراميكية المعالجة حرارياً (AY1350) مع القيم العيارية  $d_{hkl}$  وقرائن ميلر لأهم أطوار الجملة (Al-Y-O). يُلاحظ من مقارنة الشكلين (6) و (7) بقاء معظم قمم الانعراج العائدة للأكسيدات:  $Al_2O_3$ ،  $Y_2O_3$  مع تناقص طفيف في شداتها ( $2\theta=20.5, 22, 32.7, \dots$ ) نتيجة لتفاعلها خلال المعالجة الحرارية. كما يلاحظ ظهور قمم انعراج جديدة ( $2\theta=30.5, 31.0, 53.5, \dots$ ) بعد المعالجة الحرارية. أظهر التحليل الطوري لهذه العينات نمواً واضحاً لطور جديد من النوع  $YAM(Y_4Al_2O_9)$  (الموافق للبطاقة العيارية ذات الرقم: 22-0987) الذي يتميز ببنية أحادية الميل monoclinic مع ثوابت خلية أولية:  $a=7.373^\circ A$ ,  $b=10.487^\circ A$ ,  $c=11.121^\circ A$ ,  $\beta=106.53^\circ$ . ويمكن أن تؤدي زيادة درجة حرارة المعالجة  $\geq 1600^\circ C$  وإبقاء التسخين عدة ساعات إلى تسريع عمليات انتشار الذرات في الجملة  $Al_2O_3$ -18mol%  $Y_2O_3$  وإعادة توزيعها ونمو حبيبات الطور YAG وفق التحول الطوري:  $[9,8]YAM \rightarrow YAP \rightarrow YAG$ .



الشكل (7) مخطط انعراج XRD لعينات المركب السيراميكي  $Al_2O_3$ -18mol%  $Y_2O_3$  بعد المعالجة عند الدرجة  $1350^\circ C$  (AY1350).

الجدول (4) التحليل الطوري للعينات السيراميكية  $Al_2O_3-Y_2O_3$  المعالجة عند الدرجة  $1350^\circ$

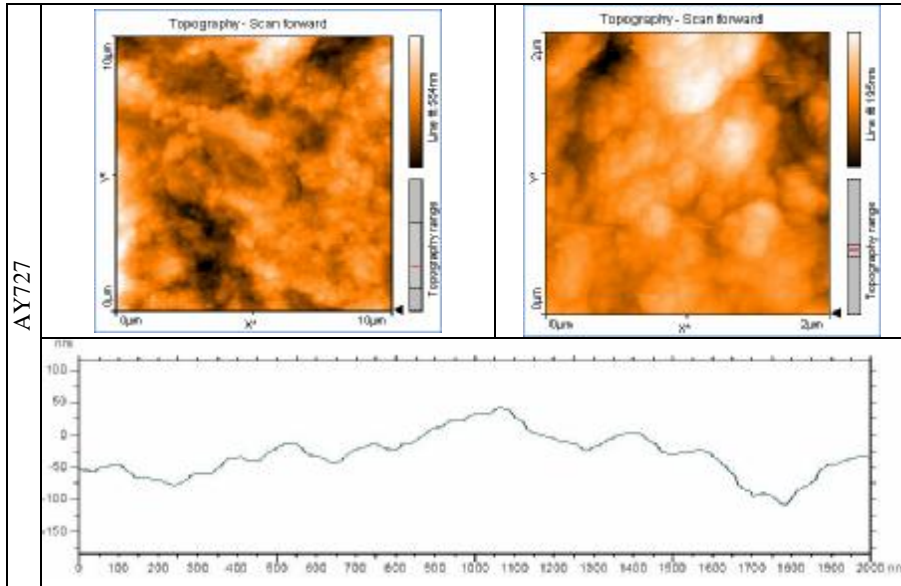
القيم العيارية									القيم التجريبية		
$Y_4Al_2O_9$ (YAM) (Card No:22-0987)			$Y_2O_3$ (Card No:05-0574)			$Al_2O_3$ (Card NO:04-0877)			توصيف الشدة (تجريبي)	$d_{hkl}$ ( $^\circ A$ )	زاويا الاعراج 2 $\theta$
(hkl)	I/I <sub>0</sub>	$d_{hkl}$ ( $^\circ A$ )	(hkl)	I/I <sub>0</sub>	$d_{hkl}$ ( $^\circ A$ )	(hkl)	I/I <sub>0</sub>	$d_{hkl}$ ( $^\circ A$ )			
(-112)	16	4.54	(211)	16	4.34	(113)	12	4.57	ض ج	4.31	20.6
(013)	95	3.33	-	-	-	-	-	-	ض ج	3.39	26.3
-	-	-	-	-	-	(116)	4	3.23	ض ج	3.23	27.6
<b>(122)</b>	<b>100</b>	<b>3.01</b>	<b>(222)</b>	<b>100</b>	<b>3.06</b>	(107)/(214)	4	3.05	ق	3.08	29
(220)	95	2.908	-	-	-	-	-	-	م	2.93	30.5
(131)	45	2.884	-	-	-	(117)	8	2.88	ض	2.87	31.0
-	-	-	-	-	-	(222)	30	2.728	ض ج	2.73	32.7
-	-	-	(400)	30	2.65	-	-	-	م	2.67	33.5
(014)	65	2.559	-	-	-	(118)/(302)	25	2.601	ض	2.58	34.7
(041)	30	2.538	(411)	7	2.5	-	-	-	ض	2.50	36.0
(-214)	35	2.454	-	-	-	(312)	60	2.46	ض	2.43	36.9
-	-	-	(420)	1	2.372	-	-	-	ض	2.38	37.7
-	-	-	-	-	-	(314)/(305)	8	2.315	ض ج	2.36	38.1
(310)	30	2.274	(332)	8	2.261	(226)	40	2.279	ض	2.26	39.5
-	-	-	(422)	1	2.165	(1.1.10)	4	2.160	ض ج	2.18	41.4
(320)	12	2.129	-	-	-	-	-	-	ض ج	2.12	42.5
(124)	85	2.063	(510)	12	2.08	-	-	-	ض	2.08	43.5
(241)	16	1.981	-	-	-	(400)	75	1.986	ض	1.99	45.5
(052)	16	1.945	(521)	3	1.93	(0.0.12)	40	1.953	ض	1.95	46.5
-	-	-	(440)	46	1.874	-	-	-	م	1.88	48.3
(242)	85	1.83	(530)	2	1.818	(426)/(3.1.11)	8	1.810	ض	1.84	49.5
-	-	-	(600)	1	1.769	-	-	1.759	ض ج	1.75	51.9
(-404)	30	1.732	(611)	5	1.72	-	-	1.73	ض	1.73	52.9
(410)	60	1.724	-	-	-	-	-	1.701	ض ج	1.71	53.5
-	-	-	(620)	1	1.677	-	-	-	ض ج	1.66	55.0
(234)	25	1.628	(541)	4	1.636	(1.1.14)	8	1.628	ض ج	1.63	56.0
(-236)	25	1.613	(622)	31	1.599	(513)	4	1.604	م	1.60	57.4
(162)	40	1.576	-	-	-	-	-	-	ض	1.57	58.6
(-117)	60	1.562	(631)	7	1.563	-	-	-	ض ج	1.56	59.3
(-425)	45	1.55	(444)	5	1.531	(1.1.15)	8	1.538	ض	1.53	60.5
-	-	-	(710)	2	1.499	(523)/(516)	16	1.517	ض ج	1.51	61.4
-	-	-	(721)	3	1.443	(440)	8	1.456	ض ج	1.44	63.8
-	-	-	(642)	2	1.417	(4.0.12)	50	1.407	ض	1.40	66.3
-	-	-	-	-	-	-	<b>100</b>	<b>1.396</b>	م	1.39	67

ق: شدة قوية، م: شدة متوسطة، ض: شدة ضعيفة، ض ج: شدة ضعيفة جدا.

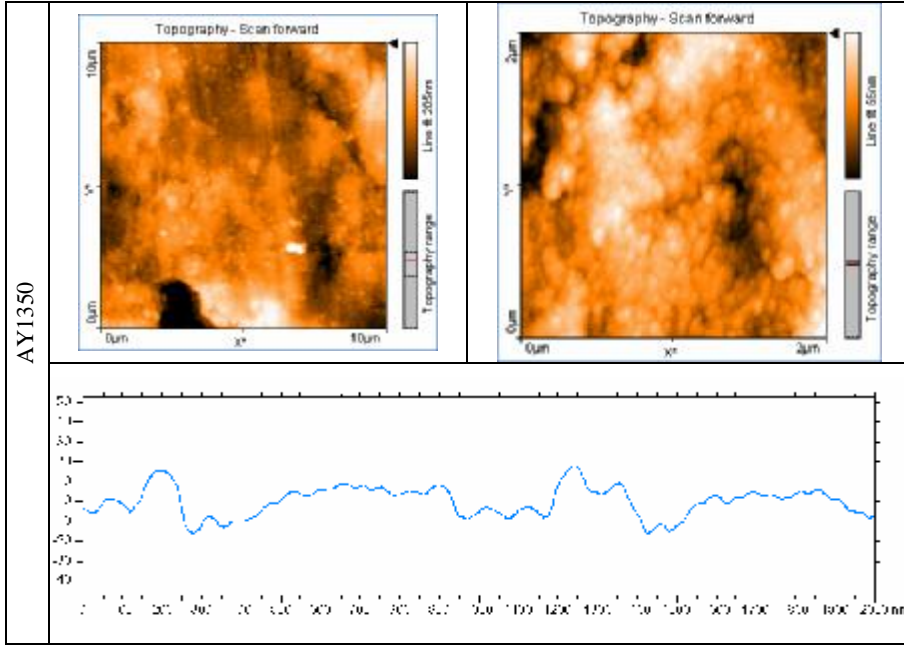
### اختبار طبوغرافيا سطح العينات المحضرة:

يبين الشكلان (8 و 9) صور AFM ثلاثية الأبعاد لسطح العينات السيراميكية  $Al_2O_3-18mol\% Y_2O_3$  المعالجة حرارياً AY727 و AY1350. يُلاحظ من الشكل (8) أن بنية (طبوغرافيا) سطح العينات السيراميكية المعالجة حرارياً عند الدرجة  $727^\circ C$  تحوي على مسامات وفراغات، في حين يلاحظ نمو التكتلات بعد معالجتها عند الدرجة  $1350^\circ C$ .

كما يبين هذا الشكل أن تغير طبوغرافيا سطح هذه العينات يقع ضمن المجال:  $100-125nm$ . وبشكل عام تؤدي المعالجة الحرارية عند الدرجة  $1350^\circ C$  إلى إعادة توزيع الذرات في العينات المعالجة ونمو حبيباتها البلورية وتشكل الطور YAM نتيجة للانتشار الحراري لذرات الجملة  $\delta-Al_2O_3-18mol\% Y_2O_3$ . مما يؤدي إلى خفض نسبة المسامات والفراغات في بنيتها وزيادة تراصها إذ يقع متوسط تغير طبوغرافيا سطح هذه العينات ضمن المجال:  $25-30nm$ . كما يلاحظ تغير طبوغرافيا سطح العينات بعد معالجتها عند  $1350^\circ C$  مع وضوح لحدود بعض الحبيبات. وتبين من تقدير أبعاد الحبيبات زيادة في متوسط أبعادها من  $100nm$  (حالة المعالجة AY727) إلى  $130nm$  بعد المعالجة عند الدرجة  $1350^\circ C$  (AY1350).



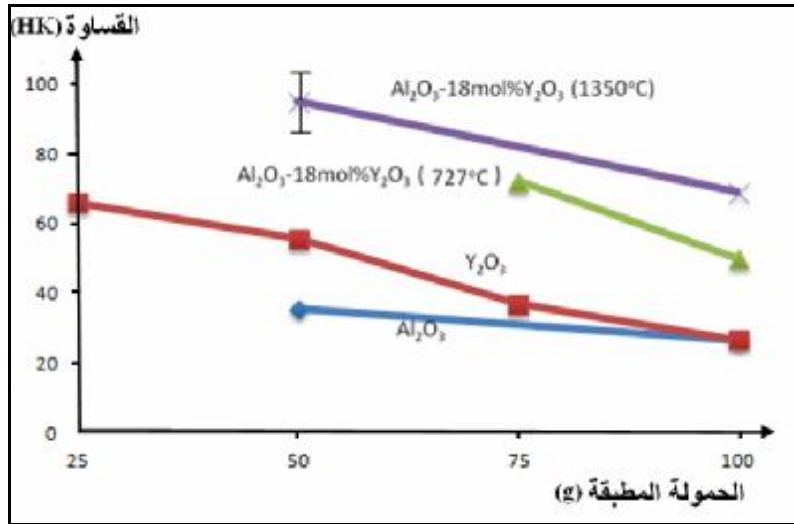
الشكل (8) تصوير AFM لعينة  $\delta-Al_2O_3-Y_2O_3$  بعد المعالجة عند  $727^\circ C$  مع منحنى طبوغرافيا سطحها.



الشكل (9) تصوير AFM لعينة  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Y}_2\text{O}_3$  بعد المعالجة عند  $1350^\circ\text{C}$  مع منحنى طوبوغرافيا سطحها.

#### اختبار قساوة العينات:

يبين الشكل (10) نتائج اختبار قساوة عينات الأكسيدات الأوليين والخلطة السيراميكية  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-18mol\%Y}_2\text{O}_3$  بعد معالجتها عند الدرجة:  $727^\circ\text{C}$  و  $1350^\circ\text{C}$ . يُلاحظ من الشكل (10) تحسن قساوة العينات السيراميكية  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-18mol\%Y}_2\text{O}_3$  بعد المعالجة عند الدرجة  $727^\circ\text{C}$  مقارنة بقساوة أكسيد الألمنيوم بنحو 90% من أجل حمولة 100 g، كما تحسنت قساوة العينات السيراميكية  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-18mol\%Y}_2\text{O}_3$  المعالجة عند الدرجة  $1350^\circ\text{C}$  بنحو 150% مقارنة بقساوة أكسيد الألمنيوم من أجل الحمولة ذاتها. ويمكن أن يُعزى ذلك إلى إسهام المعالجة الحرارية في إعادة توزيع الذرات في العينات المعالجة ونمو حبيباتها البلورية وتشكل الطور الجديد (YAM)، كما هو مبين من الجدولين (3) و(4). فضلاً عن أثر هذه المعالجة الحرارية في تحسين بنية العينات السيراميكية وخفض نسبة المسام وتراسها، كما هو مبين من نتائج الدراسة المجهرية AFM (الشكلان 8 و9).



الشكل (10) تغير قساوة العينات السيراميكية  $Al_2O_3$ -18mol% $Y_2O_3$  بعد المعالجة عند الدرجة  $727^\circ C$  وعند  $1350^\circ C$  مقارنة بالأوكسيدات الأوليين.

### الخلاصة والاستنتاجات

- 1- أظهر التحليل الطوري للعينات السيراميكية المحضرة  $Al_2O_3$ -18mol%  $Y_2O_3$  بعد المعالجة الحرارية عند الدرجة ( $1350^\circ C$  و  $727^\circ C$ ) تشكلاً للطور YAM كطور وسيط أولي ونموه بعد المعالجة الحرارية عند الدرجة  $1350^\circ C$ .
- 2- تؤدي إضافة أكسيد الإيتريوم إلى أكسيد الألمنيوم، عند التركيب  $Al_2O_3$ -18mol%  $Y_2O_3$  وبعد معالجتها عند الدرجة  $727^\circ C$  و  $1350^\circ C$  إلى تحسين قساوتها مقارنة بأكسيد الألمنيوم المستخدم بنحو 90% و 150% على الترتيب.
- 3- تؤدي عملية المعالجة الحرارية للعينات السيراميكية المحضرة إلى خفض نسبة مساماتها وزيادة تراص بنيتها، ويمكن أن يُعزى ذلك إعادة توزيع الذرات في العينات المعالجة ونمو حبيبات الطور الجديد YAM على حساب الأوكسيدات الأوليين.



## References

1. Shackelford J. F., Doremus R. H., 2008. Ceramic and glass Materials, Structure, Properties and processing, springer pp.13-15.
2. Lodziana Z., Parlinski K., 2003. Dynamical Stability of the  $\alpha$  and  $\theta$  phases of alumina, *phy. Rev. B.*, pp.1-7.
3. Taylor D. A., 2001. Advanced Ceramics – The Evolution, Classification, Properties, Production, Firing, Finishing and Design of Advanced Ceramics, Materials Australia. J. V.33, No.1, pp. 20-22.
4. Lach R., Haberko K., 2010. Particulate Composites in the  $Al_2O_3$ -YAG System, *Materialy Ceramiczne/Ceramic Materials. J.*, V.62, No.4, pp. 496-499.
5. Xu Y. N., Gu Z. Q. and Ching W. Y., 1997. Electronic, structural, and optical properties of crystalline yttria, *Phy. Rev. B.*, V.56, No.23, PP.1-8.
6. Larimi Z. M., Amirabadizadeh A. and Zelati A., 2011. Synthesis of  $Y_2O_3$  Nano-particles by Modified Transient Morphology Method, *IPCBE. J.*, V.10, pp.1-5.
7. Yasuda H., Ohnaka I., Mizutani Y. and Waku Y., 2001. Selection of eutectic system in  $Al_2O_3$ - $Y_2O_3$  ceramics, *Science and technology of advanced material*, 2 ,pp. 67-71.
8. Gi Jung. H., Jun Hong. S., Ho Hwang. G., Kyu Han. W and Goon Kang. S, 2008. Synthesis and sintering of YAG powder by a mechanochemical solid reaction of yttria with two types of Aluminum source, *journal of ceramic processing research*, V.9, No.2, pp.111-117.
9. Shyong Tsai. M, Chuar Fu. W., Chang Wu. W., Ho Chen. Ch. and Hsin Yang. Ch, 2008. Effect of the aluminum source on the formation of yttrium aluminum garnet (YAG) powder via solid state reaction, *journal of alloys and compounds*, No.455, pp.461-464.
10. Medraj M., Hammond R., Parvez M. A., Drew R. A. L. and Thompson W. T., 2006. High temperature neutron diffraction study of the  $Al_2O_3$ - $Y_2O_3$  system, *European Ceramic Society J.*, pp.3515-3524.
11. Huang, H., Gong, H., Tang, D. and Tan O. K., 2009. Synthesis and characterization of yttrium aluminum garnet by high – energy ball milling, *optical materials*, 31, pp.716-719.
12. Nagira T. and Yasuda H., 2012. Fabrication of  $Al_2O_3$ -YAG Equilibrium Eutectic Composites via Transformation from Fine  $Al_2O_3$  and YAP Powder Mixtures, *Materials Transactions*, Vol. 53, No.6 , pp. 1124 –1129.
13. Zhang Q. and Satio F., 2003. Mechanochemical solid reaction of yttrium oxide with alumina leading to the synthesis of yttrium aluminum garnet, *Powder Technology*, 129, pp.86-91.
14. Boch, P and Niepce, J. C., 2007. *Ceramic Materials: Processes, Properties and Applications*. London, UK, ISTE, Ltd.
15. Ulahannan, G., 2014. Synthesis and sintering of translucent yttrium aluminum garnet , *Master of Tech*, in *Ceramic Engineering*, Rourkela.
16. Rooksby. H. P., 1961. The formation and structure of delta alumina, the general electric company LTd, *Clay Min Bull*, Vol. 4, pp. 234-238.