

دراسة مركبات الالومينا المحضرة بدالتين هيدروجينيتين مختلفتين

بطريقة الترسيب الكيميائي المشترك

صباح علي خضر ، محمد علي عبد ، عمر عبد الوهاب أحمد
وزارة التربية / مديرية تربية ديالى 1.2.3
Sabah3807@gmail.com

الخلاصة :

تناول هذا البحث تحضير ودراسة مركبات الالومينا المحضرة بدالتين هيدروجينيتين مختلفتين بطريقة الترسيب الكيميائي المشترك . حيث تم من خلال البحث تحضير عيتين فقط بطريقة الترسيب الكيميائي المشترك في محاليل ذات محيط قاعدي في $ph10$, $ph12$ عند درجة حرارة واحدة مقدارها 60 درجة سيليزية ومن ثم حرق العينات بدرجة حرارة 600 درجة سيليزية ومن ثم تليد العيتين تحت درجة حرارة 1300 درجة سيليزية وبعد اتمام تحضير العينات المخصصة للدراسة تم اجراء عليها مجموعة فحوصات تركيبية XRD والامتصاصية FTIR والخاصية العزلية LC-Meter . واثبتت الفحوصات ان العينة ذات $ph10$ هي اكثر تجانسا وفعالية من العينة الاخرى وهذا يدل ان الوسط القاعدي $Ph10$ هو الافضل للتحضير العينات ودراستها، واما فحص الامتصاصية FTIR حيث تم ظهور جميع قمم الامتصاص ضمن مدى الاقل من 1000Cm^{-1} وهذا يدل على انها تعود الى مركبات الالومينا المتفاعلة . اما فحص العزلية LC-Meter يكون ثابت العزل الحقيقي والخيالي فيها يسلكان نفس السلوك في الترددات الواطئة جداً الغير محسوسة، واما عند الترددات العالية فان ثابت العزل الكهربائي لا يعتمد على التردد ، وهذه الترددات ومع ذلك ان هذان العيتين تكونان عوازل لأنه الترددات الواطئة والعالية تكون في مناطق ذات ترددات واطئة جدا وهذا التردد هو ضمن الترددات المواد العازلة .
الكلمات المفتاحية : مركبات ، الالومينا ، مطياف IR ، طريقة الترسيب الكيميائي .

study of Alumina compounds prepared via two different hydrogen functions by co-precipitation method

Sabah Ali Khadhir ، Mohammed A.Abed ، Omar Abdulwahhab Ahmed
Ministry of Education / Diyala Education Directorate
Sabah3807@gmail.com

Abstract :

This paper deals with the preparation and study of alumina compounds prepared with two different hydrogen's through co-precipitation. Where, through treatment, only two samples were combined chemical precipitation in solutions with a base circumference of $ph10$, $ph12$ at one temperature of 60C° and then burning with temperature 600C° and then sintering the two samples under a temperature of 1300C° and after completing the preparation of bulk samples for the study and blood . The tests proved that the sample with $ph10$ is more homogeneous and effective than the other sample, and this indicates that the basal medium $Ph10$ is the best for preparing and studying samples. As for the absorbance test, FTIR , where all the absorption peaks appeared within the range of less than 1000cm^{-1} , and this indicates that it belongs to compounds Reactive alumina. As for the LC- Meter , the real and imaginary dielectric constant behave the same at very low frequencies that are imperceptible . As for the high frequencies, the dielectric constant does not depend on frequency, and these frequencies however, these two samples are insulators because the low and high frequencies are in Very low frequency areas. This frequency is within the insulating Materials frequencies.

Key words: compounds, alumina, IR spectroscopy, chemical precipitation method.

حرارة في (1350 C⁰) فهو يزيد من متانة الانحناء. (5) ويمتلك أكسيد الألمنيوم النقي $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ تركيباً بلورياً سداسي حيث تترتب أيونات الأوكسجين السالبة حول الشكل السداسي، أما أيونات الألمنيوم الموجبة فتترتب على الجوانب المثمنة لهذه المجموعة وترتيب ذرات الأوكسجين حول ذرات الألمنيوم وينتج عن تركيب Al_2O_3 على التوالي وان نصف قطر الايون والايون السالب O_3 وتكون أعداد تناسق 6 و 4 لكل من الايون الموجب Al , O , Al_3 وان الايون السالب ونصف القطر للألمنيوم 0.053 nm والاكسجين يساوي 0.138nm (6). فقد تم إنتاج سيراميك الالومينا عام 1907 بعدها تطور الإنتاج بصورة كبيرة عن طريق تنوع الأساليب التقنية في صناعة المواد السيراميكية حيث أول استخدام للالومينا كعازل مثل شمعات القدح وكذلك كتجهيزات المخبرية تبعها للتوسع في الاستخدامات وكذلك شمل الصناعات الالكترونية أيضاً (7). بينما قام الباحث (Sarkar) بتأثير الومينا على المواد كمتراكب نانوية في سنة 2006 (8). حيث قام الباحث (Ram-zan) وزملائه بدراسة متراكب الالومينا - زركونيا كمتراكب نانوي في عام 2017 (9). حيث درس الباحثان في عام 2016 DOMINIKA MADEJ and JACEK SZCZERBA متراكب الالومينا المطعم بالزركونيا والكالسيوم كمتراكب واثبتوا انها ذات حجام نانوية (10). وان الباحث (Nassar) واصدقائه درس متراكب الالومينا المغنسيوم واستخدم طريقة السول جل في تحضيرها في عام 2014 (11). وان الباحث (Dash) واخرون قاموا بدرسه تركيبية لمترب الومينا المطعم بالمغنسيوم في عام 2017 (12). واما الباحث (Ahmed) درس الالومينا المطعمة كمادة عازلة كهربائياً وقام بفحص العينات عزليا في عام 2018 (13).

المقدمة Introduction

الومينا هي واحدة من أكثر المواد الخزفية المستخدمة على نطاق واسع بسبب معامل المرونة العالية التآكل العالي المقاومة والمقاومة للتآكل الكيميائي، والاستقرار درجات الحرارة العالية والاحتفاظ بالقوة عند درجات الحرارة العالية. ومع ذلك، فإن العيب من الالومينا المشتركة هو خصائصها الميكانيكية الضعيفة، مثل قوة الانثناء (حوالي 380 ميغا باسكال) وصلابة الكسر (حوالي 3.5) (1/2 Mpa) مؤخرًا، قوة الانحناء تصل إلى 654 ميغا باسكال ومتانة كسر تصل إلى تم الحصول على 507 Mpa 1/2 ومن أجل سيراميك الالومينا نستعمل مسحوق الالومينا عالي النقاوة ذو درجة حرارة عالية وهذه الالومينا سوف تستخدم على نطاق واسع في التطبيقات الهندسية (1).

توجد ألومينا النقية بشكلين أساسيين ألفا - الومينا ($\alpha - \text{Al}_2\text{O}_3$) وكاما - الومينا $\gamma - \text{Al}_2\text{O}_3$ توجد أيضاً على شكل بيتا $\beta - \text{Al}_2\text{O}_3$ وهي غير نقية وتعد $\alpha - \text{Al}_2\text{O}_3$ وتسمى أيضا الفا - الالومينا الكورندوم الشكل الأكثر استقرارا في خواصها الفيزيائية. وتكون الالومينا غير لدنه والتي تتحول من شكل الى اخر بالحرارة وتتغير صفاتها وخواصها، وان الالومينا تنصهر الالومينا عند درجة حرارة 1700-1800، اما عند حرارة 2050 درجة سيليزية وتكون كثافتها عالية (2). وتستخدم كعوازل كهربائية جيدة وكمادة صامدة للحرارة عند درجات حرارة عالية باستخلاص الالومينا من الكاؤولين $\text{H}_2\text{O}.2\text{SiO}_2.\text{Al}_2\text{O}_3$ (3). حيث درس الباحث (Ohira) استخدامات الالومينا في تحضير العوازل الكهربائية البورسلينية (4). وجد إن إضافة الالومينا إلى الكاؤولين و الفلدسبار كمادة صاهرة لتحضيرها وأن البورسلين المحضر بدرجة

The practical side العملي الجانب

لعمل العينتين نتبع الخطوات العمل التالية :

1. نأخذ العينتين من المواد الخام التالية:

الجدول (1) يوضح المواد الاولية المستخدمة لتحضير مركبات الالومينا

Materials	Chemical formula	Molar Mass g/mol	purity	Country product	The Company
Aluminum nitric -9-hydro	$Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$	375.13	95.0	German	RIEDEL-DE-HAENA
Ammonium hydroxide solution	NH_3 in H_2O	35.04	99%	Sigma Aldrich	Germany

8. وبعدها تطحن بهاون خزفي لتجانسها وتغربل

بمنخل حجمه $75\mu m$.9. ثم تلبد بحرارة $1300C^0$ ولمدة أربع ساعات .

10. وتأخذ على شكل مسحوق وتفحص بالأشعة

السينية XRD والامتصاصية FTIR. اما الفحوصات

العزلية فتأخذ العينة على شكل قرص بعد اخذ كمية

من المسحوق وكبسه بقالب خاص على شكل (حبة

البارستول) بشكل قرص دائري بحجم 1cm ويتم

فحصها بوضع القرص المكبوس في الجهاز وقراءة

البيانات بجهاز LCM-Meter .

11. وكذلك يتم العمل على العينة الثانية للالومينا

بنفس خطوات العمل السابقة ويتم اجراء نفس

الفحوصات لكن عند تقطير الامونيا ذات $PH=12$

نلاحظ يكون الترسيب بشكل اسرع وبفترة اقل .

ويتم اخذ النسبة من نترات الالمنيوم المائية و حسب

الوزن الجزئي لها .

2. تكون شرط اذابه المواد في 100 مل من الماء

المقطر.

3. بعد الاذابة التامة تخلط مع بعض لمدة نصف

ساعة .

4. ثم تقطر عليها الامونيا المخففة ذات $PH=10$ مع استمرار الخلط بحرارة $60C^0$ ونلاحظ ان فترة

الترسيب تكون اطول .

5. مع استمرار الخلط يترسب المحلول بالكامل

ويصبح محلول رائق .

6. ترشح بورق الترشيح وتغسل لعدة مرات بالماء

المقطر والامونيا ايضا ثم تجفف لمدة يومين وبدرجة

حرارة الغرفة .

7. وتوضع في جفن الالومينا التي تتحمل الحرارة

العالية و تحرق بدرجة حرارة $600C^0$ كحرق اولي لمدة

اربع ساعات بفرق حراري كهربائي وترفع درجة

الحرارة تدريجيا من $0C^0$ الى $600C^0$.

الزوايا التالية وحسب الترتيب الموجود:

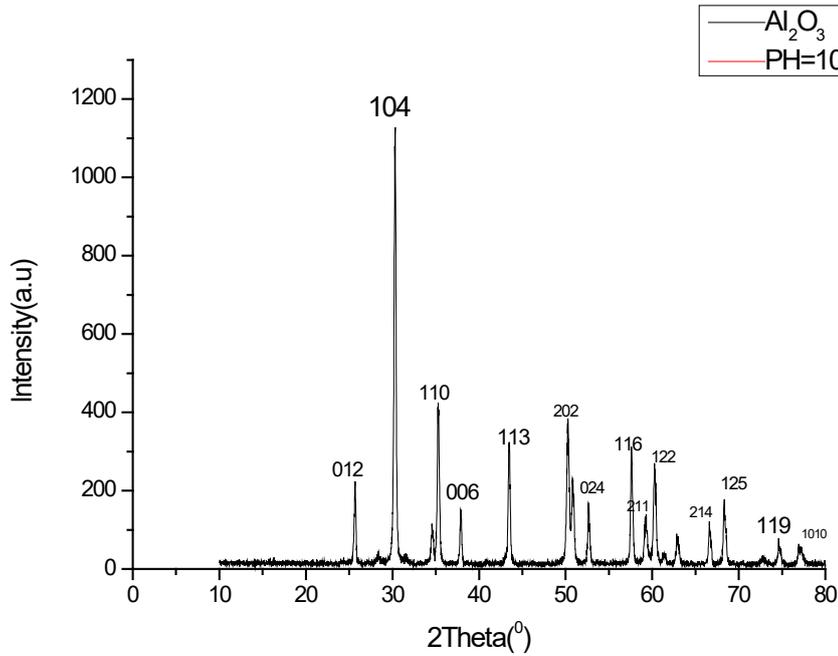
$$\theta_2 = (25.58 , 35.13 , 37.78 , 41.68 , 43.36 , 57.51 , 59.76) .$$

والمقابلة للمستويات وحسب البطاقة القياسية (ICDD) والمرقمة (00-010-0173) عند الدالة $\text{pH}=10$ وتكون متطابقة إلى حد كبير في قيم الزوايا (57.51 , 35.13) للمركب الالومينا التابعة للمصدر (15) كما في الشكل (1) .

النتائج و المناقشة Results and discussion

1- نتائج فحوصات حيود الأشعة السينية X-ray diffraction results

اظهرت نتائج الفحص بتقنية انماط حيود الاشعة السينية للعينات المحضرة للمركبات على شكل مساحيق والمبلدة بدرجة حرارة 1300C° ، للعينات الآتي :
نلاحظ ظهور طور الالومينا الفا وظهور القمم عند

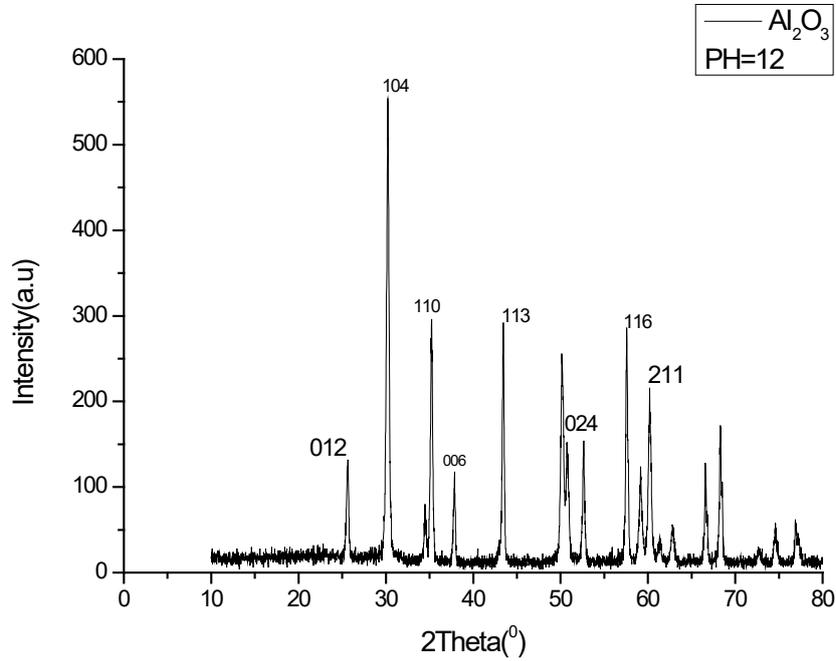


الشكل (1) فحص XRD لعينة الالومينا ذات $\text{PH}=10$ المحضرة بدرجة حرارة 1300C° .

ونلاحظ عند مقارنتها مع البطاقات القياسية (ICDD) والمرقمة (00-010-0173) وتكون متطابقة إلى حد كبير في قيم الزوايا (41.67 , 37.77 , 43.35 , 57.51 , 59.76) للمركب الالومينا التابعة للمصدر (8). كما في الشكل (2) .

وعند مطابقة العينة الأخرى ذات الدالة الأخرى ذات $\text{pH}=12$ نلاحظ ظهور نفس الطور ولكن بشدة أقل بسبب سرعة التفاعل وعدم الامتزاج الجيد الذي مر به التفاعل للعينة الثانية على التوالي وظهور القمم عند الزوايا التالية والمقابلة :

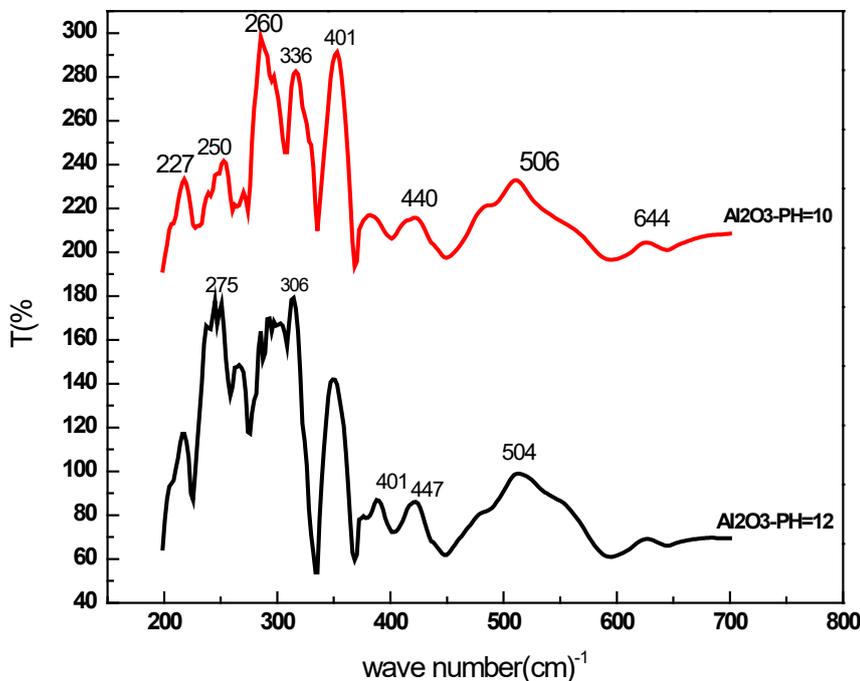
$$\theta_2 = (25.57 , 35.15 , 37.77 , 41.67 , 43.35 , 57.49 , 59.73) .$$



الشكل (2) فحص XRD لعينة الالومينا ذات PH=12 المحضرة بدرجة حرارة 1300°C .

مع النتائج حيث كان حزم الامتصاص محصوره بين (200 cm^{-1}) الى (500 cm^{-1}) (9). وكذلك يمكن معرفة ان المركبات قد ظهرت من قمم الامتصاص وهي تقع ضمن مدى الترددات اقل من (620 cm^{-1}) لكل المواد وتتفق مع نتائجها التي حصل عليها حيث اثبت انها اقل (1000 cm^{-1}) وانها مواد غير عضوية (10) كما في الشكل (3).

2 - تحولات فوريير لطيف الاشعة تحت الحمراء
Fourier transforms a nice infrared (FTIR)
ان قياس تحولات فوريير لطيف الاشعة تحت الحمراء يعتبر من القياسات التي لها اهمية كبيرة لمعرفة تشكل الاطوار والتحقق منها وان تشكل الطور المغزلي لمتراكبات النانوية لذلك تم اجراء الفحص لعينات المسحوق للمترابكات لتأكد من وجود هذا الطور للمركبات الالومينا والمحضرة بطريقة الترسيب الكيميائي والمبلدة في درجة حرارة 1300°C ولمدة 4 ساعات وضمن مدى الاعداد الموجبة (350 cm^{-1}) الى (4000) وبعد ذلك تم اجراء قياس طيف النفاذية باعتبارها دالة للعدد الموجي . انه حزم امتداد الاهتزاز انه من (220 cm^{-1}) الى (670 cm^{-1}) تمثل جميعها تعود الى حزم امتصاص لأكاسيد المعادن المتفاعلة وهذه تتفق



الشكل (3) FTIR لعينتين للالومينا المحضرة بدرجة حرارة 1300C⁰.

3- القياسات العزلية

Eccentric measurements

تمت دراسة الخواص العزلية باستخدام جهاز (LCR-meter) للكهربائية المتناوبة لمراكبات الالومينا للعينتين المحضرة وبطريقة الترسيب الكيميائي المشترك والمبلدة عند درجة حرارة 1300C⁰ على شكل قرص صلب، وقد تم قياس الخواص الكهربائية المتناوبة باعتبارها دالة تعتمد على تردد المجال الكهربائي وللترددات ضمن مدى (50Hz) الى (1MHz) عند درجة حرارة الغرفة حيث نضع هذا القرص الصلب ذو حجم معين في خلية القياس والذي يتم ربطه بجهاز الحاسوب وتعطي البيانات القياس للخواص الكهربائية المتناوبة والتي تعتبر دالة للتردد في درجة حرارة الغرفة، ومن خلال دراسة المادة التي سوف يتم تسليط عليها

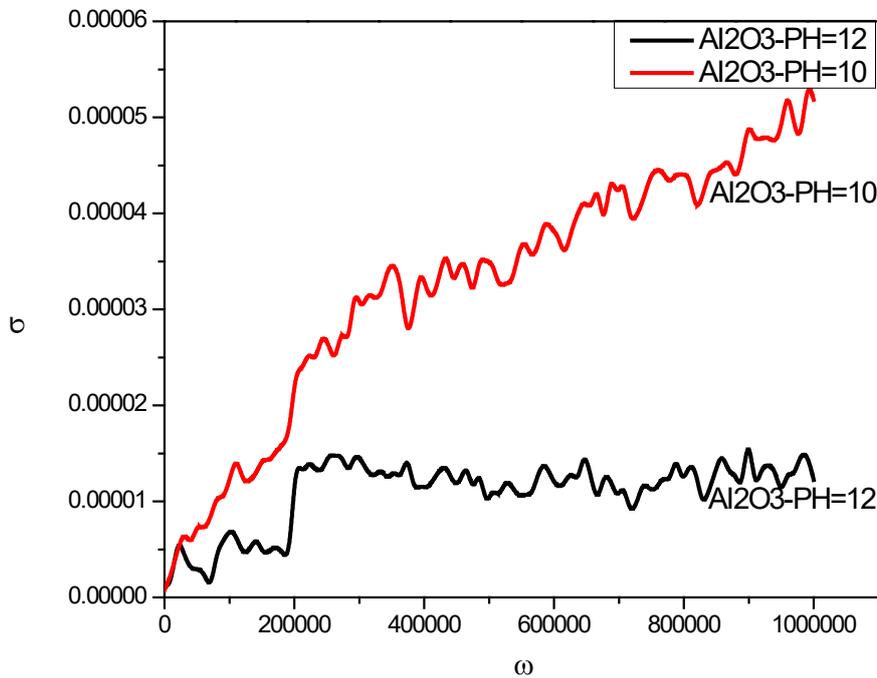
واظهرت النتائج القياس ان حزم الامتصاص تحت مدى ال (1000cm⁻¹) هي تدل على اكاسيد المعادن، وان عدم وجود أي حزمة امتصاص لمجموعة الكربوكسيل ولجميع العينات وهذا يدل لا يوجد غير اوكسيدات المعادن وان الحرارة العالية قد ادت الى تصفية المواد من جميع الشوائب والكربونات والهيدروكسيدات وبقيت المعادن فقط (11).

والاعداد الموجية المحصورة ضمن مدى (453cm⁻¹) الى (521cm⁻¹) هي تعود الاعداد الموجية الواطئة التابعة (Al-O) والاعداد (675cm⁻¹) الى (724cm⁻¹) تعود الى (AlO₄) وهو التركيب البلوري السطوح وهي تحقق حزم التشكل للأواصر والنتيجة تتفق مع (Dash) وآخرون (12).

تكون علاقة التوصيلية مع التردد غير محسوسة وتبقى المادة عازلة .

اما في دالة العزل ان الجزء الحقيقي الذي يتمثل بثابت العزل الكهربائي الذي يوسع من قدرة المواد في تخزين الطاقة الكهربائية، واما الجزء الثاني الذي يمثل خسارة الطاقة وتكون على شكل حرارة .

مجال كهربائي خارجي وحيث يتفاعل المجال مع العازل وهذا المجال يتفاعل مع ثنائيات الاقطاب في المواد والتي تعمل على توضيح كيفية تحرك الشحنة خلال المادة العازلة، وبهذا يقودنا الى دراسة قياسات الخواص العزلية كدالة للتردد والذي له علاقة قوية مع تركيب الجزيئات حيث ان مركبة العزل الكهربائي (13) وان علاقة التردد مع توصيلية كما في الشكل (4)



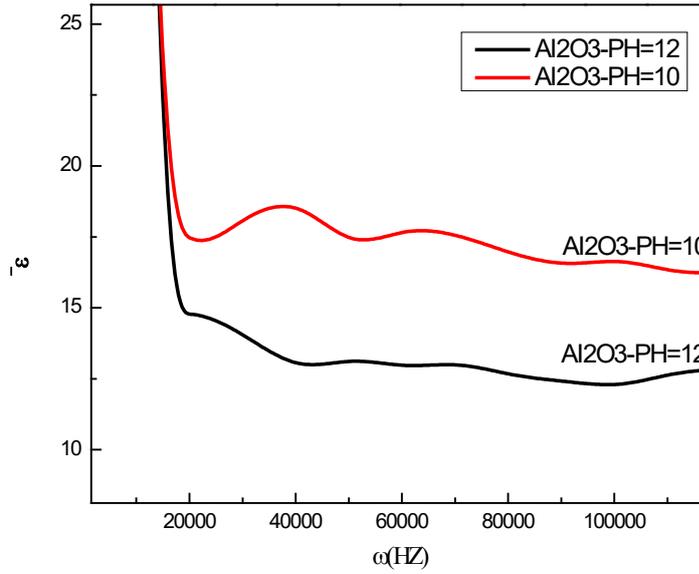
الشكل (4) التوصيلية الكهربائية وعلاقتها مع التردد w (HZ) لمركبات -الالومينا المحضرة عند درجة حرارة 1300 C⁰.

عليها تتفق النتائج التي حصل عليها (Ahmed) في السلوك العزل الكهربائي (13)، وان التغير الحاصل في سلوك ثابت العزل الكهربائي بالترددات الواطئة جدا للنماذج المحضرة يكون بسبب ظهور اكير قيمة ثابت عزل عند اوطى تردد وهذا يكون بسبب الاستقطاب الشحنة الفراغية او الاستقطاب الايوني وهذه النتيجة تتفق مع (S.Kurien) (14).

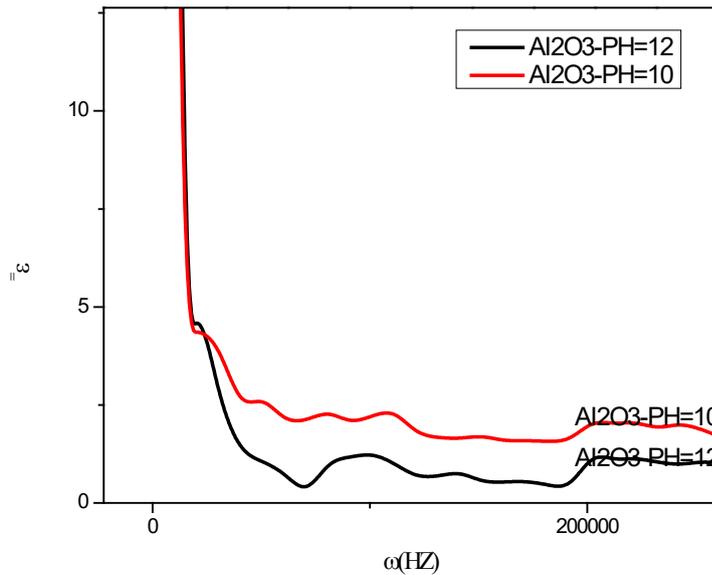
اما بالنسبة إلى ثابت العزل الكهربائي الخيالي (-E) فهو مرتبط بثابت العزل الكهربائي الحقيقي (-E) حيث انه يسلك نفس السلوك و ان اعلى قيمة ثابت

وان اختلاف المعالم لقياسات التوصيلية المتناوبة التي تم مناقشتها في الاشكال المختلفة والتي يظهر من خلالها ان الزيادة الحاصلة في التردد يصاحبها نقصان في قيمة ثابت العزل الكهربائي . ولكن عند الترددات العالية جدا فان ثابت العزل الكهربائي لا يعتمد على التردد، وهذا يعني ان عزوم الثنائيات يتبع المجال الكهربائي عند الترددات المنخفضة، حيث الترددات العالية المجال الكهربائي لا يغير من اتجاه الايونات فيها وفضلاً عن ذلك ان عدم حصول تفاعل يؤدي الى تبادل الايونات بالالكترونات وهذه النتائج التي حصلنا

عزل عند اوطئ تردد، ولذلك ان زيادة التردد الى اكبر قيمة له يصبح قيمة ثابت العزل الكهربائي غير معتمد على التردد، وان عملية سلوك العزل الكهربائي الحقيقي والخيالي يؤدي الى تطبيقات عديدة في الاجهزة الالكترونية والتي تتطلب سعة عالية عند الترددات الواطئة جداً، وان الشكلين (5) و(6) وبما ان غير معتمد على التردد (w (HZ) العزل الحقيقي والخيالي يسلكان نفي السلوك .



الشكل (5) تغير قيمة ثابت العزل الكهربائي الحقيقي (ϵ') مع التردد (w (HZ) لمركبات - الالومينا والمحضرة عند درجة حرارة (1300 C°).



الشكل (6) تغير قيمة ثابت العزل الكهربائي الخيالي (ϵ'') مع التردد (w (HZ) لمركبات - الالومينا والمحضرة عند درجة حرارة (1300 C°).

المصادر References

1. Rajum. Belekar, p.s.sawadh & R. K. mahdulesynthesis and structural properties of Al₂O₃-ZrO₂” nano composite” Research in Engineering & Technology ISSN(E): 2321- 8843; ISSN(P): 2347-4599 Vol. 2, Issue 3, Mar, 145-152(2014).
2. Worral .W, (1982), Ceramic Raw Materials, 2nd edition, Pergamon Press, Oxford, New York,.
3. Kang. H, Park. S, Son. M, Lee. H, and Park. H,(2000),Preparation of Alumina from Kaolin,Brit.Ceram.Trans.,Vol.99,36 .
4. Kobayashi. Y, Ohira. O, Satoh. T, and Kato. E, (1994) Effect of Alumina on the Sintering and bending strength of the porcelain bodies in Alumina –feldspar-kaolin system, Brit .Ceram .Trans. ,Vol. 93,p. 49-52 .
5. Adams. A, (1967). proved: Reynolds ceramic grade aluminas substantially ,Ceram. Industry ,Vol. 88,p. 70-71 .
6. Colm,I.T.Mc, 1985,Ceramic Science for Materials Technologists ,Leonard Hill .
- 7 . Doore. E,(1984),”Alumina “USA .
8. D. Sarkar a,* , S. Adak a, N.K. Mitra b” Preparation and characterization of an Al₂O₃- ZrO₂nanocomposite, Part I: Powder synthesis and transformation behavior during fracture”(2006) .
9. Ramzan Muhammad¹, Bimlesh Kumar², Atul Chaskar³”” Synthesis, Characterization and Mechanical Properties of Alumina-Zirconia Nano -composite Particles” PP 40-46 May - June 2017.

الاستنتاجات Conclusions

- نستنتج من تحضير المركبات الالومينا بنسبة وزنية ما يلي :
1. نستنتج من فحص حيود الاشعة السينية ظهور طور الفا - الالومينا في المركبات العينين المحضرتان في اس الهيدروجيني 12, 10 ph وان افضل العينة هي ذات 10 ph بسبب تجانسها وتكون ذات احجام بلورية نانوية .
 2. أما فحص الاشعة تحت الحمراء تكشف ان قمم الامتصاص تكون ضمن الاعداد الاقل من 1000 cm^{-1} وهذا يدل على انها تعود الى معادن المواد المتفاعلة وانها مواد غير عضوية .
 3. اما القياسات العزلية وجد ان القيمة العظمى لثابت العزل الكهربائي عند اوطاً تردد . فيتناقص قيمة ثابت العزل الكهربائي مع الزيادة في الترددات الواطئة وذلك بسبب الاستقطاب الايوني أو الاستقطاب الفراغي، واما عند الترددات العالية فان ثابت العزل الكهربائي لا يعتمد على التردد، اي انه العزوم ثنائيات الاقطاب تتبع المجال الكهربائي عند الترددات الواطئة اما بالنسبة للثابت العزل الكهربائي الخيالي فانه يسلك نفس سلوك ثابت العزل الحقيقي وان هذه المواد تكون غير موصلة .

14. S. Kurien, S. Sebastian, J. Mathew & K. C. George, "Structural and electrical properties of nanosize magnesium aluminate", Indian Journal of Pure & Applied Physics, Vol. 42, PP. (926-936), (2004) .
- 15- Bin Lia,b , Guangqi Lic , Haiyang CHENd , Junhong CHENa,* , Xinmei HOUb,* , Yong Lia "Physical and mechanical properties of hot-press sintering ternary CM2A8 (CaMg2Al16O27) and C2M2A14 (Ca2Mg2Al28O46) ceramics"Journal of Advanced Ceramics, 7(3): 229-236 ISSN 2226-4108 [https://doi.org/10.1007/s40145-018-0274-4-\(2018\)](https://doi.org/10.1007/s40145-018-0274-4-(2018))
10. DOMINIKA MADEJ, and JACEK SZCZERBA "PREPARATION OF Al2O3-CaAl12O19-ZrO2 COMPOSITE CERAMIC MATERIAL BY THE HYDRATION AND SINTERING OF Ca7ZrAl6O18-REACTIVE ALUMINA MIXTURE" Ceramics-Silikáty 60 (2), 27-33 -2016 .
11. M.Y. Nassar, I.S. Ahmed, and I. Samir," A novel synthetic route for magnesium aluminate (MgAl2O4) nanoparticles using sol-gel auto combustion method and their photocatalytic properties, Spectrochim", Acta, Vol. 131, PP. (329-334), (2014) .
12. S. Dash, R.K. Sahoo, A. Das, S. Bajpai, D. Debasish, and S.K. Singh, "Synthesis of MgAl2O4 spinel by thermal plasma and its synergetic structural study", J. Alloy. Compd. Vol. 726, PP. (1186-1194) (2017) .
13. J.Ahmed, S.H.Bukhari, M.Q.Awan, M.E.Mazhar, and A.R.Makhdoom, "Dielectric and impedance spectroscopy of K+-doped MgAl2O4 nanoparticles", International Journal of Modern Physics B, Vol.32, PP(1-13), (2018) .