

تحضير وتشخيص متراكبات NiAl₂O₄/ ,MoO₃ MoO₃ , NiA- 1204 النانوية و دراسة خصائصها التركيبية و الكهربائية والمغناطيسية

تحسين حسين مبارك و كريم هنيكش حسن و شياء ابراهيم عادل

جامعة ديالى - كلية العلوم - قسم الفيزياء

الخلاصة

تم تحضير مركب (MoO₃) المكلسن عند (500 درجة مئوية) بطريقة المحلول الغروي (Sol – gel) والمترابك (Ni- Al₂O₄) الملبدة تليداً عند (1300 درجة مئوية) والمترابك (MoO₃ / NiAl₂O₄) بتأثير درجات الحرارة المختلفة و المكلسن عند (درجة مئوية 450 -درجة مئوية 550 -درجة مئوية 650) بالطريقة السيراميكية . يبين نتائج حيود الاشعة السينية بالنسبة لأوكسيد الموليبيديوم المحضر ذو حجم حبيبي مقداره (47.29nm)، اما بالنسبة للمترابك نيكل الومينا فقد وجد ان قيم الحجم الحبيبي مقداره (16.91 nm)، وبالنسبة للمترابك (MoO₃ / NiAl₂O₄) ان في درجة الحرارة (650 درجة مئوية) يقل الحجم الحبيبي وهذا يؤدي الى اختفاء الطور MoO₃ وظهور الطور الجديد (Al₂(MoO₄))₃، وتبين من نتائج فحوصات المجهر الالكتروني الماسح الباعث للمجال (FESEM) للمترابك (MoO₃ / NiAl₂O₄) ان قيم الحجم الحبيبي تزداد بظهور الاطوار الجديدة، وتبين من نتائج فحوصات (VSM) ان جميع المساحيق لها حلقة هسترة خطية تقريبا والتي تسلك سلوك البارامغناطيسية لجميع المركبات النانوية، وكذلك تبين من نتائج فحوصات العزل ظهور اعلى قمة لثابت العزل الحقيقي والخيالي عند اوطى تردد و يتناقص مع زيادة التردد عند الترددات الواطئة اما في التوصيلية المتناوبة عند الترددات العالية تزداد التوصيلة بزيادة تردد المجال الكهربائي المسلط.

الكلمات المفتاحية:- فحص الاشعة السينية ، فحص المجهر الالكتروني الماسح الباعث للمجال، فحص المغناطيسية ،فحص الكهربية

Synthesis and Characterization of (MoO₃ / NiAl₂O₄) Nanocomposites and Studying Their Structural, Electrical and Magnetic Properties

Shaima I. Adel, Tahseen H. Mubarak, Karim H. Hassan *

Department of Physics, College of Science, University of Diyala, Iraq.

Abstract

Molibdium oxide (MoO_3) was prepared by the sol-gel method. Calcined at (500 درجة مئوية). The Nickel Alumina (NiAl_2O_4) was prepared sintered at the (1300 درجة مئوية) and overlapped ($\text{MoO}_3 / \text{NiAl}_2\text{O}_4$) were observed under the effect of different calcination temperatures of (450 درجة مئوية - 650 درجة مئوية - 550 درجة مئوية) by ceramic method. X-ray diffraction results for prepared molybdenum oxide show a grain size of (47.29 nm) and for the prepared nickel aluminate compound to be (16.91 nm), and for the compound ($\text{MoO}_3 / \text{NiAl}_2\text{O}_4$) calcined at temperature of (650 درجة مئوية) seem to be decreases and this leads to the disappearance of MoO_3 phase and the emergence of the new phase ($(\text{Al}_2(\text{MoO}_4)_3)$. The results of the FESEM of ($\text{MoO}_3 / \text{NiAl}_2\text{O}_4$) showed that the particle size values increased with the appearance of new phases while the results of VSM shows that all powders have an almost linear hysterical loop that exhibits the paramagnetic behaviour of all nanocomposites. The results of dielectric tests showed the emergence of the highest peak of the real and imaginary dielectric constant, at the lowest frequency which decreases with increasing frequency at low frequencies.

Keywords: - XRD, FESEM, VSM, Dielectric measurements

المقدمة

التقليدية بدعم النikel [5]. يعتبر اوكسيد الموليبيديوم احد اهم أكاسيد الفلزات الانتقالية ويلعب دوراً مهماً في تطوير تكنولوجيا المواد حيث يمكن تحضير اكاسيد الموليبيديوم بإحجام وأشكال حبيبية مختلفة وبطرقه فيزيائية وكيميائية عديدة. يستخدم الاوكسيد في المكثفات الكهروكيميائية في الطلاء والأسلاك النانوية والألياف النانوية وكذلك في أجهزة استشعار الغازات حيث ان لها اهمية كبيرة في دراسة المخاطر الصحية المتعلقة بالغازات السامة والتي يستخدم كذلك في بطارية الليثيوم الخلايا الشمسية العضوية [6].

الجزء العملي:

تحضير اوكسيد الموليبيديوم (MoO_3)

تم تحضير اوكسيد الموليبيديوم بطريقة المحلول الغروي (Sol-gel) من خلال اذابة كمية وزنية من موليبيدات الامونيوم ($(NH_4)_6Mo_7O_{24} \cdot 4H_2O$) مقدارها (1.6g) في (15ml) من الماء المقطر وتمت الاذابة باستخدام الخلاط المغناطيسي بدرجة حرارة (درجة مئوية 65) وتركها لكي يتجانس المحلول بشكل تام ، ، وبعدها تم إضافة حامض الستريك الى المحلول وتمت الاذابة عن طريق استخدام الخلاط المغناطيسي عند درجة حرارة الغرفة ، ومن جهة اخرى تم استخدام محلول هيدروكسيد الامونيوم المخفف الذي تم تخفيفه من خلال اخذ (50ml) من الامونيا ومزجها في (50ml) من الماء المقطر ثم يضاف هيدروكسيد الامونيوم ($NH_4 OH$) بواسطة السحاحة بشكل قطرات على المحلول مع استمرار الخلط عند درجة حرارة الغرفة الى ان نحصل على محلول ذو اس الهيدروجيني ($pH = 7$)، وبعد ذلك تؤخذ المادة الناتجة وهي عبارة عن محلول وتجفف في مجفف كهربائي

المواد السيراميكية هي مواد متعددة يصعب حصرها في تعريف محدد ولكن هي مواد غير عضوية تتحمل درجات حرارة عالية مثل الأكاسيد و النيتريدات و الكاربيدات وغيرها من المواد و للمواد السيراميكية النظام التركيبي مستقر. ان اهمية الالومينا السيراميكية المدعمة تمكن في تميزها بمدى واسع في تباين العوامل المساعدة، والتي يمكن تجهيزها بكلفة منخفضة وبخصائص محددة تتضمن زيادة في المساحة السطحية فضلاً عن الموازنة الدقيقة في تشكيل سطح (حامض- قاعدة) وتقوية الخواص الميكانيكية بصورة كبيرة [1،2]. مركب نيكال الومينا $NiAl_2O_4$ هو احد اهم مركبات الالومينا، فهو ذو اهمية كبيرة في كثير من التطبيقات كالمحفزات، الصبغات وكذلك في المواد المغناطيسية [2-3]. ان المكسب الذي يجذب الانتباه الى هذا المركب في التطبيقات هو امكانية تشكيل أو تكوين بخار الميثان وكذلك الميثان الجاف [4،5]، ومن الضروري في انتاج وتشكيل طبقات الطور البلوري المغزلي لهذا المركب من الالومينا التقليدية بدعم النikel. ان وجود الطبقات نيكال الومينا يحجب الكثير من التكلسات والتجمعات (التكتلات) لجسيمات النikel، والتي بدورها نتيجة تحقيق استقراراً عالياً مع عدم وجود الكربون في المجموعة، والتي تمثل احد العوائق الرئيسية في تشكيل النظام البلوري للنikel الومينا في الوقت نفسه، تتفرق جسيمات النikel الصغيرة على السطح والذي يعتبر اساسا في زيادة الفاعلية العالية للمتراب $NiAl_2O_4$ في تشكيل بخار غاز الميثان، لذلك فان $NiAl_2O_4$ اليوم يعتبر البديل الموعود الالومينا

وعند درجات حرارية مختلفة من مسحوق اوكسيد الموليبيديوم (g0.15) ومسحوق نيكال الومينا (g0.85)، يتم خلط المساحيق ومن ثم طحنها بواسطة مطحنة يدوية وتحويلها الى مسحوق متجانس وبعدها نقوم بنخلها باستخدام منخل بقياس (75µm) لكي يتم تجانس المادة الجافة بشكل تام . يؤخذ المسحوق ويوضع في جفنة من الالومينا معدة لتحمل درجات حرارة عالية ونلبده تليداً حرارياً في الفرن عند درجات حرارة (درجة مئوية 450 - درجة مئوية 550 - درجة مئوية 650) لمدة 3 ساعات ثم يترك داخل الفرن حتى يبرد. وان فائدة عملية الكلسنه انها تساعد على التخلص من الاطوار غير المرغوب فيها والاطوار الثانوية المتكونة والحصول على الطور النقي المطلوب. النتائج والمناقشة:

نتائج فحوصات حيود الاشعة السينية الشكل (1) يبين فحص حيود الاشعة السينية للعينة Al_2O_3 المحضرة على شكل مسحوق بدرجة الحرارة درجة مئوية 550 وأظهرت نتائج الفحص تكون طور الالومينا النقي (Al_2O_3) لظهور مجموعة من القمم عند الزوايا (37.5، 45.5، 67.0) والمقابلة للمستويات (440، 400، 311) على التوالي. عند مقارنة القمم الظاهرة مع البطاقة القياسية (JCPDS) للمركب (Al_2O_3) وجدت أنها مطابقة الى حد كبير للبطاقة المرقمة (0425-010-00) بدرجة حرارة كلسنه درجة مئوية 550، وكانت النتائج مقارنة للمعيار القياسي للمركب نانو كما الومينا بسبب تلك القمم الاكثر اتساعا. وقد تم حساب الحجم الحبيبي

$$D = \frac{K\lambda}{\beta \cos \theta}$$

باستعمال المعادلة ديبي شير

بدرجة حرارة (درجة مئوية 250) لمدة ساعة ، بعد اتمام عملية التجفيف تؤخذ المادة الناتجة وتطحن الى ان نحصل على مسحوق هيدروكسيد الموليبيديوم ،نضع هذا المسحوق في جفنه حرارية لإجراء عملية الكلسنه في فرن بدرجة حرارة (درجة مئوية 500) لمدة ساعة ونصف ثم يترك داخل الفرن حتى تبرد، بعد انتهاء العملية يتكون مسحوق اوكسيد الموليبيديوم النانوي ان الفائدة من الكلسنه يساعد على التخلص من البقايا كالماء وثنائي اوكسيد الكاربون الناتج من الاحتراق.

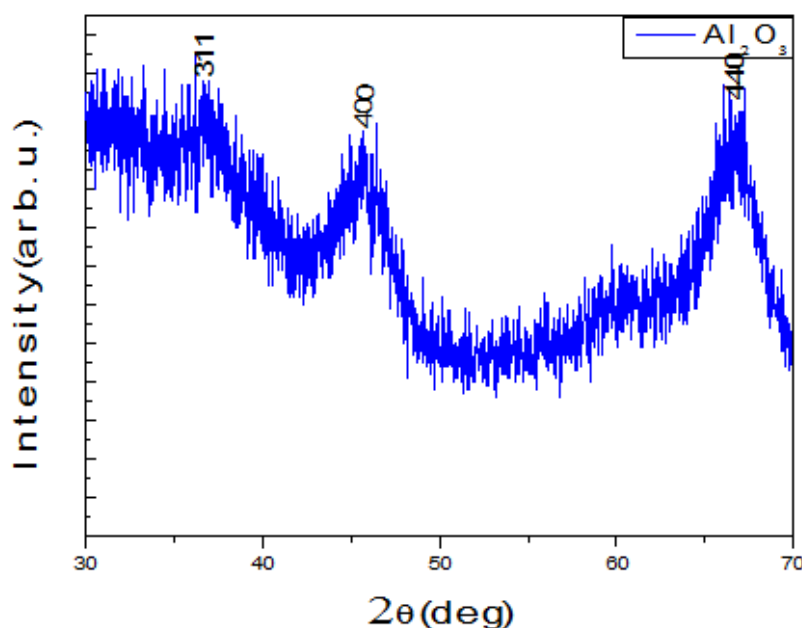
تحضير مترابك نيكال الومينا ($NiAl_2O_4$)

تم تحضير المترابك ($NiAl_2O_4$) بالطريقة السيراميكية وبنسب مختلفة من اوكسيد النيكال و الالومينا كما موضح في الجدول (2-3) ، يتم خلط المساحيق ومن ثم طحنها بواسطة مطحنة يدوية وتحويلها الى مسحوق متجانس وبعدها نقوم بنخلها باستخدام منخل بقياس (75µm) لكي يتم تجانس المادة الجافة بشكل تام. يؤخذ المسحوق ويوضع في جفنة من الالومينا معدة لتحمل درجات حرارة عالية ونلبده تليداً حرارياً في الفرن الكهربائي عند درجة حرارة (درجة مئوية 1300) لمدة 4 ساعات ثم يترك داخل الفرن حتى يبرد. وان فائدة عملية التليد تساعد على التخلص من الاطوار غير المرغوب فيها والاطوار الثانوية المتكونة والحصول على الطور النقي المطلوب.

تحضير مترابك ($MoO_3/NiAl_2O_4$)

تم تحضير مترابك ($MoO_3/NiAl_2O_4$) بتأثير درجات حرارة مختلفة من المواد الداخلة في التفاعل الكيميائي تم اختيار النسب الوزنية وحسب الصيغة ($(MoO_3)_X (NiAl_2O_4)_{1-X}$)، تم تحضير المترابك ($NiAl_2O_4/MoO_3$) بالطريقة السيراميكية

للينة Al_2O_3 المحضرة من خلال استخدام اقصى عرض عند منتصف الشدة (FWHM) للقمم التي تمتلك اعلى شدة وجد ان المسحوق الناتج يمتلك حجم حبيبي بالمدى النانوي وقد ادرجت النتائج في الجدول (1)، وهذه النتائج تتفق مع النتائج التي حصل عليها (Mohamed) وآخرون [7] والشكل (1) يوضح طيف حيود الاشعة السينية للينة كما الومينا ومعاملات ميلر لها.



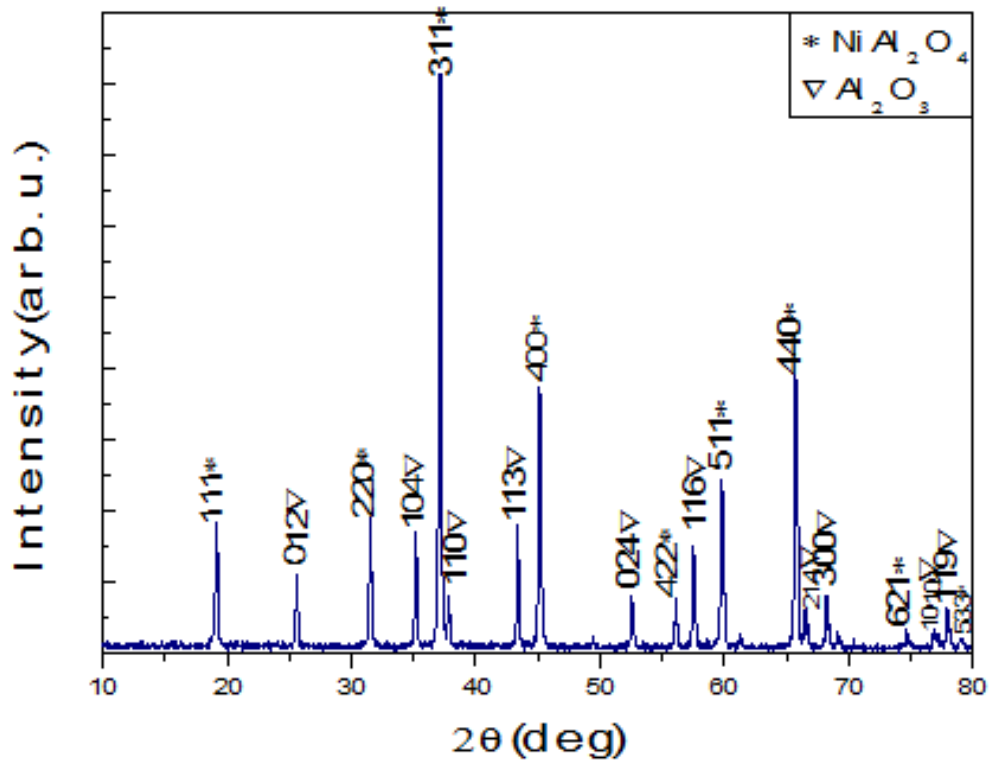
الشكل (1) طيف حيود الاشعة السينية للألومينا ومعاملات ميلر لها.

الجدول (1) قيم المعلومات التركيبية للألومينا المحضرة النقي.

Sample	Hkl	$2\theta(\text{deg})$	$d_{hkl}(\text{\AA})$	FWHM(deg)	Lattice Constant($a(\text{\AA})$)	D(nm)	Cell volume $V_{\text{cell}}(\text{\AA}^3)$
Al_2O_3	440	67.02	1.39022	1.78000	7.892	5.933	491.646

في الشكل (2) تم التشخيص بتقنية حيود الاشعة السينية للمترابكات المحضرة بالطريقة السيراميكية للألومينا (g0.75) المشوبة بأوكسيد النيكل (0.25g) والمبلدة عند درجة حرارة التليد 1300 درجة مئوية نلاحظ ظهور طورين في المادة المشخصة وهما الطور (Al_2O_3) والطور $(\text{NiAl}_2\text{O}_4)$ اذ ان الزاوية (19.1) هي للطور $(\text{NiAl}_2\text{O}_4)$ والمقابلة للمستوي (111) والزاوية (25.6) تابعة للطور (Al_2O_3) . وان مواقع القمم للينة تتطابق مع البطاقتين القياسيتين (ICDD) والمرقمتين $(0339-010-00)$ و $(0173-010-00)$ وهذا النتيجة تعتبر غير نقية لوجود قمة عند الزاوية (25.6) والتي لا تعود الى المسحوق المطلوب، لهذا إن ظهور القمة عند الزاوية (25.6) تعتبر وجود مادة شائبة لأن ظهور هذه القمة قد تدل على حدوث تبلور ضعيف في المسحوق وهذه النتيجة تتفق مع النتائج التي حصل عليها (Zangouei) وآخرون [8] كما موضح في الشكل (2). كذلك نلاحظ

عدم ظهور الطور NiO بالرغم من وجوده في اصل المواد المتفاعلة وذلك بسبب انتشار جسيمات (NiO) في التركيب المتكون للطور (NiAl₂O₄) او يشترك فيه اثناء التشكيل او من المحتمل ان يُفقد النوع (NiO) لذلك لا تظهر لنا اي قمة تابعة له. والدليل على وجوده ضمن المادة الناتجة هو تحرك زوايا الحيود الى الاقل و كذلك ظهور القمة عند المستوي (440) وقد ادرجت النتائج في الجدول (2).



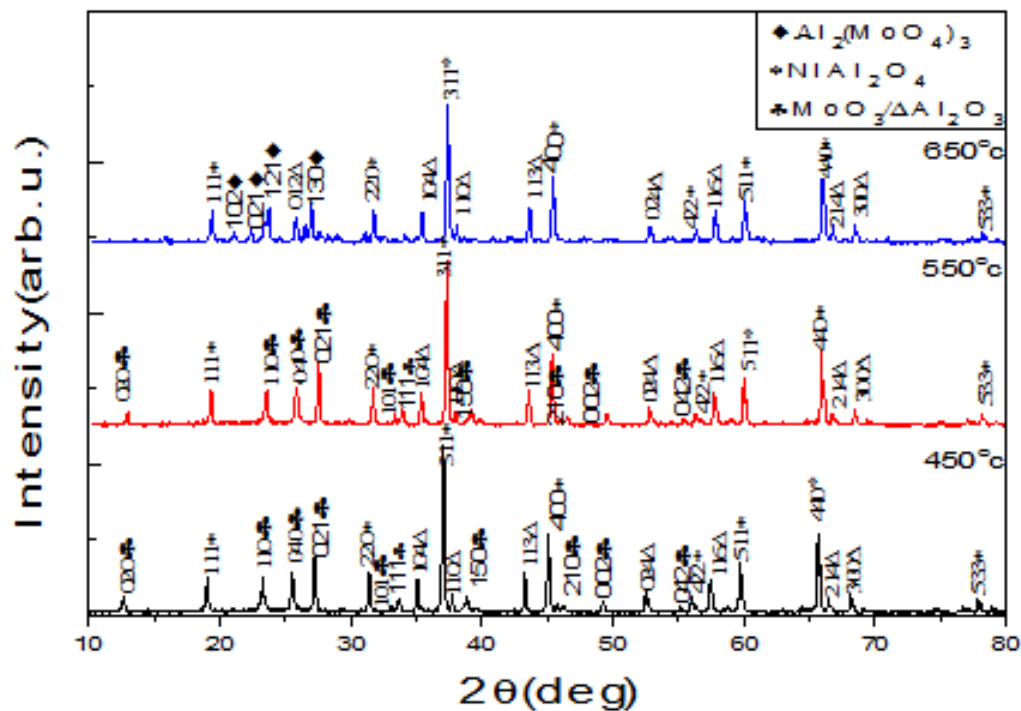
الشكل (2) طيف حيود الاشعة السينية للمترابك (NiAl₂O₄) ومعاملات ميلر لها.

الجدول (2) قيم المعاملات التركيبية عند الاتجاه (440) للمترابك النيكل الألومينا

Sample	Hkl	$2\theta(\text{deg})$	$d_{hkl}(\text{\AA})$	FWHM(deg)	Lattice Constant (a $\text{\AA}$)	D(nm)	Cell volume $V_{\text{cell}} (\text{\AA}^3)$
NiAl ₂ O ₄	440	65.7425	1.41925	0.18620	8.028	53.064	517.394

في الشكل (3) أظهرت نتائج الفحص بتقنية حيود الاشعة السينية للعينة المحضرة بالطريقة السيراميكية ثلاثة اطوار للمساحيق المحضرة عند كلسنة المسحوق ب درجة الحرارة درجة مئوية (550, 450) إذ ظهر الطور (MoO₃) والطور (Al₂O₃) والطور (NiAl₂O₄)، وإن ظهور القمم عند الزوايا (33.7, 38.9, 46.2, 49.2, 56.0) و إن ظهور القمم عند الزوايا (110, 040, 021, 101, 111, 150, 210, 002, 042) البلورية (12.7, 23.3, 25.6, 27.3, 33.1, 33.7, 38.9, 46.2, 49.2, 56.0) و المقابلة للمستويات البلورية (12.7, 23.3, 25.6, 27.3, 33.1,

- (020, 214, 300) على التوالي؛ تدل على تكون الطور (MoO_3). وظهور القمم عند الزوايا (52.5, 57.4, 66.4, 68.1, 35.1, 37.7, 43.3, 214, 300) والمقابلة للمستويات (012, 104, 110, 113, 024, 116, 59.8, 65.7, 77.9)، وظهور القمم عند الزوايا (19.1, 30.8, 37.1, 45.1, 56.0, 111, 220, 311, 400, 422, 511, 440, 533) على التوالي؛ تكون الطور (Al_2O_3). وظهور القمم للطور (NiAl_2O_4) عند الزوايا (31.4, 37.0, 45.0, 59.7, 66.5, 77.9) والمقابلة للمستويات (19.1, 311, 400, 511, 440, 533) على التوالي؛ تدل على تكون الطور (NiAl_2O_4). ان مواقع القمم للعينة تتطابق مع البطاقات القياسية (ICDD) والمركمة (0034-0000) و (020-0000) و (0173-010-00) و (0339-0010-00). في درجات الحرارة □ (450، 550) كانت هناك زيادة في الحجم الحبيبي وذلك بسبب زيادة التبلور في الطور (NiAl_2O_4)، بينما عند درجة حرارة □ (650) نلاحظ نقصان في الحجم الحبيبي ويعود السبب في ذلك الى نشوء وتكون طور جديد وهو $[\text{Al}_2(\text{MoO}_4)_3]$ ؛ أي إنه حصلت عملية إستبدالية في المواقع الايونية بين الموليبيديوم الموجود في أكسيد الموليبيديوم والنيكل الموجود في الطور (NiAl_2O_4) مما يؤدي الى نقصان في نسبة الطور (NiAl_2O_4) ضمن المواد الناتجة وبالتالي فإن هذا يقود الى نقصان في الحجم الحبيبي. وهذا يتفق مع النتائج التي حصل عليها [10] (Meng)، كما موضح في الشكل (3) طيف حيود الاشعة السينية للمترابك ($\text{MoO}_3 / \text{NiAl}_2\text{O}_4$)، والجدول (3) قيم المعلومات التركيبية عند الاتجاه (311) للمترابك ($\text{MoO}_3 / \text{NiAl}_2\text{O}_4$). (020, 214, 300) على التوالي؛ تدل على تكون الطور (MoO_3). وظهور القمم عند الزوايا (52.5, 57.4, 66.4, 68.1, 35.1, 37.7, 43.3, 214, 300) والمقابلة للمستويات (012, 104, 110, 113, 024, 116, 59.8, 65.7, 77.9)، وظهور القمم عند الزوايا (19.1, 311, 400, 511, 440, 533) على التوالي؛ تدل على تكون الطور (NiAl_2O_4). ان مواقع القمم للعينة تتطابق مع البطاقات القياسية (ICDD) والمركمة (0508-005-00) و (0173-010-00) و (0339-010-00) ان الزيادة الحاصلة في درجة الحرارة تؤدي الى زيادة في شدة القمم وهذا يصاحبه نقصان في قيمة [FWHM] وهذا يعتبر دليل على زيادة التبلور ونقصان العيوب البلورية وكذلك زيادة درجة الحرارة تسبب في زيادة الحجم الحبيبي وإن الزيادة الحاصلة في القمم من الممكن ان تكون نتيجة عدم تداخل المركب (NiAl_2O_4) في المستويات البلورية داخل شبكية (MoO_3) أو العكس وبما انه لا وجود للتداخل بين شبائك هذه المواد فقد يؤدي الى زيادة في شدة القمم وهذا يتفق مع النتائج التي حصل عليها [9] (Widiyati). فضلاً عن ذلك نلاحظ اختفاء MoO_3 عند كلسنة المسحوق بدرجة الحرارة (درجة مئوية 650) وظهور طور جديد وهو الطور $[\text{Al}_2(\text{MoO}_4)_3]$ وكذلك نلاحظ أيضاً تكون الطور (Al_2O_3) والطور (NiAl_2O_4)، اذ انه ظهرت القمم للطور $[\text{Al}_2(\text{MoO}_4)_3]$ عند الزوايا (30.8, 26.7, 23.5, 22.2, 20.9) والمقابلة للمستويات (130, 121, 121, 102) على التوالي. وظهور القمم عند الزوايا (43.3, 52.5, 57.5, 66.5, 68.2)



الشكل (٣) طيف حيود الأشعة السينية للمركبات $(\text{MoO}_3 / \text{NiAl}_2\text{O}_4)$.

الجدول (٣) قيم المعلومات التركيبية عند الاتجاه (٣١١) للمركبات $(\text{MoO}_3 / \text{NiAl}_2\text{O}_4)$.

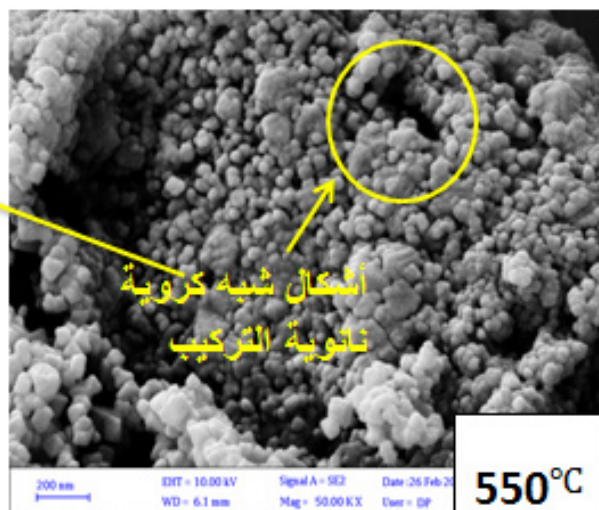
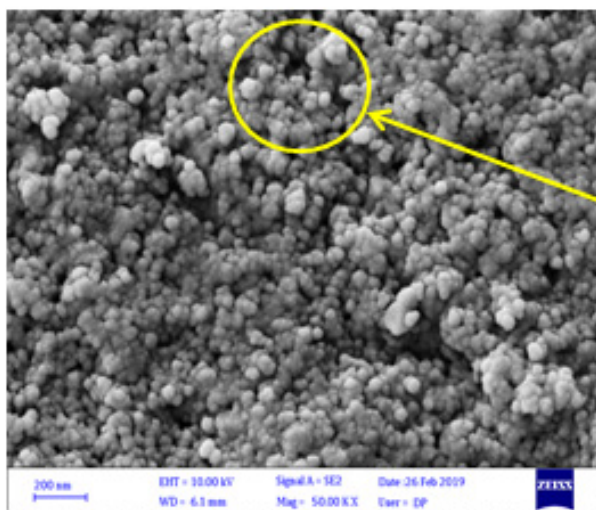
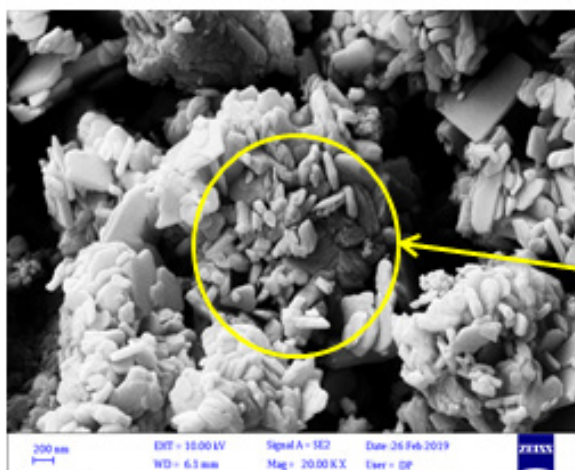
Sample	(450°C)	(550°C)	(650°C)
Hkl	٣١١	٣١١	٣١١
$2\theta(\text{deg})$	٣٧.٠٦٩٨	٣٧.٠٧٤٦	٣٧.١٣٤٨
$d_{\text{hkl}}(\text{\AA})$	٢.٤٢٣٢٢	٢.٤٢٢٩٢	٢.٤١٩١٣
FWHM (deg)	٠.١٨٨٣٠	٠.١٧٢٧٠	٠.١٩٦٨٠
Lattice constant (a (Å))	٨.٠٣٥	٨.٠٣٥	٨.٠٢٣
D (nm)	٤٦.٥٤٨	٥٠.٧٢٥	٤٤.٥٢١
Cell volume $V_{\text{Cell}}(\text{\AA}^3)$	٥١٨.٩٤٣	٥١٨.٩٢٦	٥١٦.٤٩٥

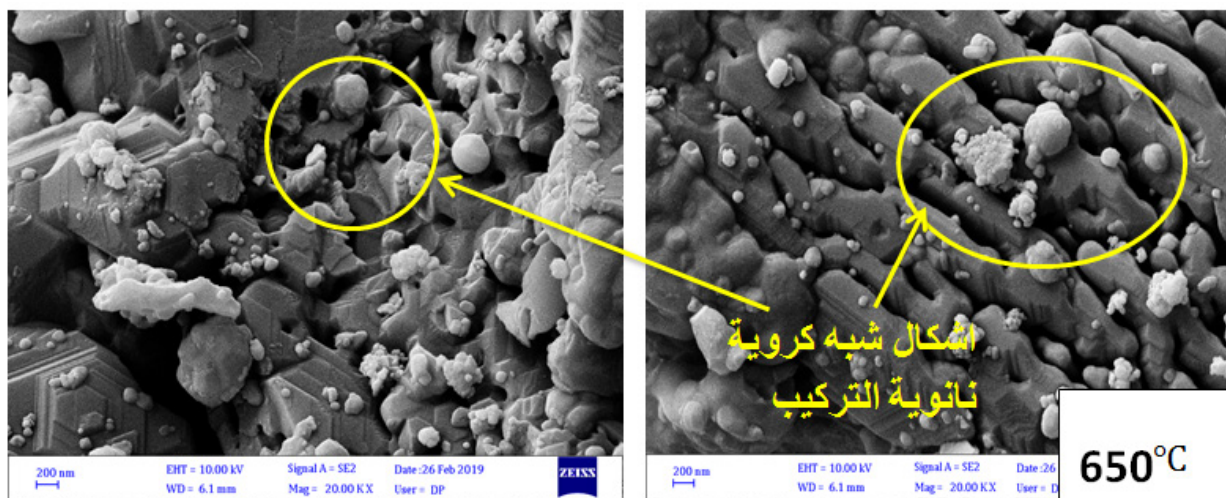
(درجة مئوية 450) نلاحظ من الشكل أن الجسيمات مكونة على أشكال قضبان سداسية نانوية التركيب وتكون متجانسة تقريبا، وكذلك نلاحظ ان سطحه يكون على هيئة طبقات نانوية التركيب غير منتظمة الشكل وهذا يتفق مع النتائج ((Chithambararaj [11]. وكما تبين صور FESEM)) المتحصل عليها

2- نتائج فحوصات المجهر الالكتروني الماسح الباعث للمجال في الشكل (4) الذي يوضح نتائج فحص المجهر الالكتروني الماسح الباعث للمجال للمركبات MoO_3 (NiAl_2O_4) والمحصرة و المكلسنة بدرجات حرارة مختلفة كما تبين في صور FE-SEM)) عند درجة الحرارة

للمترابك ($\text{MoO}_3 / \text{NiAl}_2\text{O}_4$) عند درجة الحرارة (درجة مئوية 550) أن جسيمات هذه العينة ظهرت بشكل متجانس للغاية وانها شبه كروية نانوية التركيب، وكذلك تكوّن تكتلات غير منتظمة الشكل وهذا يتفق مع النتائج التي حصل عليها [12] [Zaki]. أما صور (FE-SEM) المتحصل عليها عند درجة الحرارة (درجة مئوية 650) نلاحظ تشكيل جسيمات نانوية او جسيمات متناهية الصغر مع وجود الطور ($3\text{Al}_2(\text{MoO}_4)$)، فضلاً عن أنه يحتوي على فراغات وتشكيلات مسامية، اي ان مسحوق (MoO_3) له مسامية محددة اكبر من مسحوق (Al_2O_3) لان كثافة

المسحوق (Al_2O_3) (4.05 g/cm^3) وكثافة المسحوق (MoO_3) (4.69 g/cm^3) وتكون الجسيمات الناتجة بأشكال شبه كروية نانوية التركيب مع وجود تشكيل للجسيمات غير منتظم الشكل وهذا يتفق مع النتائج [13] [Liang]. وقد تم حساب معدل الحجم الجيبي (Average Grain Size) للمترابك المحضر باستعمال برنامج (Image-J, الاصدار 1.47) وللصورة ذات التكبير ($\text{KX}50.0$) للعينة وقد أُدرجت في الجدول (4)، وان هذه النتائج تتفق مع نتائج الحيود الاشعة السينية (XRD) المتضمنة حساب الحجم الجيبي.

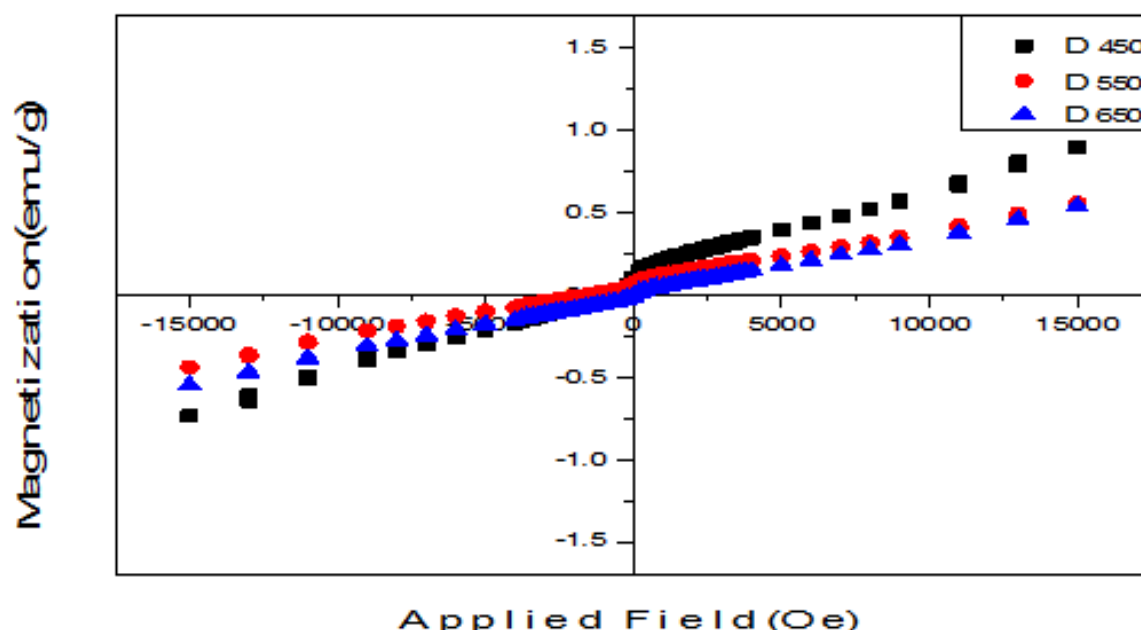




الشكل (4) صور (FESEM) للمترابكات (NiAl ₂ O ₄ / MoO ₃) المحضرة والمكلسنة بدرجات حرارة مختلفة.			
الجدول (4) قيم الحجم الحبيبي للمترابكات (NiAl ₂ O ₄ / MoO ₃) المحضرة والمكلسنة بدرجات حرارة مختلفة.			
Sample Calcined at	450 درجة مئوية	550 درجة مئوية	650 درجة مئوية
Average Grain Size(nm)	106.038	109.230	96.510

3 - القياسات المغناطيسية

ان من اهم الخصائص المغناطيسية لأية مادة مغناطيسية هي العلاقة بين كثافة الفيض المغناطيسي (B) وشدة المجال المغناطيسي المسلط (H) ويسمى بحلقة المهسترة (B-H Loop). وتعرّف حلقة المهسترة بمقياس الطاقة المقفودة لوحدة الحجم لكل دورة تمغنط واحدة. تم تحديد الخواص المغناطيسية للجسيمات النانوية للمترابك (MoO₃ / NiAl₂O₄) عند درجة حرارة الغرفة عن طريق المغنطة للنماذج المتذبذبة (VSM) مع المجال المغناطيسي المطبق يتراوح من (15000+ الى 15000-) ويرمز لها (Oe)، يتم الحصول على قيم مغنطة التشبع (Ms) كما موضح في الشكل (5) للمترابك (NiAl₂O₄ / MoO₃) والمكلسنة بدرجات حرارة مختلفة 650 درجة مئوية، 550 درجة مئوية، 450 درجة مئوية)، تم اجراء اختبارات VSM في درجة الحرارة الغرفة وأظهرت نتائج فحص جميع المساحيق التسعة حلقة هسترة خطية تقريبا إذ أنها تسلك سلوك المواد البارامغناطيسية لجميع المركبات النانوية لان زمن الاسترخاء يساوي الزمن اللازم للاستقطاب عند زيادة كمية الالومينا وتقليل كمية النيكل في المركبات النانوية ينقص مغنطة التشبع المغناطيسي (Ms) من (0.8893 emu/g) الى (0.5476) وهذا ناتج عن نقصان حجم الحبيبات، وكما مبين في الجدول (5) وهذا يتفق هذه مع نتائج (([14 Nasiri].



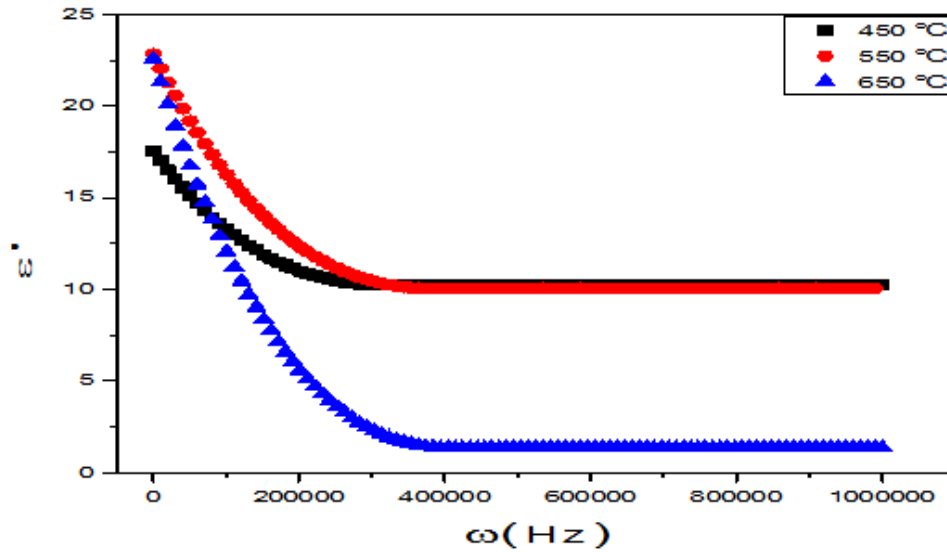
الشكل (5) حلقة الهسترة المغناطيسي (M-H) الخطي تقريبا للمترابكات ($\text{MoO}_3/\text{NiAl}_2\text{O}_4$) المحضرة والمكلسنة بدرجات حرارية مختلفة

الجدول (5) قيم مغنطة التشبع (M_s (emu/g) والمجال المغناطيسي المطبق للمترابكات ($\text{MoO}_3/\text{NiAl}_2\text{O}_4$) المكلسنة بدرجة حرارة مختلفة.

Sample	M_s (emu/g) 450 °C	M_s (emu/g) 550 °C	M_s (emu/g) 650 °C	Applied Field (Oe)
D	0.8893	0.5650	0.5476	15000

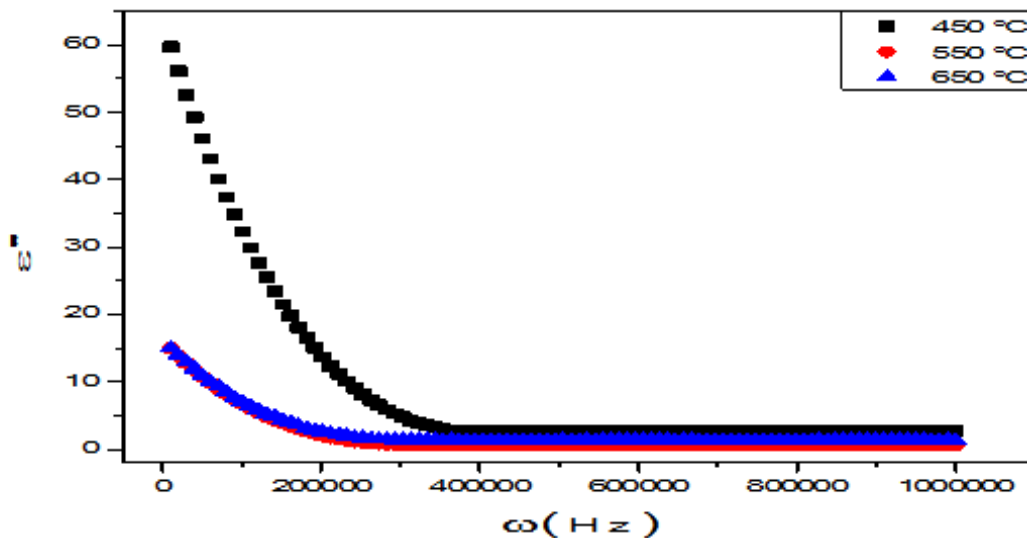
4 - القياسات العزلية

تمت دراسة الخواص العزل باستخدام جهاز (LCR meter) للكهربائية المتناوبة ولجميع العينات المحضرة والتي تم تحضيرها بالطريقة السيراميكية والمكلسنة عند درجات الحرارة (650 درجة مئوية، 550 درجة مئوية، 450 درجة مئوية) وقد تم قياس الخواص الكهربائية المتناوبة باعتبارها دالة تعتمد على تردد المجال الكهربائي المتناوب عند درجة حرارة الغرفة وضمن مدى الترددات (50 Hz-1MHz). تم حساب ثابت العزل الحقيقي باستخدام المعادلة $\epsilon'_r = \frac{Cd}{\epsilon_0 A}$ للمترابكات وقد لوحظ من خلال الشكل (6) سلوكية متماثلة للمترابكات من اصل المواد المتفاعلة وحسب الصيغة $(\text{MoO}_3)_x / (\text{NiAl}_2\text{O}_4)_{1-x}$ وبتأثير درجات الحرارة المختلفة حيث نلاحظ عند زيادة قيمة التردد للمجال الكهربائي المسلط يصاحبها نقصان في قيمة ثابت العزل الكهربائي ولكن عند الترددات العالية تبقى قيمة ثابت العزل ثابتة تقريباً هذا يشير الى ان عزوم ثنائيات الاقطاب يتبع المجال الكهربائي عند الترددات الواطئة وهذا ينتج من جميع انواع الاستقطاب أما عند الترددات العالية فنلاحظ عدم تغير في اتجاه الايونات وكذلك عدم حصول تفاعل لتبادل الالكترونات بين الايونات؛ أي إن قيمة ثابت العزل تبقى ثابتة عند الترددات العالية وهذه النتيجة تتفق مع النتائج التي حصل عليها (Ahmad) وآخرون [15].



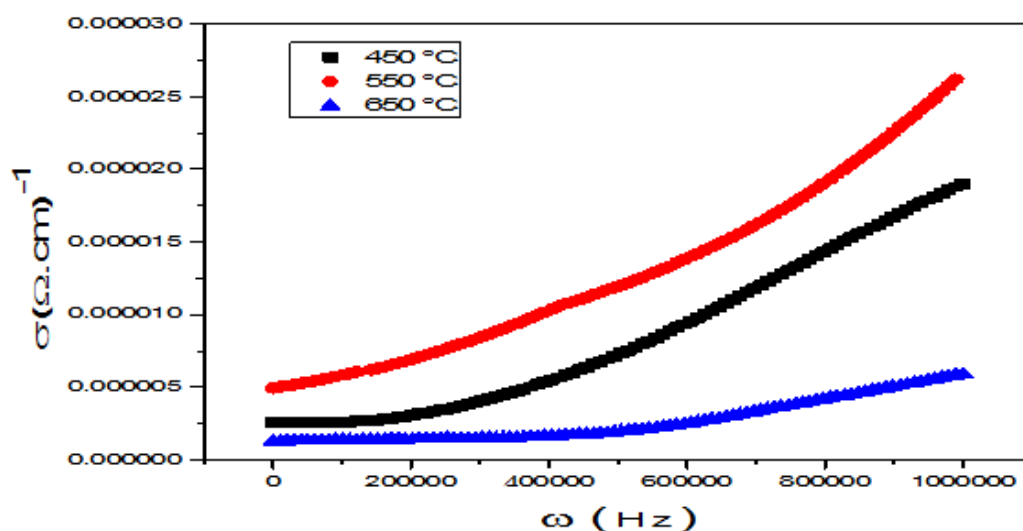
الشكل (٦) تغير قيمة ثابت العزل الحقيقي مع التردد للمترابكات $(\text{MoO}_3 / \text{NiAl}_2\text{O}_4)$ المحضرة و المكلسنة بدرجات حرارية مختلفة.

تم حساب ثابت العزل الخيالي باستخدام المعادلة $\epsilon_r' = \frac{Cd}{\epsilon_0 A}$ ضمن مدى الترددات ((50 Hz-1MHz وفي درجة حرارة الغرفة. وقد لوحظ من خلال الشكل (7) والتي حضرت من اصل المواد المتفاعلة وحسب الصيغة $(\text{MoO}_3)_X / (\text{NiAl}_2\text{O}_4)_{1-X}$) وبتأثير درجات حرارية مختلفة (650 درجة مئوية، 550 درجة مئوية، 450 درجة مئوية). إذ ان ثابت العزل الخيالي عند الترددات الواطئة يسلك نفس سلوكه ثابت العزل الحقيقي وبذلك تكون اعلى قيمة لثابت العزل عند اوطى تردد وبزيادة التردد الى حد كبير يصبح ايضا غير معتمدا على التردد. وهذا يتفق مع نتائج (Ahmad) وآخرون [15].



الشكل (٧) تغير قيمة ثابت العزل الخيالي مع التردد للمترابكات $(\text{MoO}_3 / \text{NiAl}_2\text{O}_4)$ المحضرة و المكلسنة بدرجات حرارية مختلفة.

تم حساب التوصيلية المتناوبة ($\sigma_{(a.c)}$) ضمن مدى الترددات (50 Hz-1MHz) في درجة الحرارة الغرفة. لقد تبين في الشكل (8) وجود تغير في التوصيلية الكهربائية المتناوبة مع التردد للمترابكات ذات الحجوم البلورية النانوية ولقد لوحظ انه عند الترددات العالية تزداد التوصيلة بزيادة تردد المجال الكهربائي المسلط بسبب آلية التوصيل الكهربائية من خلال التنطط لحاملات الشحنة اي بمعنى الشحنات تقفز نزولاً وصعوداً ضمن حالات القفز المعروفة ولذلك فان التوصيلية الكهربائية المتناوبة تزداد بزيادة قيمة التردد وهذا يتفق مع النتائج التي حصل عليها (Atta-Allah) وآخرون [16].



الشكل (٨) قيمة التوصيلية الكهربائية مع التردد للمترابكات ($\text{MoO}_3/\text{NiAl}_2\text{O}_4$) المحضرة و المكسنة بدرجات حرارية مختلفة.

الاستنتاجات

1 - اثبتت فحوصات (XRD) لأوكسيد الموليبيديوم المحضر ذو حجم حبيبي مقداره (47.29nm). وبالنسبة للمترابك نيكال الومينا المحضرة فقد وجد ان الاطوار المتكونة من خلال عملية التحضير هي ($\text{Al}_2\text{O}_3/\text{NiAl}_2\text{O}_4$)، ووجد ان قيم الحجم الحبيبي مقداره (16.91 nm)، وبالنسبة للمترابك ($\text{MoO}_3/\text{NiAl}_2\text{O}_4$) فقد وجد ان الاطوار المتكونة من خلال عملية التحضير بتأثير درجات الحرارة المختلفة (650 درجة مئوية، 550 درجة مئوية، 450 درجة مئوية) هي ($\text{Al}_2(\text{MoO}_4)_3/\text{NiAl}_2\text{O}_4$ ، $\text{NiAl}_2\text{O}_4/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{MoO}_3$ ، $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al}_2\text{O}_4/\text{MoO}_3$) على التوالي ووجد ان قيم الحجم الحبيبي لهذه الاطوار من المترابك محصورة بين (44.52 nm، 46.54 nm) يبين ان في درجة الحرارة (650 درجة مئوية) يقل الحجم الحبيبي وهذا يؤدي الى اختفاء الطور MoO_3 وظهور الطور الجديد ($\text{Al}_2(\text{MoO}_4)_3$).

2 - اثبتت فحوصات (FESEM) للمترابك ($\text{MoO}_3/\text{NiAl}_2\text{O}_4$) تشكل تراكيب نانوية وبأشكال مختلفة

المصادر

[1] E. Behraves, L. Hupa, T. Salmi and D.Y. Murzin, "Alumina ceramic foams as catalyst supports", Catalysis, Vol. , PP. (28-50), (2016).

[2] Y. Kathiraser, W. Thitsartarn, K. Sutthiumporn and S. Kawi, "NiAl₂O₄ on LaAlO₃-Al₂O₃: unique catalytic structure for stable CO₂ reforming of methane", J. Phys. Chem, Vol. , PP. (8120-8130), (2013).

[3] C. Jiménez-González, Z. Boukha, B. De Rivas, J.J. Delgado, M.Á. Cauqui and J.R. González-Velasco, et al., "Structural characterisation of Ni/alumina reforming catalysts activated at high temperatures", Appl. Catal. A Gen, Vol. 644, PP. (9-20), (2013).

[4] C. Sprung, B. Arstad and U. Olsbye, "Methane steam reforming over a Ni/NiAl₂O₄ model catalyst – kinetics", ChemCatChem, Vol. 6, PP. (1969-1982), (2014).

[5] I.E. Achouri, N. Abatzoglou, C. Fauteux-Lefebvre and N. Braidy, "Diesel steam reforming: comparison of two nickel aluminate catalysts prepared by wet-impregnation and co-precipitation", Catal. Today, Vol. 207, PP. (13-20), (2013).

[6] A. Ganguly, and R. George,

وهي تراكيب شبه كروية و تراكيب سداسية و تراكيب شبيهة بفطر الكما و ان قيم الحجم الحبيبي تزداد بظهور الاطوار الجديدة.

3 - اثبتت فحوصات (VSM) للمتراب (MoO₃/NiAl₂O₄) المكلسن بدرجات الحرارة المختلفة (650 درجة مئوية، 550 درجة مئوية، 450 درجة مئوية) ان زيادة كمية الالومينا وتقليل كمية النيكل في المركبات النانوية تنقص مغنطة التشبع المغناطيسي (Ms) وهذا ناتج عن نقصان حجم البلورات ، وكذلك تبين ان جميع المساحيق الثلاثة لها حلقة هسترة خطية تقريبا والتي تسلك سلوك البارامغناطيسية لجميع المركبات النانوية.

4 - اثبتت فحوصات العزل للمتراب (MoO₃/NiAl₂O₄) و المكلسن بدرجات الحرارة المختلفة (650 درجة مئوية، 550 درجة مئوية، 450 درجة مئوية). ظهور اعلى قمة لثابت العزل الحقيقي والخيالي عند اوطى تردد حيث يتناقص مع زيادة التردد عند الترددات الواطئة وهوما ينتج من استقطاب الشحنة الفراغية والاستقطاب الايوني. اما عند الترددات العالية فإن ثابت العزل لا يعتمد على التردد مما يدل على ان عزوم ثنائيات الاقطاب تتبع المجال الكهربائي عند الترددات الواطئة. في التوصيلية المتناوبة عند الترددات العالية تزداد التوصيلية بزيادة تردد مجال الكهربائي المسلط بسبب آلية التوصيل الكهربائية من خلال التنطط لحاملات الشحنة اي بمعنى الشحنات تقفز نزولاً وصعوداً ضمن حالات القفز المعروفة ولذلك فان التوصيلية الكهربائية المتناوبة تزداد بزيادة قيمة التردد.

- [12] T. Zaki, K. I. Kabel, and H. Hassan, "Preparation of high pure $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ nanoparticles at low temperatures using Pechini method," *Ceramics International*, vol. 38, no. 3, pp. 2021-2026, 2012.
- [13] E. Liang, H. Huo, J. Wang, and M. Chao, "Effect of water species on the phonon modes in orthorhombic $\text{Y}_2(\text{MoO}_4)_3$ revealed by Raman spectroscopy," *The Journal of Physical Chemistry C*, vol. 112, no. 16, pp. 6577-6581, 2008.
- [14] H. Nasiri, J. V. Khaki, and N. Shahtahmassebi, "Effect of alumina percentage on size and superparamagnetic properties of $\text{Ni-Al}_2\text{O}_3$ nanocomposite synthesized by solution combustion," *Materials & Design*, vol. 109, pp. 476-484, 2016.
- [15] I. Ahmad, "Structural and Electrical Properties of Lanthanum Substituted Spinel Ferrites," *World Applied Sciences Journal*, 22 (6), 796-801, 2013.
- [16] S.S. Atta-Allah, and M.K. Fayek, "Effect of Cu substitution on conductivity of Ni-Al ferrite", *J. Phys. Chem. Solids*, Vol. 61, PP. 1529–1534, 2000.
- "Synthesis, characterization and gas sensitivity of MoO_3 nanoparticles," *Bulletin of Materials Science*, vol. 30, no. 2, pp. 183-185, 2007.
- [7] A.-H. A. Mohamed, and H. H. Atta, "Synthesis Of Nano $\text{Ni-Mo}/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ Catalyst," *Iraqi Journal of Chemical and Petroleum Engineering*, vol. 17, no. 4, pp. 11-23, 2016.
- [8] M. Zangouei, A. Z. Moghaddam, and M. Arasteh, "The influence of Nickel loading on reducibility of $\text{NiO}/\text{Al}_2\text{O}_3$ catalysts synthesized by Sol-Gel method", *Vol. 14, PP. 97-102*, 2010 .
- [9] A. Widiyati, G. A. Guspiyani, J. Riady, R. Andreanto, S. D. Chaiunisa, and W. Widayat, "Preparation and Characterization of $\text{NiMo}/\text{Al}_2\text{O}_3$ Catalyst for Hydrocracking Processing." p. 03011.
- [10] D. Meng, B. Wang, W. Yu, W. Wang, Z. Li, and X. Ma, "Effect of citric acid on $\text{MoO}_3/\text{Al}_2\text{O}_3$ catalysts for sulfur-resistant methanation," *Catalysts*, vol. 7, no. 5, pp. 151, 2017.
- [11] A. Chithambararaj, and A. C. Bose, "Hydrothermal synthesis of hexagonal and orthorhombic MoO_3 nanoparticles," *Journal of Alloys and Compounds*, vol. 509, no. 31, pp. 8105-8110, 2011.