

NGHIÊN CỨU ẢNH HƯỞNG CỦA NHIỆT ĐỘ VÀ THỜI GIAN HÓA GIÀ ĐẾN TỔ CHỨC VÀ CƠ TÍNH HỢP KIM CuAl9Fe4

EFFECT OF TEMPERATURE AND AGING TIME ON MICROSTRUCTURE AND MECHANICAL PROPERTIES OF CuAl9Fe4 ALLOY

VŨ ANH TUẤN^{1*}, NGUYỄN HẢI YẾN¹, PHẠM NGỌC VƯƠNG²,
NGUYỄN DƯƠNG NAM³

¹Khoa Cơ sở Cơ bản, Trường Đại học Hàng hải Việt Nam

²Khoa Công trình, Trường Đại học Hàng hải Việt Nam

³Viện Cơ khí, Trường Đại học Hàng hải Việt Nam

*Email liên hệ: anhtuan.cscb@vamaru.edu.vn

Tóm tắt

Bài báo này công bố những kết quả về ảnh hưởng của nhiệt độ và thời gian hóa già đến tổ chức và cơ tính của hợp kim CuAl9Fe4. Khi thay đổi nhiệt độ hóa già từ 250 đến 550°C và thời gian từ 01 giờ đến 03 giờ cho thấy: Giá trị độ cứng tối ưu đạt được là 99,5HRB khi nhiệt độ hóa già là 350°C trong 02 giờ và độ hụt khối là 0,1239g. Kết quả này hoàn toàn phù hợp khi sử dụng quy hoạch thực nghiệm để xác định điểm nhiệt độ và thời gian tối ưu. Những kết quả nghiên cứu về tổ chức cho thấy sau hóa già ở 350°C trong 02 giờ bao gồm nền là dung dịch rắn - pha α và các pha γ_2 , pha liên kim Fe3Al có kích thước nhỏ mịn phân tán trên nền - pha α .

Từ khóa: Hợp kim CuAl9Fe4; hóa già, pha liên kim, độ cứng, độ hụt khối.

Abstract

This paper presents the effect of temperature and aging time on the microstructure and mechanical properties of CuAl9Fe4 alloy. When changing the aging temperature from 250 to 550°C and the aging time from 01 hour to 03 hours, the maximum hardness value reaches 99.5HRB after aging at 350°C for 02 hours and the mass loss reaches 0.1239g. This result is similar to the result of design of experiments (DoE). After aging at 350°C for 2 hours, the microstructure of the alloy includes of matrix is solid solution - α phase; fine γ_2 and Fe3Al phases disperse in the α matrix - α phase.

Keywords: CuAl9Fe4 Alloys, aging, intermetallic phase, hardness, mass loss.

1. Giới thiệu

Đồng nhôm là hợp kim của đồng với nhôm có hàm lượng chiếm từ 4-14%. Ngoài ra, trong hợp kim này còn được hợp kim hóa thêm Fe, Ni, Mn, Si để thay đổi các tính chất của hợp kim như tăng độ cứng, khả năng chống mài mòn cũng như hiệu ứng nhớ hình của hợp kim. Các tính chất của hợp kim chỉ được phát huy một cách hiệu quả khi được tiến hành xử lý nhiệt.

Theo nghiên cứu của J. Labanowski và T. Olkowski người Ba Lan năm 2014 [1] đã chỉ ra những kết quả nghiên cứu của mình về hợp kim CuAl10Fe5Ni5 ứng dụng cho chân vịt tàu thủy. Bằng kính hiển vi quang học và kính hiển vi điện tử quét kết hợp với định lượng nhóm nghiên cứu đã xác định được hình thái của pha κ - là những pha giàu sắt; đây là những pha sẽ ảnh hưởng đến độ bền; độ cứng của hợp kim nếu chúng ở dạng phân tán; trong khi nếu những pha này có sự kết tụ thành hình dạng lớn sẽ cải thiện tính dẻo. Pha κ này có 04 dạng tùy thuộc vào điều kiện khác từ cấu trúc dạng hoa hồng đến cấu trúc dạng hình cầu nhỏ mịn.

Theo như nghiên cứu của W.S. Li và các cộng sự năm 2006 [2] cho thấy hợp kim đồng nhôm khi cho thêm Fe, Mn hay Ni có cho thấy sự hình thành của các pha liên kim kappa khi được xử lý nhiệt phù hợp. Các kết quả nghiên cứu của nhóm tác giả Trung Quốc phân tích tổ chức hợp kim sau khi xử lý nhiệt nếu có sự tồn tại của các pha γ_2 và κ sẽ tăng được khả năng chống mài mòn của hệ hợp kim đặc biệt khi các pha này phân tán ở trong nền.

Các kết quả nghiên cứu của J. Hájek và các cộng sự năm 2016 [3] đã trình bày các kết quả nghiên cứu về sự chuyển biến pha của hợp kim đồng nhôm khi làm nguội với các tốc độ khác nhau (quá trình tôi).

Khi tốc độ nguội giảm hình thái của pha α cũng thay đổi cụ thể: tốc độ nguội giảm thì kích thước của pha α tăng lên. Trong các điều kiện làm nguội giảm dần thì tỷ lệ pha kappa từ I đến IV cũng tăng lên.

Theo nghiên cứu của Mustafa Yasar, Yahya Altunpak [4] thì ảnh hưởng của Fe trong quá trình xử lý nhiệt hóa già đến cơ tính hợp kim Cu-Al-Fe như sau: Fe đóng vai trò làm nhỏ mịn hạt trong quá trình đông đặc, đồng thời tăng cơ tính.

Trên thế giới có rất nhiều nghiên cứu về hệ hợp kim CuAl9Fe4 tuy nhiên những nghiên cứu này chủ yếu tập trung vào các chuyển pha cũng như sự hình thành các pha liên kim trong hợp kim này mà chưa có những công trình nghiên cứu về ảnh hưởng của quá trình hóa già nhiệt độ thấp đến tổ chức và cơ tính của hợp kim [5, 6, ...]. Trong nghiên cứu này, nhóm tác giả trình bày những kết quả nghiên cứu của mình về ảnh hưởng của nhiệt độ và thời gian hóa già ở nhiệt độ thấp (dưới nhiệt độ chuyển biến pha) đến độ cứng, độ hạt khối cũng như sự thay đổi về tổ chức của hợp kim nghiên cứu.

2. Phương pháp thực nghiệm

Hợp kim CuAl9Fe4 sử dụng nghiên cứu có thành phần như Bảng 1:

Hợp kim sau đúc được tiến hành nâng nhiệt lên 850°C trong 02 giờ sau đó làm nguội nhanh trong nước (tại nhiệt độ này theo giản đồ pha của Cu-Al-Fe cho thấy có hình thành pha β bên cạnh đó vẫn tồn tại một lượng pha α); tiếp tục được hóa già ở các nhiệt độ 250, 350, 450 và 550°C trong khoảng thời gian thay đổi là 01, 02 và 03 giờ.

Các mẫu sau hóa già được tiến hành đo độ cứng HRB; độ hạt khối và phân tích tổ chức tế vi. Khảo sát ảnh hưởng tổ chức tế vi hệ hợp kim Cu-Al-Fe, được thực hiện trên thiết bị hiển vi quang học Axiovert - 100A. Dung dịch tẩy thực sử là dung dịch HNO₃ 4%. Các mẫu thí nghiệm được chụp theo mặt cắt ngang của mẫu. Phân tích độ hạt khối được sử dụng trên máy thử mài mòn tribotech và sử dụng cân điện tử với độ chính xác đến 10⁻⁴gram để xác định mức độ hạt khối.

Ngoài ra, phân tích cấu trúc pha được xác định bằng các phương pháp phân tích hiện đại như XRD,

Bảng 1. Thành phần hợp kim CuAl9Fe4

Hợp kim	Al	Fe	Mn	Ni	Sn	Zn	Pb	Si	Cu
CuAl9Fe4	9,200	3,900	0,100	0,145	0,278	0,961	0,217	0,208	Còn lại

Bảng 2. Giá trị độ cứng tại các chế độ khác nhau

HRB	Lần 1	Lần 2	Lần 3	Giá trị trung bình
Sau tôi	86	87	86	86,33
250 1 giờ	80	83	82	81,67
250-2 giờ	85	84	85	84,67
250-3 giờ	87	86	86	86,33
350-1 giờ	90	88	89,5	89,17
350-2 giờ	100	99	99,5	99,50
350-3 giờ	97,5	98,5	99	98,33
450-1 giờ	84	87	86	85,67
450-2 giờ	88	89,5	89	88,83
450-3 giờ	84	83	84	83,67
550-1 giờ	79	79	78,5	78,83
550-2 giờ	83	84	84	83,67
550-3 giờ	73,5	72	73,5	73,00

SEM-EDS và TEM.

Kết quả phân tích độ cứng được xây dựng quy hoạch thành hàm số thể hiện sự thay đổi về độ cứng theo nhiệt độ và thời gian hóa già.

3. Kết quả và bàn luận

3.1. Phân tích sự thay đổi độ cứng của hợp kim sau hóa già

Phân tích giá trị độ cứng tại các chế độ khác nhau nhận thấy:

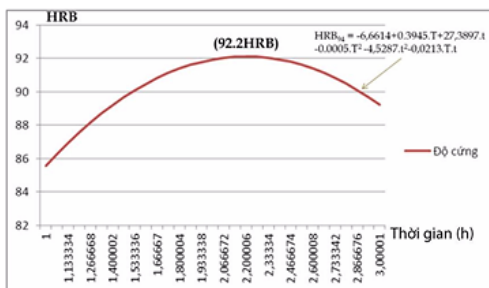
Sau khi đúc giá trị độ cứng của hợp kim cao hơn so với trạng thái tôi và hóa già ở 250°C 550°C trong 02 giờ nhưng thấp hơn so với trạng thái hóa già ở 350°C và 450°C. Điều này có thể được giải thích như sau: Quá trình chuyển biến pha của hệ hợp kim; sau đúc tổ chức bao gồm pha α và các pha liên kim nhưng ở trạng thái thô nên độ cứng cao hơn so với trạng thái tôi bao gồm các pha α và pha mactenxit β'. Sau khi hóa già, pha mactenxit phân hủy thành các pha α và các pha liên kim có kích thước nhỏ mịn phân tán ở nền

là dung dịch rắn α. Do vậy, giá trị độ cứng của hợp kim tăng lên. Tuy nhiên, nếu tiếp tục tăng nhiệt độ hóa già thì các pha α phân rã có kích thước lớn lên do vậy giá trị độ cứng lại giảm đi.

Kết quả phân tích độ cứng này sẽ được minh chứng một cách rõ ràng bởi phân tích tổ chức ở dưới: càng tăng nhiệt độ hóa già thì giá trị độ cứng càng giảm; điều này được giải thích là do lượng pha α tăng lên; số lượng pha nhiều hơn làm giảm độ cứng của hợp kim xuống. Đối với mẫu khi thay đổi thời gian hóa già cho thấy giá trị độ cứng tăng lên; điều này có thể giải thích do kích thước của pha liên kim tăng lên; hơn nữa pha γ₂ tiết ra nhiều hơn làm tăng giá trị độ cứng của mẫu sau hóa già.

Từ giá trị độ cứng tại các chế độ khác nhau bằng phương pháp quy hoạch thực nghiệm đã xác định được hàm phụ thuộc giữa giá trị độ cứng với nhiệt độ và thời gian. Hàm này được thể hiện ở phương trình (1):

$$HRB_{94} = -6,6614 + 0,3945.T + 27,3897.t - 0,0005.T^2 - 4,5287.t^2 - 0,0213.T.t \quad (1)$$



a) Biến thiên độ cứng thay đổi theo thời gian



b) Biến thiên độ cứng thay đổi theo nhiệt độ

Hình 1. Biến thiên giá trị độ cứng của hợp kim CuAl9Fe4 khi thời gian (a) và nhiệt độ hóa già (b)

Bảng 3. Bảng độ hụt khối của mẫu

Chế độ	Thời gian (giờ)	Độ hụt khối (g)
Sau đúc		0,8249
Sau tôi		0,7984
250	1	0,6555
250	2	0,6343
250	3	0,6088
350	1	0,1664
350	2	0,1239
350	3	0,1436
450	1	0,1863
450	2	0,1909
450	3	0,2459
550	1	0,5395
550	2	0,6021
550	3	0,6342

HRB₉₄: giá trị độ cứng của hợp kim phụ thuộc vào nhiệt độ và thời gian hóa già.

Từ phương trình (1) thể hiện mối quan hệ giữa độ cứng phụ thuộc vào nhiệt độ và thời gian được xác định theo Hình 1a và 1b; và xác định được giá trị nhiệt độ và thời gian hóa già tối ưu là:

Nhiệt độ: 347°C;

Thời gian tối ưu là: 2,21 giờ.

Kết quả về nhiệt độ ram và thời gian hóa già tối ưu cho thấy phù hợp với giá trị thực nghiệm mà bài báo đã tiến hành. Giá trị độ cứng tối ưu tính theo phương trình (1) đạt được là 92,2 HRB.

3.2. Phân tích sự thay đổi độ hụt khối sau hóa già

Phân tích kết quả độ hụt khối theo nhiệt độ và thời gian thực nghiệm cho thấy:

Kết quả khi hóa già ở 350°C trong 02 giờ cho độ hụt khối là nhỏ nhất; có nghĩa là khả năng chống mài mòn của mẫu là lớn nhất. Điều này hoàn toàn phù hợp với những phân tích về tổ chức khi thay đổi nhiệt độ cũng như thay đổi về thời gian hóa già.

Từ đây có thể thấy rằng: đối với hợp kim này khả năng chống mài mòn tốt nhất là nung ở 850°C giữ nhiệt trong 02 giờ rồi làm nguội nhanh trong nước; sau đó tiếp tục hóa già ở 350°C trong 02 giờ sẽ cho hiệu quả tốt nhất về tổ chức cũng như cơ tính của hợp kim này.

3.2. Phân tích tổ chức tế vi

Hình 2 đã chỉ ra tổ chức của hợp kim được thực

hiện ở các chế độ khác nhau.

Phân tích kết quả tổ chức của mẫu sau hóa già nhận thấy:

Với cùng thời gian thực nghiệm giữ nhiệt khi hóa già là 02 giờ khi tăng nhiệt độ hóa già lượng pha α xuất hiện tăng lên; tương tự như vậy thì kích thước của các pha liên kim cũng tăng lên. Khi kích thước của các pha này tăng sẽ ảnh hưởng đến cơ tính của hợp kim đặc biệt là khả năng chống mài mòn.

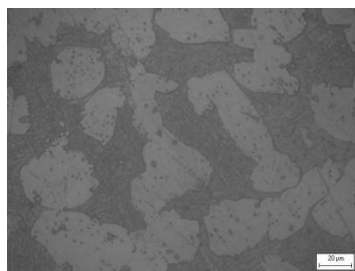
Hơn nữa, khi nhiệt độ tăng phân hủy mactenxit trong hợp kim đồng cũng diễn ra mạnh mẽ hơn; điều này cũng là nguyên nhân để làm tăng mạnh mẽ kích thước của pha α . Cùng một thời gian nhiệt độ hóa già tăng thì sự phân hủy sẽ diễn ra nhanh hơn và nhiều hơn so với hóa già ở nhiệt độ thấp.

Phân tích tổ chức tế vi của mẫu sau khi thay đổi nhiệt độ hóa già cho thấy:

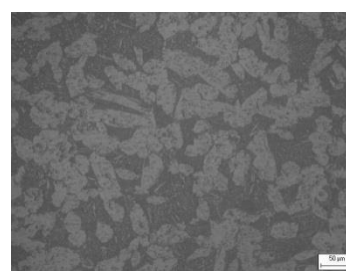
Khi hóa già trong 01 giờ thì hình thái tổ chức gần như không thay đổi so với mẫu sau tôi; điều này cho thấy với thời gian hóa già ngắn chưa đủ để làm thay đổi cấu trúc của pha này.

Tiếp tục tăng thời gian hóa già lên 02 giờ thì bắt đầu có sự thay đổi về việc pha mactenxit được phân hủy ra tuy nhiên nếu tiếp tục tăng lên 03 giờ thì lượng pha α tiết ra nhiều hơn. Điều này sẽ ảnh hưởng rất lớn đến tính chất của hợp kim này.

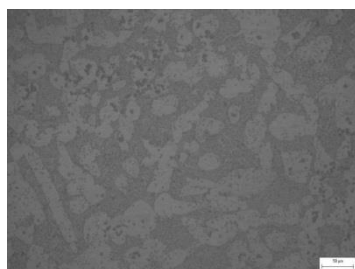
Phân tích tổ chức pha ở 350°C trong 02 giờ cho thấy kết quả như sau:



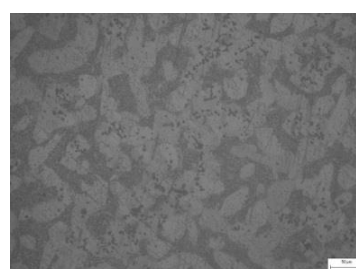
Sau tôi ở 850°C trong nước



Sau tôi + hóa già 350°C trong 02 giờ

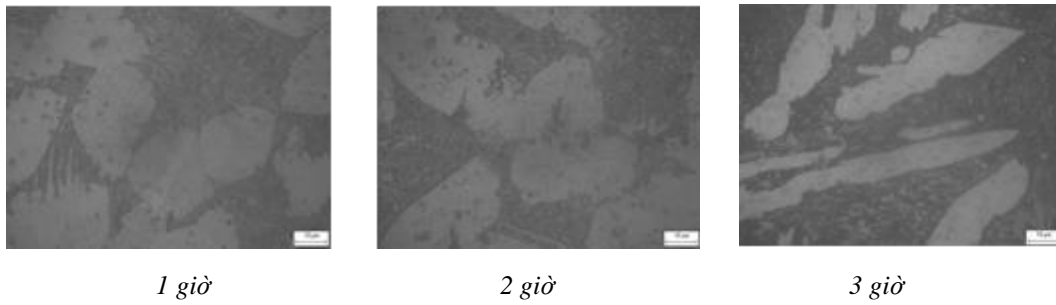


Sau tôi + hóa già 450°C trong 02 giờ



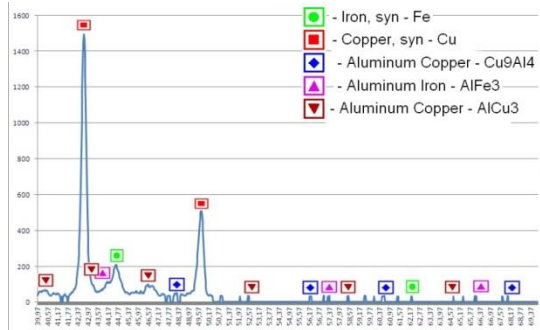
Sau tôi + hóa già 550°C trong 02 giờ

Hình 2. Tổ chức tế vi mẫu sau các chế độ xử lý nhiệt



Hình 3. Tổ chức tế vi mẫu sau hóa già ở 350°C các thời gian khác nhau 1, 2 và 3 giờ

Hình 4 trình bày kết quả X-ray của các mẫu hợp kim BCuAl9Fe4 được hóa già ở 350°C trong 02 giờ cho được kết quả như sau:



Hình 4. Phân tích XRD mẫu sau hóa già

Nhìn trên hình của hợp kim nhận thấy thông số d có sự thay đổi trong các giai đoạn, được thể hiện rõ khi các điểm peak bị lệch so với peak chuẩn có lúc nghiêng sang trái, lúc sang phải cho thấy sự biến đổi về cấu trúc, mạng tinh thể và sự tiết pha diễn ra trong các giai đoạn cụ thể:

Ở mẫu hóa già ở 350°C trong 02 giờ (Hình 4): pha β' mactenxit (Cu₃Al) phân hủy thành pha α và pha γ₂ ngoài ra có xuất hiện thêm các pha liên kim có kích thước nhỏ mịn được tiết ra mà ảnh quang học không nhìn thấy được.

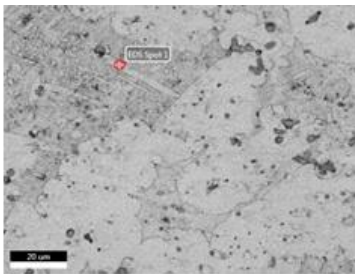
Ảnh SEM Hình 5 cho thấy: Kết quả SEM càng nhận định rõ ràng hơn sự hình thành pha (α + γ₂) với sự tiết

ra pha γ₂ ở dạng nhỏ mịn, phân tán đều là do sự tiết ra Al, Fe tạo nên các pha Fe₃Al trên nền và trên biên giới các tấm mactenxit. Quan sát ảnh SEM nhận thấy: Trong tổ chức của hợp kim có xuất hiện các pha có kích thước nhỏ hơn sẽ góp phần nâng cao khả năng chống mài mòn cho hệ hợp kim. Tuy nhiên, với phương pháp phân tích EDS rất khó để có được kết quả chính xác; điều này có thể chỉ có thể phân tích kỹ hơn bằng kỹ thuật phân tích hiển vi điện tử xuyên.

Tiếp tục thực hiện các phân tích về ảnh hiển vi điện tử truyền qua đối với hợp kim CuAl9Fe4 sau khi tiến hành tôi và hóa già ở 350°C đã xác định được cấu trúc pha của hợp kim.

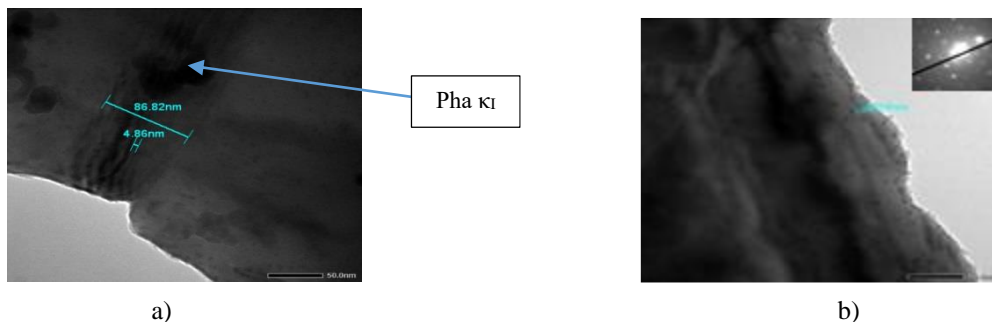
Phân tích ảnh hiển vi điện tử truyền qua của mẫu sau khi xử lý nhiệt ở 350°C trong 02 giờ nhận thấy:

Bằng kỹ thuật phân tích TEM và vi nhiễu xạ cho thấy cấu trúc của β' (Hình 6a) với kích thước cỡ nano. Những tấm β' này có cấu trúc khoảng 80nm; xen kẽ bên trong một tấm lớn của pha mactenxit là những tấm nhỏ với khoảng cách giữa hai tấm chỉ đạt gần 5nm. Ngoài ra trong tổ chức xuất hiện các pha liên kim loại với kích thước nano. Những hạt nano này đo được trên ảnh tổ chức chỉ có kích thước vào khoảng 4nm. Pha liên kim trong hợp kim này chủ yếu là pha Fe₃Al. Những hạt này phân tán khá đều trên ảnh tổ chức. Điều này giúp làm thay đổi cơ tính của hợp kim.



Nguyên tố	% Khối lượng	% Nguyên tố
Cu	91,02	81,15
Al	8,98	18,85

Hình 5. Phân tích EDS mẫu CuAl9Fe4 sau hóa già ở 350°C



Hình 6. Phân tích ảnh TEM mẫu CuAl9Fe4 sau xử lý nhiệt ở 350°C trong 02 giờ

4. Kết luận

Thông qua các kết quả nghiên cứu về ảnh hưởng của nhiệt độ và thời gian hóa già cho thấy giá trị tối ưu là hóa già ở 350°C trong 02 giờ đối với trường hợp khi nung lên 850°C giữ nhiệt trong 02 giờ rồi làm nguội nhanh trong nước. Kết quả nghiên cứu cho thấy giá trị độ cứng; độ hút khô đạt giá trị tối ưu. Ngoài ra, các phương pháp phân tích tổ chức đã chứng minh kết quả phân tích về cơ tính ở trên. Bằng phương pháp quy hoạch thực nghiệm bài báo cũng xác định được hàm số thể hiện mối quan hệ giữa độ cứng theo nhiệt độ và thời gian; từ đó xác định được giá trị tối ưu của theo lý thuyết tương ứng với giá trị thực nghiệm của hợp kim trong điều kiện nghiên cứu. Bằng các kỹ thuật phân tích hiện đại đặc biệt là phân tích TEM, bài báo đã chỉ ra được cấu trúc mactenxit của hợp kim nghiên cứu và các pha liên kim hình thành trong tổ chức.

Công trình nghiên cứu là kết quả đề tài nghiên cứu khoa học cấp Trường năm học 2019-2020 với tên đề tài: “Nghiên cứu nâng cao khả năng chịu mài mòn của hợp kim Cu-Al bằng hợp kim hóa và xử lý nhiệt áp dụng cho lĩnh vực hàng hải”.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] J. Labanowski and T. Olkowski, “Effect of Microstructure on Mechanical Properties of BA1055 Bronze Castings,” *Arch. FOUNDRY Eng.*, Vol. 14, No. 2, pp. 73-78, 2014.
- [2] W. S. Li, Z. P. Wang, Y. Lu, Y. H. Jin, L. H. Yuan, and F. Wang, “Mechanical and tribological properties of a novel aluminum bronze material for drawing dies,” *Wear*, vol. 261, no. 2, pp. 155-163, 2006.
- [3] J. Hájek, A. Kíz, O. Chocholatý, and D. Pakua, “Effect of heat treatment on microstructural changes in aluminium bronze,” *Arch. Metall. Mater.*, Vol. 61, No. 3, pp. 1271-1276, 2016.

- [4] Y. A. Mustafa Yasar, “The effect of aging heat treatment on the sliding wear behaviour of Cu - Al - Fe alloys,” Vol. 30, pp. 878-884, 2009.
- [5] F. Hasan, J. Iqbal, and N. Ridley, “Microstructure of as-cast aluminium bronze containing iron,” *Mater. Sci. Technol.*, Vol. 1, No. 4, pp. 312-315, Apr. 1985.
- [6] M. Yaşar and Y. Altunpak, “The effect of aging heat treatment on the sliding wear behaviour of Cu-Al-Fe alloys,” *Mater. Des.*, Vol. 30, No. 3, pp. 878-884, 2009.

Ngày nhận bài:	07/01/2020
Ngày nhận bản sửa:	30/01/2020
Ngày duyệt đăng:	13/02/2020