

**Renata Mola\*, Andrzej Dziadoń**

*Politechnika Świętokrzyska, Katedra Metaloznawstwa i Technologii Materiałowych, al. Tysiąclecia Państwa Polskiego 7, 25-314 Kielce, Poland*

*\* Corresponding author. E-mail: rmola@tu.kielce.pl*

Otrzymano (Received) 12.02.2009

## PROJEKTOWANIE GEOMETRII KOMPOZYTU WARSTWOWEGO MAGNEZ-EUTEKTYKA

Pokazano, że istnieje możliwość wykonywania kompozytu warstwowego magnez-eutektyka z blach magnezu i aluminium. Aby uzyskać kompozyt, arkusze magnezu i aluminium układane są naprzemiennie w pakiet i wygrzewane w temperaturze 445°C. Wytrzymywanie pakietu w tej temperaturze przez kilka minut prowadzi do reakcji między metalami zachodzącej w stanie ciekłym. Ponieważ front reakcji migruje głównie w kierunku magnezu, zużywana jest większa objętość magnezu niż aluminium. Wygrzewanie jest kontynuowane do chwili, gdy cała ilość aluminium zostanie wyczerpana i przekształcona z częścią magnezu w fazę ciekłą. Podczas krzepnięcia tworzy się eutektyka. W wyniku uzyskuje się kompozyt składający się z warstw pozostałego magnezu rozmieszczonych między warstwami o strukturze eutektyki. Ponieważ eutektyka zawiera związek międzymetaliczny Mg<sub>17</sub>Al<sub>12</sub>, warstwy eutektyki są warstwami wzmacniającymi kompozyt. Grubość warstw wzmacniających zależy od grubości aluminium znajdującego się pomiędzy warstwami magnezu w pakiecie. Prezentowana metoda pozwala wykonywać kompozyty o założonym stosunku grubości warstw magnezu do grubości warstw eutektyki poprzez odpowiedni dobór grubości wyjściowych blach magnezu i aluminium. W ten sposób można modelować strukturę i własności mechaniczne kompozytu. Praca zawiera analizę procesu formowania kompozytu w aspekcie projektowania geometrii jego warstw. Analizę tę przeprowadzono w oparciu o dane eksperymentalne. Grubość wyjściowych arkuszy magnezu i aluminium tak dobierano, by uzyskać serię kompozytów o różnym stosunku grubości warstw. Za pomocą mikroskopu optycznego mierzono grubość warstw o strukturze eutektyki oraz grubość warstw pozostałego po reakcji magnezu. Stwierdzono, że warstwy kompozytu o strukturze eutektyki są cztery razy grubsze od grubości blachy aluminiowej zastosowanej do wykonania kompozytu. Określono również objętościowy udział magnezu w warstwach kompozytu o strukturze eutektyki. Na podstawie pomiarów ustalono proste relacje między grubością wyjściowych arkuszy magnezu i aluminium a grubością uzyskanych warstw kompozytu.

**Słowa kluczowe:** kompozyt warstwowy, magnez, fazy międzymetaliczne

## DESIGNING GEOMETRY OF THE MAGNESIUM-EUTECTIC MIXTURE LAYERED COMPOSITE

It has been shown that there is a possibility to make layered magnesium-eutectic mixture composite from the elemental magnesium and aluminium sheets. To obtain a composite, magnesium and aluminium sheets are formed alternately into a pocket and then heated at temperature of 445°C. Holding for a few minutes the magnesium-aluminium pocket leads to reaction between the metals in the liquid state. Because front of the reaction zone migrates mainly into the magnesium, more volume of magnesium than aluminium is consumed in the reaction course. Heating is prolonged till the aluminium is exhausted and transformed with part of the magnesium into a liquid phase. During solidification eutectic mixture is formed. As a result composite with layers of residual magnesium stocked between layers of eutectic mixture is produced. The eutectic mixture contains Mg<sub>17</sub>Al<sub>12</sub> intermetallic compound, so these layers of the composite are the reinforcement layers. The thickness of the reinforcement layers depend on the amount of aluminium placed between the magnesium layers. Presented method allow to produce the composites with any thickness ratio of magnesium layers to the eutectic mixture layers by choosing the thickness ratio of starting magnesium and aluminium sheets. In this way structure and mechanical properties of the composite can be modeling. A paper contains analysis of the composite formation in the aspect of the designing geometry of the composite layers. The work was based on the experimental data. The thickness of the initial magnesium and aluminium sheets was selected to produce a series of composites with different thickness ratios between the composite layers. The resulting thickness of the eutectic mixture layers and thickness of the residual magnesium layers were measured using optical microscope. It was found that the layers of composite containing eutectic mixture are four times thicker than the thickness of aluminium sheets used for composite fabrication. Volume contribution of the magnesium in the eutectic mixture synthesized layers of the composite was also determined. On basis of the measurements, the simple relations between the thickness starting magnesium and aluminium sheets and the thickness of the resulting composite layers were formulated.

**Keywords:** layered composite, magnesium, intermetallic phases

## WSTĘP

Kompozyty z metaliczną osnową wzmocnione fazami międzymetalicznymi są przedmiotem dużego zainteresowania z powodu ich unikatowych właściwości mechanicznych. W ostatnich latach ukazały się w literaturze prace przedstawiające proces otrzymywania kompozytów warstwowych typu metal-fazy międzymetaliczne przy wykorzystaniu prostej techniki. Proces polega na wygrzewaniu pakietu utworzonego z naprzemiennie ułożonych blach lub folii dwu odpowiednio dobranych metali. W wyniku intensywnej przemiany fazowej na powierzchni między nimi tworzą się warstwy produktów reakcji zawierające fazy międzymetaliczne. Wygrzewanie pakietu prowadzone jest do momentu całkowitego wyczerpania się jednego z metali. Po ochłodzeniu uzyskuje się kompozyt zbudowany z warstw pozostałego po reakcji metalu oraz z warstw o strukturze faz międzymetalicznych. Metodą tą uzyskano kompozyty żelazo-fazy międzymetaliczne i nikiel-fazy międzymetaliczne [1-3], tytan-fazy międzymetaliczne [1-6] oraz miedź-fazy międzymetaliczne [7].

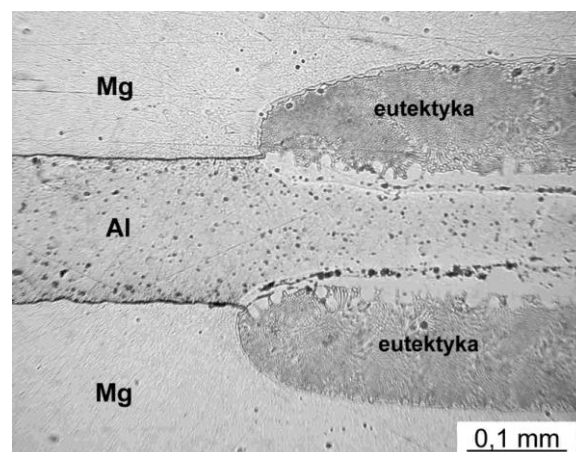
Przedstawiona wyżej metoda została wykorzystana do wytworzenia kompozytu o osnowie magnezu wzmocnionego warstwami eutektyki, w skład której wchodzi związek międzymetaliczny  $Mg_{17}Al_{12}$ . Mikrotywardość tych warstw kompozytu jest kilkakrotnie (5 do 8 razy w zależności od dyspersji faz eutektyki) wyższa od twardości warstw magnezu. Do syntezy faz międzymetalicznych wybrano aluminium z powodu niskiej gęstości tego metalu, stosowanego w wielu stopach magnezu. Kompozyty na osnowie magnezu i jego stopów są przedmiotem dużego zainteresowania, głównie z powodu małej gęstości. Posiadają one również podwyższony w stosunku do magnezu moduł sztywności oraz wyższą niż stopy magnezu odporność na zużycie ścierne [8-11].

Prezentowana w niniejszej pracy metoda pozwala na uzyskanie kompozytów o różnym stosunku grubości magnezu do grubości warstw o strukturze eutektyki. Dobrając grubość taśmy magnezowej i taśmy aluminiowej, można wytworzyć kompozyty o założonej geometrii. Na podstawie analizy danych eksperymentalnych ustalono zależności, które pozwalają na zaprojektowanie kompozytów o założonej grubości warstw składowych.

## BADANIA WŁASNE

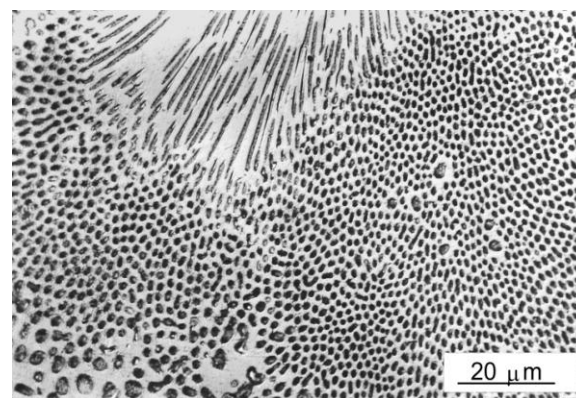
Proces formowania kompozytu rozpoczyna się od naprzemiennego ułożenia taśm magnezu i taśm aluminium w pakiet, który wygrzewa się wstępnie pod ciśnieniem (5 MPa) w piecu próżniowym o temperaturze 430°C w czasie kilku minut. Na tym etapie, na drodze dyfuzji reaktywnej tworzy się między metalami cienka warstewka faz  $Al_3Mg_2$  i  $Mg_{17}Al_{12}$  [12, 13]. Następnie usuwa się docisk i podgrzewa pakiet do temperatury 445°C. W temperaturze 445°C na granicy między magnezem a aluminium pojawia się faza ciekła. Na rysunku 1

przedstawiono obserwowaną w mikroskopie optycznym mikrostrukturę utworzoną w początkowym stadium procesu przebiegającego z udziałem fazy ciekłej. Wygrzewanie tego pakietu, składającego się z taśmy magnezu o grubości 1,35 mm oraz z taśmy aluminium o grubości 0,15 mm, przerwano po 20 minutach. Podczas chłodzenia po obydwu stronach nieprzereagowanej do końca taśmy aluminiowej utworzyła się struktura eutektyczna. Badania wykazały, iż eutektyka, którą przedstawiono na rysunku 2, jest mieszaniną fazy  $Mg_{17}Al_{12}$  (faza jasna) oraz roztworu stałego aluminium w magnezie (faza ciemna). Szczegółowe wyniki badań strukturalnych wraz z identyfikacją faz przedstawiono we wcześniejszych publikacjach [12, 13]. Należy zauważyć, że eutektyka składająca się z fazy  $Mg_{17}Al_{12}$  i roztworu stałego aluminium w magnezie jest bogata w magnez. Do fazy ciekłej, tworzącej się w temperaturze 445°C na granicy między metalami, przechodzi więc więcej magnezu niż aluminium. Granica, jaką tworzy eutektyka z metalami, bardziej zatem migruje w stronę magnezu niż w stronę aluminium (jak widać na rys. 1).



Rys. 1. Proces formowania warstwy kompozytu o strukturze eutektyki. Zgląd nietrawiony

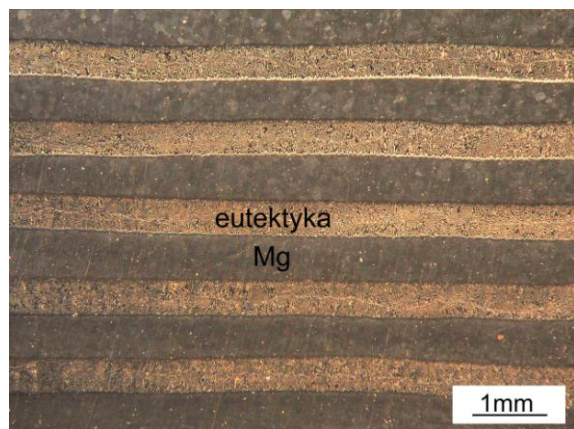
Fig. 1. Formation of the composite layer consisting of eutectic structure. Not etched microsection



Rys. 2. Struktura eutektyki obserwowana w mikroskopie optycznym. Po zakończeniu wygrzewania pakiet chłodzony na powietrzu

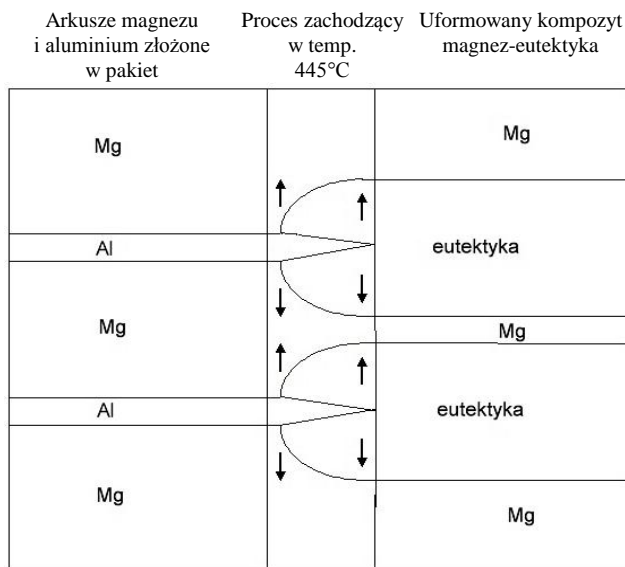
Fig. 2. The eutectic microstructure observed by metallographic microscope. After holding packet was air cooled

Dalsze wygrzewanie pakietu prowadzi do całkowitego wyczerpania taśmy aluminiowej i utworzenia warstw eutektyki między warstwami magnezu, który pozostaje po zakończeniu reakcji. Rysunek 3 przedstawia strukturę kompozytu.



Rys. 3. Przekrój poprzeczny kompozytu warstwowego magnez-eutektyka  
Fig. 3. Cross-section of the magnesium-eutectic mixture layered composite

Schemat formowania kompozytu: warstwy magnezu-warstwy eutektyki przedstawiono na rysunku 4.



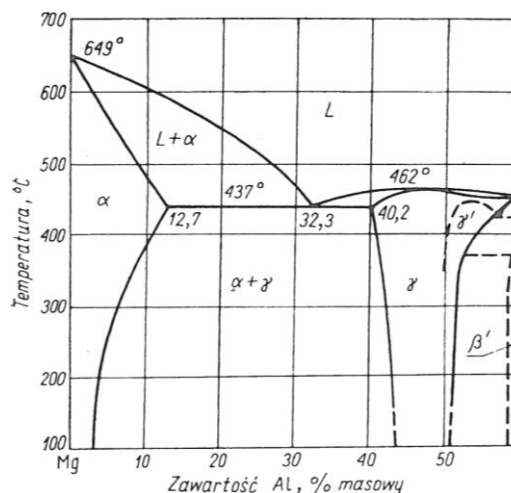
Rys. 4. Schemat procesu formowania kompozytu warstwowego magnez-eutektyka

Fig. 4. Schematic diagram of (the high-temperature) process used to form the magnesium-eutectic mixture composite

Zastosowana metoda pozwala na uzyskanie kompozytów o różnym stosunku grubości magnezu do grubości warstw o strukturze eutektyki. Dobierając grubość taśmy magnezowej i taśmy aluminiowej, można wytworzyć kompozyty o założonej geometrii. Proporcje składników (magnezu i aluminium) są tak ustalane, by w wyniku reakcji przebiegającej z udziałem fazy ciekłej utworzyły się warstwy kompozytu o strukturze eutektyki, a pozostała, nadmiarowa ilość magnezu stanowiła osnowę kompozytu.

Rysunek 5 przedstawia fragment układu równowagi fazowej Mg-Al [14]. Zawartość magnezu w fazie  $Mg_{17}Al_{12}$  może wahać się w zakresie od 44,54% at. (struktura tetragonalna) do 50,58% at. (struktura regularna przestrzennie centrowana) [15]. Fazę tę oznaczono na rysunku 5 symbolem  $\gamma$ .

Według układu równowagi fazowej Mg-Al [14] (rys. 5) eutektyka zawiera w procentach masowych 32,3% Al i 67,7% Mg.



Rys. 5. Układ równowagi fazowej Mg-Al [14]

Fig. 5. Mg-Al phase diagram [14]

Po uwzględnieniu gęstości obydwu metali ( $\rho_{Mg}$ ,  $\rho_{Al}$ ) stosunek objętościowy magnezu do aluminium w eutektyce wynosi zatem:

$$V_{Mg}/V_{Al} = (\% \text{mas. Mg} / \rho_{Mg}) / (\% \text{mas. Al} / \rho_{Al}) = 3,33$$

albo, przeliczając na objętościowy udział procentowy, eutektyka powinna zawierać 76,9% Mg i 23,1% Al.

Z tego wynika, że dla utworzenia w kompozycie warstwy o strukturze eutektyki grubość taśmy magnezu powinna być ponad 3-krotnie większa od grubości taśmy aluminium. Jeżeli grubość taśm magnezu w pakiecie będzie większa, nadmiarowa ilość magnezu pozostanie jako warstwy kompozytu. Przeprowadzono eksperymentalną weryfikację tego wyliczenia.

Wykonano serię kompozytów, różnicując grubość taśmy magnezu i taśmy aluminium w pakiecie przy założeniu, że grubość kompozytu i ilość warstw w kompozycie jest stała:

$$H = \text{const}$$

$$A + B = \text{const}$$

gdzie:  $H$  - grubość kompozytu,  $A$  - ilość warstw magnezu,  $B$  - ilość warstw o strukturze eutektyki

$$H = A d_{Mgk} + B d_e$$

gdzie:  $d_{Mgk}$  - grubość pojedynczej środkowej warstwy magnezu w kompozycie,  $d_e$  - grubość warstwy eutektyki w kompozycie.

Za pomocą mikroskopu przeprowadzono pomiary grubości warstw o strukturze eutektyki i warstw magnezu w tych kompozytach. Wyniki pomiarów zestawiono w tabeli 1.

TABELA 1. Grubość taśm magnezu i aluminium oraz ostateczna grubość warstw w uzyskanych kompozytach

TABLE 1. Thickness of starting Mg and Al bands and the final thickness of the composite layers

Początkowa grubość taśmy Mg mm	Początkowa grubość taśmy Al mm	Grubość warstw Mg w kompozycie mm	Grubość warstw eutektyki w kompozycie mm	Stosunek grubości Mg do grubości warstw eutektyki
1,45	0,06	1,25	0,25	5
1,4	0,1	0,9	0,4	2,3
1,35	0,15	0,7	0,6	1,2
1,3	0,2	0,5	0,8	0,6
1,25	0,25	0,3	1	0,3

Z pomiarów widać, że grubość warstwy eutektyki w wytworzonych kompozytach jest około czterokrotnie większa od grubości taśmy aluminiowej zastosowanej do syntezy faz magnezowo-aluminiowych

$$d_e = 4d_{Al}$$

gdzie:  $d_e$  - grubość warstwy eutektyki w kompozycie,  $d_{Al}$  - grubość taśmy aluminiowej w pakiecie stanowiącym wsad.

Zatem, aby uzyskać warstwę eutektyki, należy połączyć 75% Mg i 25% Al (w procentach objętościowych). Wynik ten wykazuje dużą zgodność z wyliczeniami uzyskanymi w oparciu o układ równowagi fazowej Mg-Al.

Z pomiarów wynika również, że środkowe taśmy magnezu w pakiecie ulegają dwustronnemu pocienieniu o około połowę grubości warstwy eutektyki wskutek udziału magnezu w procesie syntezy warstw eutektyki

$$d_{Mgk} = d_{Mg} - 2(0,5d_e)$$

gdzie:  $d_{Mgk}$  - grubość pojedynczej środkowej warstwy magnezu w kompozycie,  $d_{Mg}$  - grubość taśmy magnezowej w pakiecie stanowiącym wsad.

Natomiast skrajne taśmy magnezu ulegają pocienieniu jednostronnemu o połowę grubości warstwy eutektyki

$$d_{Mgks} = d_{Mg} - 0,5d_e$$

gdzie  $d_{Mgks}$  - grubość skrajnej warstwy magnezu w kompozycie.

Przy projektowaniu kompozytu o założonej grubości warstw magnezu w kompozycie  $d_{Mgk}$  i grubości warstw eutektyki  $d_e$  grubość taśmy magnezowej  $d_{Mg}$  należy dobrać według przybliżonej zależności

$$d_{Mg} = d_e + d_{Mgk}$$

natomiast grubość taśmy aluminiowej  $d_{Al}$  według wzoru

$$d_{Al} = 0,25d_e$$

## WNIOSKI

1. Proces zachodzący na granicy Mg-Al z udziałem fazy ciekłej można wykorzystać do wytwarzania kompozytu warstwowego magnez-eutektyka. W skład eutektyki wchodzi związek międzymetaliczny  $Mg_{17}Al_{12}$  oraz roztwór stały aluminium w magnezie.
2. Poprzez odpowiedni dobór grubości taśm magnezu i folii aluminiowej w pakiecie wsadowym można uzyskać kompozyty o różnym stosunku grubości magnezu do grubości warstw o strukturze eutektycznej.
3. Projektowanie geometrii kompozytu magnez-eutektyka jest możliwe przy wykorzystaniu zależności, które uzyskano na podstawie analizy reakcji między grubością taśmy magnezu i aluminium w pakiecie wsadowym a grubością warstw kompozytu.

## Podziękowania

Praca finansowana przez MNiSW, grant Nr N50708932/2436.

## LITERATURA

- [1] Rawers J.C., Maupin H.E., Metall-intermetallic composites formed by reaction-sintering metal foils, J. Mat. Sci. Letters 1993, 12, 637.
- [2] Rawers J.C., Hansen J.S., Alman D.E., Hawk J.A., Formation of sheet metal-intermetallic composites by self-proragation high-temperature reactions, J. Mat. Sci. Letters 1994, 13, 1357.
- [3] Alman D.E., Rawers J.C., Hawk J.A., Microstructural and failure characteristics of metal-intermetallic layered sheet composites, Metall. Mater. Trans. A 1995, 26A, 589.
- [4] Jacob A., Speidel M.O., Microstructure and tensile properties of TiAl compounds formed by reactive foil metallurgy, Mat. Sci. Eng. A 1994, 189, 129.
- [5] Harach J.D., Vecchio K.S., Microstructure evolution in metal-intermetallic laminate (MIL) composites synthesized by reactive foil sintering in air, Metall. Mater. Trans. A 2001, 32A, 1493.
- [6] Tomus D., Tsuchiya K., Inuzuka M., Sasaki M., Imai D., Ohmori T., Umamoto M., Fabrication of shape memory TiNi foils via Ti/Ni ultrafine laminates, Scripta Mater. 2003, 48, 489.
- [7] Dziadoń A., Konieczny M., Structural transformations at the Cu-Ti interface during synthesis of copper-intermetallics layered composite, Kovove Materialy 2004, 42, 42.
- [8] Braszczyńska-Malik K.N., Chmielowiec P., Zachowanie się kompozytów  $MgZn_6-SiC_p$  w próbie ściskania, Kompozyty (Composites) 2005, 5, 99-103.
- [9] Bochenek A., Braszczyńska K.N., Structural analysis of the MgAl5 matrix cast composites containing SiC particles, Materials Science and Engineering 2000, 290, 122.

- [10] Dobrzański L.A., Piec M., Bilewicz M., Materiały kompozytowe o osnowie stopu magnezu EN-MCMgAl9Zn1 wzmocniane cząstkami  $Al_2O_3$ , *Inżynieria Materiałowa* 2006, 6, 605-608.
- [11] Saravanan R.A., Surappa M.K., Fabrication and characterisation of pure magnesium-30 vol.%SiC<sub>p</sub> particle composite, *Materials Science and Engineering* 2000, 276, 108.
- [12] Mola R., Dziadoń A., Przemiany strukturalne na granicy Al-Mg podczas formowania kompozytu warstwowego metal-fazy międzymetaliczne, XXXIII Szkoła Inżynierii Materiałowej, Kraków-Ustroń 2005, 327-331.
- [13] Mola R., Dziadoń A., Formation of magnesium-eutectic mixture layered composite, *Archives of Foundry Engineering* 2008, 8, Issue 4, 127-132.
- [14] Przybyłowicz K., *Metaloznawstwo*, WNT, Warszawa 2007.
- [15] Phase Equilibria, Crystallographic and Thermodynamic Data of Binary Alloys, Landolt-Börnstein / New Series IV/5, Springer 1998.