

Maciej Dyzia^{1*}, Anna Dolata-Grosz², Józef Śleziona³, Werner Hufenbach⁴, Maik Gude⁵, Andrzej Czulak⁶

¹⁻³ Politechnika Śląska, Wydział Inżynierii Materiałowej i Metalurgii, Katedra Technologii Stopów Metali i Kompozytów, ul. Krasińskiego 8, 40-019 Katowice, Poland

⁴⁻⁶ Technische Universität Dresden, Institute für Leichtbau und Kunststofftechnik (ILK), 01062 Dresden, Germany

* Corresponding author. E-mail: Maciej.Dyzia@polsl.pl

Otrzymano (Received) 24.02.2009

PRÓBY SYCENIA PREFORM Z WŁÓKIEN WĘGLOWYCH MODYFIKOWANYM STOPEM AISi9Cu(Fe)

W ostatnich latach coraz więcej ośrodków badawczych prowadzi prace nad kompozytami o osnowie aluminium zbrojonymi włóknami węglowymi (AIMMC/CF). Ponieważ materiały te charakteryzują się wysoką sztywnością, wytrzymałością właściwą oraz niskim współczynnikiem rozszerzalności cieplnej i wysokim współczynnikiem przewodnictwa cieplnego i elektrycznego, potencjalnym obszarem ich zastosowań może być przemysł lotniczy, motoryzacyjny, a także elektroniczny. Głównym problemem w procesie wytwarzania kompozytów o osnowie aluminium jest reaktywność oraz zwilżalność w układzie Al-C. Poprzez modyfikację stopu osnowy oraz powierzchni włókien zbrojących można w procesach cieklofazowych uzyskać warunki dobrego połączenia na granicy osnowa-włókno zbrojące. Celem realizowanych badań była modyfikacja składu stopu AISi9Cu(Fe), tak aby możliwe było jego wykorzystanie w warunkach procesu gazowej infiltracji preformy 2D CF (tkaniny wplecionej z włókien węglowych HTS 40 A23 12K). Jako wstępne kryterium oceny modyfikacji stopu bazowego przyjęto zakres temperatury krzepnięcia oraz wyniki próby lejności, natomiast weryfikacją technologiczną była próba sycenia zrealizowana w ILK TU Dresden. Prezentowane wyniki są fragmentem badań realizowanych w projekcie „Kompozyty o osnowie aluminiowej ze wzmocnieniem tekstylnym typu 3-D (3D-CF/Al-MMC) dla elementów podlegających złożonym obciążeniom w przemyśle samochodowym i w budowie maszyn” realizowanego w ramach programu DFG.

Słowa kluczowe: kompozyty o osnowie stopów aluminium, włókna węglowe, zwilżalność, modyfikacja składu stopu

INFILTRATION TEST OF CARBON FIBRES TEXTILE BY MODIFIED AISi9Cu(Fe) ALLOY

In last years more and more research centers leads works on aluminium matrix composites reinforcement with carbon fibres (AIMMC/CF). That kind of materials characterize high stiffness, specific strength as well as low coefficient of thermal expansion and high coefficient of thermal and electric conductivity. Potential area of application them could be aerospace, automotive, and also electronic industry. Main problem in process of production aluminium matrix composites is reactivity and wettability into Al-C system. Improper wetting and chemical reaction at interface boundary could be a reason of degradation mechanical properties of the composite. After through modifications of alloy matrix and surface of reinforced fibres it were been possible to get conditions of best's connection between matrix and fibre in liquid phases processes. The aluminium alloys used for composites must have appropriate strength. Carbon fibres are characterized by a high elasticity modulus (from 250 to 400 GPa) with deformation until failure of 1-3%. To take advantage of the strength, the matrix must show deformation higher than that of the fibres. In addition, from the point of view of the liquid-phase technology, the aluminium alloy matrix should be characterized by low viscosity, high surface tension and low reactivity with carbon. Al-Si alloys fulfill this condition. However, they contain at least 7% Si and have low plastic properties (total strain does not exceed 5%), and the composite is characterized by high brittleness. Modification of base alloy AISi9Cu(Fe), was aim of realized investigations in the point of view utilization them in conditions of process of gas infiltration 2D CF textile (woven preform made on HTS 40 A23 12K fibres). As preliminary criterion of evaluation of the modification the range of solidification temperature was accepted as well as results of test of castability. However realized of infiltration test was technological verification at ILK TU Dresden. The obtained plate had a regular shape, without casting defects on its surface. On metallographic specimens, good filling of the space between fibres with the matrix metal and a continuous connection on the fibres-matrix interface were observed. The obtained research results justify the application of nickel coatings on the fibres, which, coupled with suitable alloy modification, should enable obtaining a composite which will meet the project assumptions including, first of all, appropriate technological and strength properties. Presented results are part of realized investigations in project "3D-textile reinforced aluminium matrix composites (3D-CF/Al-MMC) for complex stressed components in automobile applications and mechanical engineering" in frames of programme DFG.

Keywords: aluminium matrix composites (AIMMC), carbon fibres, wettability, modification of base alloy

WPROWADZENIE

Kompozyty o osnowie stopów aluminium (AlMMC) są grupą materiałów coraz częściej wykorzystywanych w nowoczesnych konstrukcjach inżynierskich. Kompozyty zbrojone cząstkami ceramicznymi (Al_2O_3 , SiC) są stopniowo wdrażane do produkcji przede wszystkim ze względu na dużą odporność na zużycie poprzez tarcie [1]. W ostatnich latach coraz większe zainteresowanie wielu ośrodków badawczych koncentrowane jest na włóknach węglowych jako fazie umacniającej stopy aluminium. Kompozyty o osnowie stopów aluminium zbrojone włóknem węglowym (AlMMC/CF) charakteryzują się wysoką sztywnością, wytrzymałością właściwą oraz niskim współczynnikiem rozszerzalności cieplnej i wysokim współczynnikiem przewodnictwa cieplnego i elektrycznego. Materiały te mogą być wytwarzane z wykorzystaniem procesów w stanie stałym, półstałym oraz ciekłofazowym. Ze względu na niskie koszty i szeroki zakres możliwości kształtowania wyrobów technologie ciekłofazowe wydają się być korzystne do zastosowania [2]. Podstawowym problemem, jaki napotyka się w metodach wytwarzania kompozytów z udziałem fazy ciekłej, jest słaba zwilżalność w układzie Al-C w temperaturze przetwórstwa stopów aluminium ($700\div 800^\circ C$). Może to prowadzić do nierównomiernego rozkładu faz zbrojących w osnowie Al-Si-Mg oraz mikrosegregacji składników stopowych (Mg i Si) w ostatniej fazie krzepnięcia stopu [3]. Zwiększenie temperatury powyżej $900^\circ C$ poprawia zwilżalność w wyniku reakcji pomiędzy aluminium i włóknem węglowym, lecz produktem reakcji jest krucha faza węgla aluminium, która ulega rozpadowi w środowisku wilgotnym, niszcząc strukturę materiału kompozytowego. Jedną z możliwości poprawy połączenia na granicy włókno-osnowa jest modyfikacja stopu osnowy oraz modyfikacja powierzchni włókien poprzez wytworzenie powłok ochronnych, które poprawią także zwilżanie w kontakcie z ciekłym metalem [4]. Taką rolę spełniają niereaktywne pirolityczne powłoki węglowe zabezpieczające włókna przed reakcją z ciekłym Al, a także powłoki miedziane lub niklowe. Powłoki Ni nakładane bezprądowo na włókna węglowe poprawiają zdecydowanie zwilżalność oraz ograniczają możliwość powstawania fazy Al_4C_3 [5, 6]. Jednak w kontakcie z ciekłym aluminium mogą tworzyć się na granicy włókno-osnowa kruche fazy międzymetaliczne z układu Al-Ni. Fazy Al_3Ni zwiększają twardość i moduł sprężystości kompozytu, jednak ograniczają jego odkształcalność [7]. Aby ograniczyć to oddziaływanie, wymagany jest jak najkrótszy kontakt ciekłego metalu z preformą węglową. Możliwość w ograniczeniu reaktywności w układzie Al-C daje modyfikacja składu chemicznego stopu osnowy. Sprzyja temu obecność krzemu w osnowie aluminium, a ograniczeniu rozpuszczalności powłoki niklowej - zwiększenie udziału Ni, który zwiększa twardość i wytrzymałość w podwyższonej temperaturze oraz zmniejsza rozszerzalność cieplną. Natomiast dodatki Mg, Li lub Na obniżają

napięcie powierzchniowe oraz zmniejszają kąt zwilżania. Celem badań realizowanych w Katedrze Technologii Stopów Metali i Kompozytów w ramach programu DFG „Kompozyty o osnowie aluminiowej ze wzmocnieniem tekstylnym typu 3-D (3D-CF/Al-MMC) dla elementów podlegających złożonym obciążeniom w przemyśle samochodowym i w budowie maszyn” jest dobór składu stopu osnowy z uwzględnieniem warunków sycenia preform CF. Przyjęte w realizacji projektu założenia technologiczne (odlewanie ciśnieniowe, infiltracja gazowa) wymagają, aby stop osnowy zawierał również dodatek żelaza. Dodatkowo udział miedzi w składzie stopu osnowy powinien sprzyjać umocnieniu w czasie obróbki cieplnej kompozytu.

BADANIA EKSPERYMENTALNE

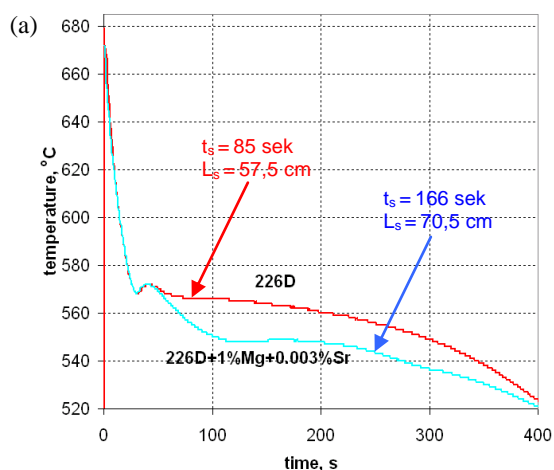
Realizacja procesu sycenia preform węglowych w technologii gazowej infiltracji wymaga, aby stop osnowy spełniał szereg wymagań zarówno w stanie stałym, jak i w stanie ciekłym. Z tego punktu widzenia przyjęto założenie, że modyfikacja będzie miała na celu przede wszystkim zwiększenie zdolności ciekłego stopu do wypełnienia formy oraz uzyskanie korzystnego rozdrobnienia struktury, co będzie sprzyjać podwyższeniu wytrzymałości stopu w stanie po odlaniu. Wstępnie założono, że efekty takie możliwe będą do osiągnięcia przez dodatki tytanu, boru oraz magnezu i strontu. Jako materiał bazowy wykorzystano stop AlSi9Cu(Fe) produkcji Grupy Kęty S.A. o oznaczeniu 226D wg normy EN 1204. Wcześniejsze badania przedstawione w pracy [8] potwierdziły, że dodatek 0,5% Ti+0,1% B+0,03% Sr (w stosunku wagowym) pozwala na wydłużenie czasu krzepnięcia stopu, co powinno sprzyjać procesowi sycenia porowatej preformy. Natomiast wzbogacenie stopu 226D o 2% wag. Mg obniża temperaturę końca krystalizacji, co z kolei powinno ograniczyć niekorzystne przegrzewanie włókien węglowych i ograniczyć procesy tworzenia kruchych faz z układów Al-C i Al-Ni. Jednak w tym przypadku zaobserwowano znaczne obniżenie właściwości wytrzymałościowych stopu po odlaniu. Uwzględniając specyfikę procesu infiltracji gazowej realizowanego w Instytucie Konstrukcji Lekkich i Technologii Polimerowych (ILK TU Dresden), przygotowano stop 226D zmodyfikowany 1% Mg i 0,03% Sr. Do modyfikacji składu chemicznego wykorzystano zaprawy AlMg25% i AlSr10% dostarczone przez Instytut Metali Nieżelaznych OML w Skawinie. Skład stopu bazowego oraz po modyfikacji określono spektrometrem DV6S w IMN OML (tab. 1).

Przygotowanie stopu bazowego oprócz modyfikacji obejmowało również jego rafinację i odgazowanie. Proces ten realizowano w piecu umożliwiającym topienie metalu w warunkach obniżonego ciśnienia z przedmuchem gazu [9]. W tym celu wykorzystano Ar 5,0, którym

w czasie topienia stopu przedmuchiwało komorę w cyklu obniżania ciśnienia do 50 kPa i późniejszego wypełnienia jej gazem do ciśnienia 90 kPa. Cykl taki realizowano przez 30 min w temperaturze 720°C. Następnie wprowadzono modyfikatory i powtórzono proces odgazowania przez 15 minut. Wpływ wybranych modyfikatorów na proces krzepnięcia stopu oceniono w próbie krzepnięcia w znormalizowanych próbnikach termoelektrycznych. Stop z dodatkiem 1% Mg i 0,03% Sr krzepł w czasie 166 s prawie dwukrotnie dłużej niż stop bazowy 226D. Natomiast do oceny zdolności stopu do wypełnienia wnęki formy wykorzystano spiralną próbę lejućności. Porównanie czasu krzepnięcia oraz lejućności stopu przed i po modyfikacji przedstawiono na rysunku 1.

TABELA 1. Skład chemiczny stopów
TABLE 1. Chemical composition of alloy

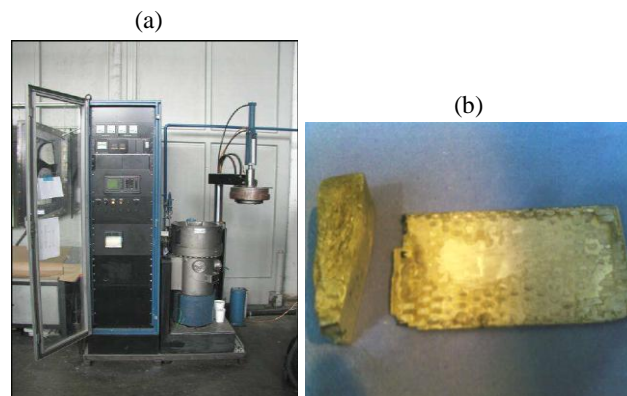
Składnik % wag.	Si	Fe	Cu	Mg	Ni	Ti	B	Sr
226D	9,82	0,603	3,225	0,431	0,352	0,031	0,0011	<0,0001
226D+1Mg+ +0,03Sr	9,23	0,813	3,247	1,848	0,417	0,003	0,0016	0,0379



Rys. 1. Krzywe krzepnięcia (a) i próba lejućności (b) stopu bazowego 226D, (c) stopu po modyfikacji 226D+1%Mg+0,03% Sr

Fig. 1. Solidification curves (a) and castability test (b) base 226D alloy, (c) modified 226D+1%Mg+0.03% Sr alloy

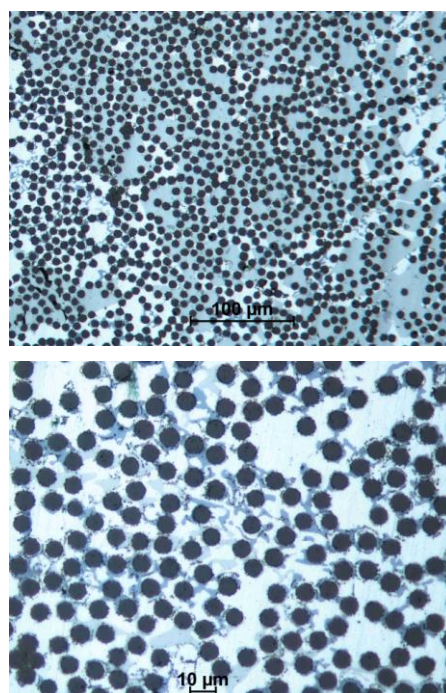
Próby gazowej infiltracji (ang. *gas pressure infiltration, GPI*) preformy 2D wplecionej z włókien z powłoką niklową HTS 40 A23 12K wykonano we współpracy z ILK TU Dresden, warunki procesu infiltracji przedstawiono w pracy [10]. Wytworzona próbka kompozytowa (CF/AlMMC) charakteryzowała się regularnym kształtem, bez widocznych wad odlewniczych, na powierzchni widoczny był układ splotu preformy (rys. 2).



Rys. 2. Stanowisko do sycenia metodą GPI ILK TU Dresden (a) oraz próbka - kompozyt CF/AlMMC (b)

Fig. 2. (a) GPI device at ILK TU Dresden, (b) CF/AlMMC specimen

Zarówno analiza makroskopowa, jak i obserwacje mikrostruktury (rys. 3) potwierdziły możliwość infiltracji porowatej struktury preformy 2D CF przez modyfikowany stop AlSi9Cu(Fe) - 226D+1%Mg+0,03%Sr. Ciekły metal wysycił obszary pomiędzy wiązkami tkaniny, nie deformując jej splotu. Powierzchnia kontaktu pomiędzy włóknami a osnową nie wykazuje nieciągłości, co potwierdza dobrą zwilżalność włókien przez zmodyfikowany stop.



Rys. 3. Mikrostruktura kompozytu CF/AlMMC (MS)

Fig. 3. Microstructure CF/AlMMC (LM)

PODSUMOWANIE

Przyjęte założenia dotyczące modyfikacji składu chemicznego bazowego stopu AlSi9Cu(Fe) zostały potwierdzone w warunkach procesu infiltracji gazowej. Dodatek Mg i Sr poprawia warunki zwilżania w układzie Al-C, sprzyjając wysyceniu struktury preformy węglowej (2D CF) przez ciekły metal. Przedstawione wyniki badań są fragmentem projektu międzynarodowego realizowanego przez Politechnikę Warszawską, Politechnikę Śląską wraz z Instytutem Odlewnictwa w Krakowie i Politechnikę Wrocławską oraz ILK TU Dresden i ZMP Erlangen. Celem zadań realizowanych w zespole Politechniki Śląskiej jest opracowanie składu chemicznego stopu na osnovę kompozytu Al-włókno węglowe. Uzyskane wyniki potwierdziły wstępne założenia modyfikacji stopu bazowego. Dalsze prace będą koncentrować się na doprecyzowaniu składu chemicznego z uwzględnieniem oddziaływania stopu osnovy z powłoką niklową na włóknach węglowych w różnych warunkach sycenia preform.

Podziękowania

Projekty międzynarodowe finansowane ze środków na naukę w latach 2008-2010 jako projekt badawczy 106/N/2008/0.

LITERATURA

- [1] Tjong S.C., Ma1 Z.Y., Microstructural and mechanical characteristics of in situ metal matrix composites, *Materials Science and Engineering* 2000, 29, 49-113.
- [2] Naji H., Zebarjad S.M., Sajjadi S.A., The effects of volume percent and aspect ratio of carbon fiber on fracture toughness of reinforced aluminium matrix composites, *Materials Science and Engineering A* 2008, 486, 413-420.
- [3] Etter T., Papakyriacou M., Schulz P., Uggowitzer P.J., Physical properties of graphite /aluminium composites produced by gas pressure infiltration method, *Carbon* 2003, 41, 1017-1024.
- [4] Urena A., Rams J., Escalera M.D., Sanchez M., Characterization of interfacial mechanical properties in carbon fiber/ aluminium matrix composites by the nanoindentation technique, *Composites Science and Technology* 2005, 65, 2025-2038.
- [5] Urena A., Rams J., Escalera M.D., Sanchez M., Effect of copper electroless coatings on the interaction between a molten Al-Si-Mg alloy and coated short carbon fibres, *Composites: Part A* 2007, 38, 1947-1956.
- [6] Rams J., Urena A., Escalera M.D., Sanchez M., Electroless nickel coated short carbon fibres in aluminium matrix composites, *Composites: Part A* 2007, 38, 566-575.
- [7] Silvain J.F., Heintz J.M., Lahaye M., Interface analysis in Al and Al alloys/Ni/carbon, *Composites, Journal of Materials Science* 2000, 35, 961-965.
- [8] Dolata-Grosz A., Dyzia M., Śleziona J., Influence of modification on structure, fluidity and strength of 226D aluminium alloy, *Archives of Foundry Engineering* 2008, 8, Special Issue 3, 13-16.
- [9] Śleziona J., Dyzia M., Wieczorek J., Właściwości odlewnicze zawiesin kompozytowych AlSi-SiC, *Archiwum Odlewnictwa* 2006, 6, 22, 540-545.
- [10] Hufenbach W., Gude M., Czulak A., Śleziona J., Dolata-Grosz A., Dyzia M., Development of Textile-Reinforced Carbon Fibre Aluminium Composites Manufactured with Gas Pressure Infiltration Methods - AMME 2009 (w druku).