

# NGHIÊN CỨU NẤU CHẢY VÀ ĐÚC PHÔI HỢP KIM Al-Cu (2XXX) SỬ DỤNG KHUÔN ĐÚC GRAPHIT

## AN INVESTIGATION OF THE MELTING AND CASTING OF Al-Cu ALLOY INGOTS (2XXX) USING GRAPHITE MOLD

Nguyễn Linh Giang, Đỗ Lê Hưng Toàn\*, Nguyễn Bá Kiên

Trường Đại học Bách khoa - Đại học Đà Nẵng<sup>1</sup>

\*Tác giả liên hệ: dlhtoan@dut.udn.vn

(Nhận bài: 27/1/2022; Chấp nhận đăng: 11/3/2022)

**Tóm tắt** - Hợp kim Al-Cu thuộc nhóm hợp kim nhôm có thể nhiệt luyện và được sử dụng rộng rãi, đặc biệt trong công nghiệp ô tô và hàng không. Thành phần của đồng trong hợp kim Al-Cu ảnh hưởng trực tiếp đến các tính chất của hợp kim. Trong nghiên cứu này, chúng tôi đã chuẩn bị sáu mẫu phôi đúc hợp kim Al-Cu với thành phần của đồng khác nhau, sử dụng khuôn đúc graphit. Sử dụng phương pháp nhiễu xạ tia X (XRD) và kính hiển vi điện tử quét (SEM), nhóm nghiên cứu xác nhận đã đúc thành công hợp kim Al-Cu. Các hợp kim Al-Cu thu được sau khi đúc có thành phần từ khoảng 1-5%, với các nguyên tử Cu tạo nên dung dịch rắn với Al và phân bố đều trên các thoi đúc. Thành phần của đồng ảnh hưởng đến độ kết tinh và mật độ các khuyết tật trong cấu trúc tinh thể của nhôm alpha ( $\alpha$ -Al). Khi thành phần của đồng trong hợp kim tăng lên 5% các nguyên tử của đồng có xu hướng phân tách tại biên giới hạt và khi vượt quá giới hạn bão hòa pha trung gian  $Al_2Cu$  được tạo thành.

**Từ khóa** - đúc Hợp kim; hợp kim Al-Cu; khuôn graphit.

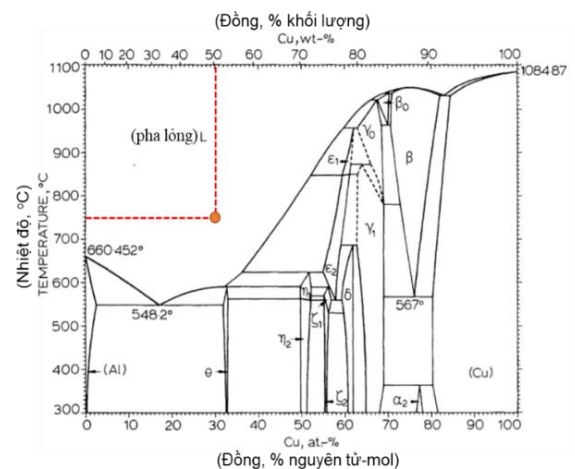
### 1. Đặt vấn đề

Hợp kim nhôm đã được sử dụng rộng rãi trong công nghiệp như công nghiệp ô tô hay hàng không, chủ yếu là nhờ tỉ lệ giữa độ bền và khối lượng lớn; Cụ thể hơn là nó có khối lượng rất nhẹ nhưng độ bền lại rất cao [1]-[4]. Các nguyên tố hợp kim chủ yếu được sử dụng để hợp kim hóa với nhôm là: Đồng (Cu), Magie (Mg), Liti (Li) Mangan (Mn), Silic (Si), Thiếc (Sn) và Kẽm (Zn), Sắt (Fe), Crom (Cr). Các hợp kim Al-Cu được dùng để thay thế thép trong hệ thống truyền lực của xe (Ví dụ: đầu xi lanh và khối động cơ). Sự thay thế này góp phần làm giảm trọng lượng của các loại xe trong ngành công nghiệp ô tô, làm tiết kiệm nhiên liệu tiêu thụ [3]. Trong công nghiệp hàng không, các hợp kim Al-Cu được ứng dụng để chế tạo vỏ, dầm cánh và vách ngăn [4], [5]. Ngoài ra, các hợp kim Al-Cu còn được ứng dụng để chế tạo vây tên lửa [5]. Hợp kim Al-Cu có độ cứng và độ bền cao hơn so với các hợp kim có pha nền Al khác như Al-Si (4xxx), Al-Mn (3xxx), Al-Mg (6xxx). Đặc biệt, bằng phương pháp hóa bền kết tủa (nhiệt luyện) hợp kim Al-Cu có thể tăng được độ cứng, độ bền và độ dai đáng kể. Sau khi nhiệt luyện các chi tiết được chế tạo từ hợp kim Al-Cu có thể giữ được độ bền, độ dai ngay cả khi hoạt động trong môi trường nhiệt độ cao. Đây là ưu điểm quan trọng mà các hợp kim Al khác không có được [3], [4], [12]. Hợp kim nhôm đúc nhóm 2xxx có thể nhiệt luyện được, dựa trên các giản đồ pha Al-Cu. Các hệ hợp kim Al-Cu này có độ bền và độ cứng rất cao tại nhiệt độ phòng hoặc cao hơn (tới 250°C). Việc thêm đồng vào hợp kim Al-Cu này sẽ làm

**Abstract** - Al-Cu alloy is a type of aluminum heat-treatable one that has been used widely in the aerospace and automobile industries. The composition of Cu in the Al-Cu alloy has direct influences on their properties. In this study, we prepared a series of Al-Cu alloy ingots with different copper composition, using graphite mold. By using the XRD and SEM characterization technique, we showed that the Al-Cu alloy has been successfully cast. The as-cast Al-Cu alloys have a composition of about 1-5%, with Cu atoms forming a solid solution with Al and uniformly dispersed over the ingots. The mass content of Cu affects the crystallinity and the density of defects in the crystal structure of the  $\alpha$ -Al. Besides, when the mass content of copper in the alloys increased to 5%, the copper atoms segregate at the grain boundary, and when it exceeded the saturation limit, the  $Al_2Cu$  intermediate phase is formed.

**Key words** - Casting; Al-Cu alloy, graphite mold.

tăng đáng kể độ bền của hợp kim và làm cho quá trình hóa bền kết tủa dễ dàng hơn [3], [5]. Khi đồng được đưa vào, pha kém ổn định  $\theta'$ - $Al_2Cu$  là pha hóa bền kết tủa chính trong hợp kim Al-Cu tại nhiệt độ cao trong khoảng nhiệt độ (190 – 230°C) [6]. Pha  $\theta'$ - $Al_2Cu$  kết tủa thô theo thời gian tại nhiệt độ cao, tiếp theo là sự chuyển biến thành pha  $\theta$ - $Al_2Cu$  phân tán nhỏ mịn hơn ở trạng thái cân bằng [2], [3], [7]. Thành phần phần trăm của Cu trong hợp kim ảnh hưởng trực tiếp đến thành phần, kích thước hạt, sự phân bố của pha  $Al_2Cu$  và do đó ảnh hưởng trực tiếp đến cơ tính của hợp kim Al-Cu.



**Hình 1.** Giản đồ pha của hợp kim Al-Cu [8]

<sup>1</sup> The University of Danang - University of Science and Technology (Nguyen Linh Giang, Do Le Hung Toan, Nguyen Ba Kien)

Quá trình nấu chảy và đúc hợp kim Al-Cu gặp nhiều khó khăn bởi vì sự khác nhau trong nhiệt độ nóng chảy của nhôm (~ 660°C) và đồng (~ 1085°C), như mô tả trong Hình 1. Trong bài báo này, nhóm tác giả nghiên cứu việc nấu chảy và đúc những phôi hợp kim Al-Cu (khối lượng đồng chiếm tới 5%), sử dụng khuôn đúc graphit. Những ưu điểm chính của khuôn graphit là độ chính xác cao, dễ gia công chế tạo và chúng có chất lượng, độ chính xác bề mặt rất cao. Sử dụng các kết quả của nhiễu xạ tia X và kính hiển vi điện tử quét (SEM), xác nhận những phôi hợp kim Al-Cu được đúc thành công với những đặc tính mong đợi.

## 2. Thí nghiệm

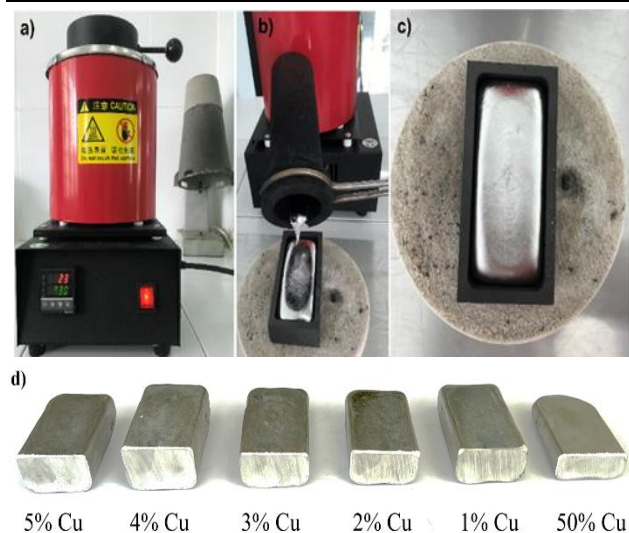
### 2.1. Vật liệu

Sáu mẫu hợp kim Al-Cu đã được tạo ra bằng cách nấu chảy từ nguyên liệu nhôm nguyên chất (~ 99,99%) và đồng nguyên chất (~ 99,99%).

Đầu tiên, hợp kim trung gian với 50% khối lượng đồng (kí hiệu là Al-50Cu) được chuẩn bị bằng cách nấu chảy một lượng tương ứng phù hợp của Al-Cu nguyên chất. Hợp kim trung gian tạo thành sau đó được phối liệu để đúc ra năm phôi hợp kim Al-Cu với thành phần phần trăm (theo khối lượng) khác nhau. Khối lượng của nhôm nguyên chất và hợp kim trung gian được tính toán có cân nhắc đến sự hao hụt về khối lượng trong quá trình nấu chảy và đúc phôi [9], kết quả được trình bày trong Bảng 1.

**Bảng 1.** Khối lượng tính toán các vật liệu cho quá trình nấu chảy.

Ký hiệu	Cu (%)	Al (g)	Al-50Cu (g)
Al-1Cu	1	156	4
Al-2Cu	2	153	7
Al-3Cu	3	150	10
Al-4Cu	4	190	17
Al-5Cu	5	159	18



**Hình 2.** (a) Lò đúc điện trở; (b) Quá trình rót hợp kim Al-Cu nấu chảy vào khuôn graphit; (c) Phôi đúc trong khi nguội và đông đặc; (d) Các sản phẩm phôi đúc với các thành phần % Cu khác nhau

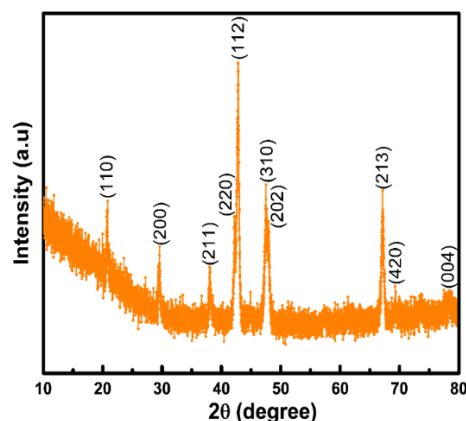
Quá trình nấu chảy sử dụng lò điện trở có nồi nấu chảy bằng vật liệu graphit, được mô tả như trong Hình 2a; Hình 2b mô tả quá trình rót hợp kim lỏng vào lòng khuôn graphit; Hình 2c thể hiện phôi đúc trong quá trình nguội và đông đặc. Giai đoạn xử lý loại bỏ khí hòa tan (sử dụng các khí trơ như Ar hay N<sub>2</sub>) trong quá trình nấu chảy hợp kim không được sử dụng. Hợp kim sau khi nấu chảy lỏng được rót vào lòng khuôn graphit, khuôn được nung nóng trước tới 100°C. Khuôn graphit có kích thước 90 mm x 40 mm x 20 mm (Dài x Rộng x Cao). Đối với hợp kim trung gian nhiệt độ nấu chảy ~ 750°C trong khoảng thời gian ~ 90 phút; Năm phôi hợp kim nhôm và đồng khác được nấu chảy ~ 730°C trong khoảng thời gian ~ 45 phút. Các sản phẩm thu được sau khi đúc được trình bày ở Hình 2d. Có thể quan sát rõ khi thành phần % của Cu là ~ 50%, phôi đúc Al-50Cu rất cứng, dễ bị vỡ khi gia công (cắt).

### 2.2. Các phương pháp phân tích

Tổ chức pha và cấu trúc tinh thể của tất cả hợp kim Al-Cu được xác định qua phân tích nhiễu xạ tia X (XRD, Rigaku, Nhật Bản) với bức xạ Cu K $\alpha$  ( $\lambda=1,5418$  Å). Thành phần các nguyên tố cấu thành nên hợp kim và sự phân bố của các nguyên tử trong các hợp kim Al-Cu được xác định bằng kính hiển vi điện tử quét (SEM, JEOL, JSM-IT200, Nhật Bản) được trang bị thêm thiết bị đo quang phổ phân tán năng lượng (EDS, Bruker, Đức).

## 3. Kết quả nghiên cứu và thảo luận

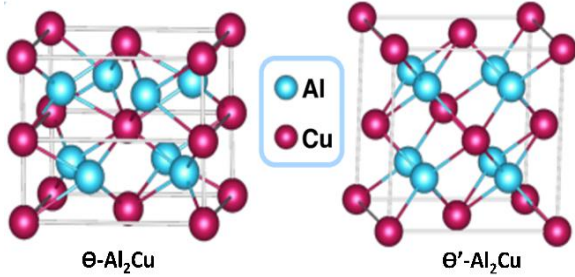
Dựa trên giản đồ trạng thái của Al-Cu trong Hình 1, nhóm tác giả chuẩn bị hợp kim trung gian cho quá trình nấu chảy của năm hợp kim Al-Cu khác nhau. Có thể thấy trong Hình 1, hợp kim trung gian (50% Cu) ở nhiệt độ 750°C tồn tại ở pha lỏng hoàn toàn. Nhóm tác giả phát hiện ra rằng, khi sử dụng hợp kim trung gian để nấu chảy, nhiệt độ nóng chảy của năm hợp kim Al-Cu có thể thấp hơn đến ~ 20°C (tức là nhiệt độ nấu chảy ~ 730°C) và thời gian nấu chảy cũng có thể giảm, dẫn đến giảm được sự cháy hao của kim loại (đặc biệt là kim loại nhôm) trong các quá trình nóng chảy và kết tinh.



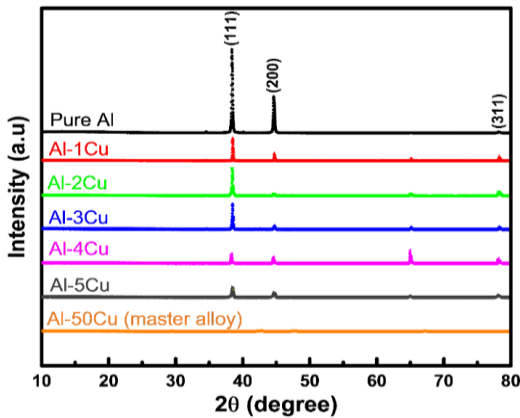
**Hình 3.** Kết quả phân tích nhiễu xạ tia X của hợp kim trung gian Al-50Cu

Tổ chức pha và cấu trúc tinh thể của tất cả các hợp kim được xác định qua kết quả nhiễu xạ tia X (XRD). Trong Hình 3, có thể thấy kết quả nhiễu xạ tia X của hợp kim trung gian, những đỉnh tại 20,9°; 29,4°; 38°; 42,1°; 42,7°; 47,5°; 47,9°; 67,1°; 69,3° và 78,3° tương ứng với các mặt

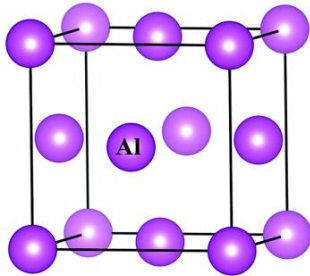
phẳng (110); (200); (211); (220); (112); (310); (202); (213); (420) và (004) của pha rắn trung gian  $\theta$ -Al<sub>2</sub>Cu (JCPDS 03-065-2695) [10], có cấu trúc thuộc hệ tinh thể chính phương như mô hình cấu trúc ở Hình 4. Kết quả XRD này chỉ ra rằng hợp kim có độ tinh khiết cao và nhất quán với giản đồ pha của hợp kim Al-Cu.



Hình 4. Mô hình cấu trúc tinh thể của các pha trung gian  $\theta$ -Al<sub>2</sub>Cu và  $\theta'$ -Al<sub>2</sub>Cu [11]



Hình 5. Kết quả nhiễu xạ tia X của các hợp kim Al-1Cu, Al-2Cu, Al-3Cu, Al-4Cu, Al-5Cu, và Al-50Cu



$\alpha$ -Al

Hình 6. Mô hình cấu trúc tinh thể của  $\alpha$ -Al

Để thấy rõ ảnh hưởng của đồng trong các hợp kim Al-Cu, các kết quả nhiễu xạ tia X của Al-1Cu, Al-2Cu, Al-3Cu, Al-4Cu, Al-5Cu, và Al-50Cu được so sánh và mô tả trong Hình 5. Có thể thấy, ngoại trừ hợp kim trung gian Al-50Cu, kết quả nhiễu xạ tia X của năm hợp kim Al-Cu còn lại thể hiện rõ hai đỉnh chính tại  $\sim 38,3^\circ$  và  $44,6^\circ$  tương ứng với các mặt phẳng (111) và (200) của  $\alpha$ -Al, có mô hình cấu trúc tinh thể như Hình 6 (JCPDS 01-089-4037). Theo định luật Bragg:

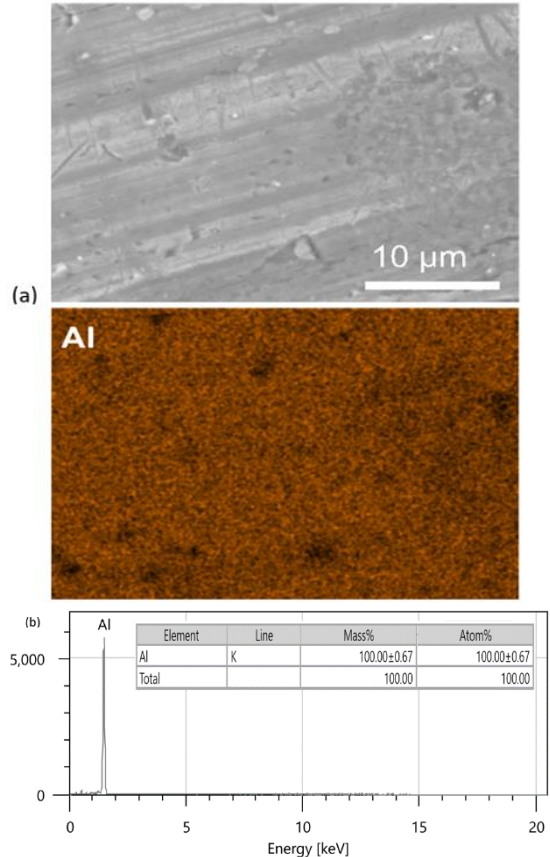
$$n\lambda = 2d\sin\theta \quad (1)$$

Trong đó:  $n$  là bậc phản xạ (trong trường hợp này  $n = 1$ );  $d$  khoảng cách giữa các mặt phẳng nguyên tử (Å);  $\theta$  là góc phản xạ (độ).

Thay số vào phương trình (1) ta tính được  $d(111) \approx 2,35$  Å và  $d(200) \approx 1,99$  Å là hoàn toàn phù hợp với các thông số mạng đã được tính toán của  $\alpha$ -Al [12].

Nhóm tác giả không nhận thấy các đỉnh của các pha khác, điều này chứng tỏ rằng, phần lớn các nguyên tử của nguyên tố hợp kim đồng đã tạo thành dung dịch rắn với nguyên tố dung môi nhôm [13], [14]. Phát hiện đáng chú ý ở đây là khi khối lượng đồng tăng lên từ 1% đến 5% thì cường độ của hai đỉnh chính giảm xuống. Điều này chứng tỏ, mạng tinh thể của  $\alpha$ -Al bị xô lệch và mật độ của các sai lệch tăng. Thêm vào đó, khi tỷ lệ của đồng là 50% thì một pha rắn mới là pha trung gian Al<sub>2</sub>Cu được hình thành và cường độ nhiễu xạ của nó khá thấp, có thể là do có độ tinh thấp hơn.

Để khẳng định một lần nữa các hợp kim Al-Cu đã được đúc thành công, nhóm tác giả đã sử dụng kính hiển vi điện tử quét (SEM) để xác định thành phần và sự phân bố của các nguyên tử trong các pha đã được đúc. Hình 7a thể hiện rõ vật liệu dùng trong quá trình nấu chảy là đồng chất. Kết quả phân tích EDX thể hiện rõ vật liệu có độ đồng nhất cao và chỉ có những nguyên tử nhôm được phát hiện, có thể thấy rõ ràng trong Hình 7b.



Hình 7. (a) Hình chụp SEM phân bố thành phần và (b) kết quả nhiễu xạ tia X của Al nguyên chất

Thành phần phân trăm theo khối lượng của Cu trong các hợp kim Al-Cu được sử dụng trong công nghiệp ô tô và hàng không thường rơi vào khoảng 3-5% [3-5]. Hình 8a thể hiện hình ảnh phân bố về thành phần của hợp kim Al-5Cu. Có thể thấy, các nguyên tử của các nguyên tố Al và Cu được phân bố đồng đều trên toàn bộ mẫu, chứng tỏ rằng phần lớn các nguyên tử đồng đã tạo thành dung dịch rắn

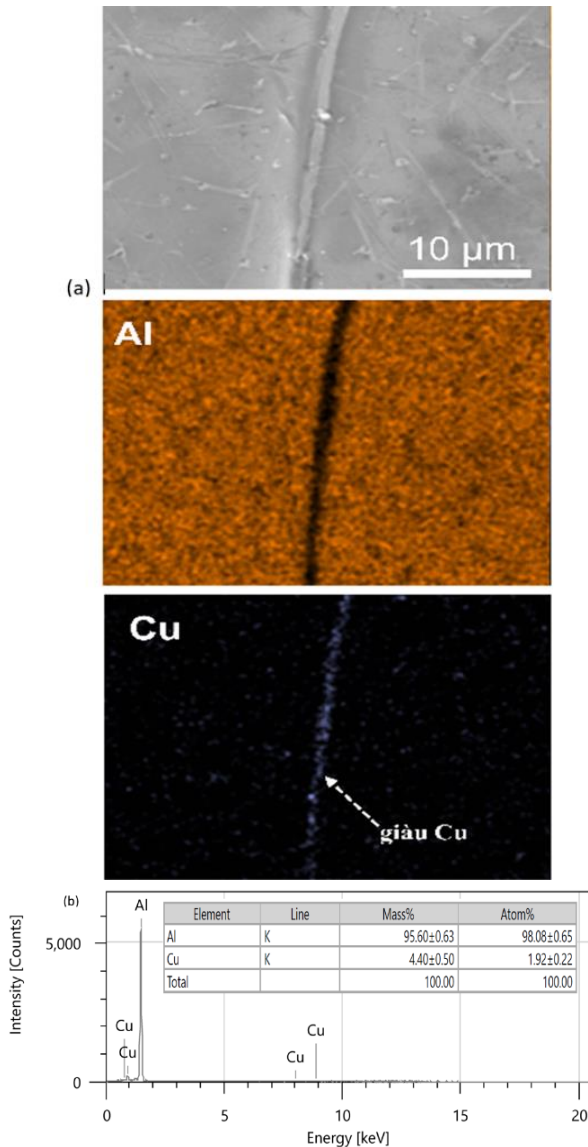
với Al. Quan trọng hơn, có thể thấy rõ những nguyên tử đồng phân tách tại biên giới hạt (giàu Cu), kết quả này đồng nhất với các báo cáo đã được công bố [2], [14]. Trong nghiên cứu này, tỉ lệ khối lượng của Cu trong hợp kim Al-Cu đạt  $4,4 \pm 0,5$  % (Hình 8b), chỉ ra rằng kết quả tính toán và quá trình nấu chảy là phù hợp và tạo ra được hợp kim theo yêu cầu.

đúc có bề mặt đạt chất lượng cao và chính xác. Dựa vào giản đồ pha của hệ Al-Cu, nhiệt độ nấu cho hợp kim trung gian được xác định là  $\sim 750^\circ\text{C}$  và cho năm hợp kim Al-Cu còn lại là  $\sim 730^\circ\text{C}$ . Khi thành phần theo khối lượng của Cu tăng từ 1% đến 5% thì độ kết tinh của nhôm alpha ( $\alpha$ -Al) giảm xuống và làm tăng mật độ của các sai lệch. Những nguyên tử Cu phân tách tại biên giới hạt của hợp kim Al-5Cu. Dựa trên những kết quả nghiên cứu khả quan mà nhóm tác giả đã đạt được, hướng nghiên cứu sắp tới của nhóm tác giả là dùng các phiôi hợp kim đã đúc thành công để nghiên cứu quy trình xử lý nhiệt với mục đích tăng cơ tính của các hợp kim này.

**Lời cảm ơn:** Bài báo này được tài trợ bởi Trường Đại học Bách khoa – Đại học Đà Nẵng với đề tài có mã số: T2021-02-30.

## TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] Dong, Xixi, et al., “Formation of Strength Platform in Cast Al–Si–Mg–Cu Alloys”, *Scientific Reports*, 9 (1), 2019, 1–11.
- [2] Mohammadreza Zamani, et al. “Study on Dissolution of  $\text{Al}_2\text{Cu}$  in Al-4.3Cu and A205 Cast Alloys”, *Metals*, 10 (7), 2020, 1–17.
- [3] Zamani, Mohammadreza, et al. “Optimisation of Heat Treatment of Al–Cu–(Mg–Ag) Cast Alloys”. *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, 139 (6), 2020, 3427–40.
- [4] Roger N. Lumley, *Fundamentals of Aluminium Metallurgy*, Woodhead Publishing Series in Metals and Surface Engineering, 2018.
- [5] Alcotec, “How and why alloying elements are added to aluminum”., *AlcoTec*, 2015, [www.alcotec.com/us/en/education/knowledge/qa/How-and-why-alloying-elements-are-added-to-aluminum.cfm#](http://www.alcotec.com/us/en/education/knowledge/qa/How-and-why-alloying-elements-are-added-to-aluminum.cfm#), 1/10/2022.
- [6] Zhang, Xuemei, “Effects of Local Geometry Distortion at the Al/ $\text{Al}_2\text{Cu}$  Interfaces on Solute Segregation”, *Physical Chemistry Chemical Physics*, 22 (7), 2020, 4106–14.
- [7] M.A. Talamantes-Silva, et al., “Characterization of an Al-Cu Cast Alloy”, *Materials Characterization*, 59 (10), 2008, 1434–39.
- [8] Murray, J. L., “The Aluminium-Copper System”. *International Metals Reviews*, 30 (5), 1985, 211–33.
- [9] Đào Tuấn Nguyên, “Nghiên cứu nấu luyện và chế tạo thời đúc hợp kim nhôm B96u-1 bằng công nghệ đúc bán liên tục cho một số ứng dụng đặc biệt”, *Journal of science and technology of metals*, 65, 2016, 38-42.
- [10] Meetsma, A., et al., “Refinement of the Crystal Structure of Tetragonal  $\text{Al}_2\text{Cu}$ ”. *Journal of Solid State Chemistry*, 83 (2), 1989, 370–72.
- [11] Wolverton, C., “Entropically Favored Ordering: The Metallurgy of  $\text{Al}_2\text{Cu}$  Revisited”, *Physical Review Letters*, 86 (24), 2001, 5518–21.
- [12] SumitBahl, et al. “Aging Behavior and Strengthening Mechanisms of Coarsening Resistant Metastable  $\theta'$  Precipitates in an Al–Cu Alloy”, *Materials and Design*, 198 (109378), 2021, 1–12.
- [13] Anggoro, B. S., et al., “The Influence of Cu Doped on Structure and Mechanical Properties of Aluminium Material”. *MATEC Web of Conferences*, 197 (02009), 2018, 1–3.
- [14] Çadırlı, Emin, et al., “Effect of heat treatment on the microstructures and mechanical properties of Al–4Cu–1.5Mg alloy”, *International Journal of Metalcasting*, 2021, 1–14.



**Hình 8.** (a) Hình chụp SEM, phân bố thành phần và (b) kết quả nhiễu xạ tia X của hợp kim Al-5Cu

## 4. Kết luận

Trong nghiên cứu này, nhóm tác giả đã nấu chảy và đúc thành công sáu phiôi hợp kim Al-Cu trong khuôn đúc graphit. Với việc sử dụng khuôn đúc graphit, những phiôi