

# PHƯƠNG PHÁP QUY HOẠCH THỰC NGHIỆM TRONG TỐI ƯU HÓA CHẾ ĐỘ XỬ LÝ NHIỆT TĂNG CƯỜNG ĐỘ CỨNG CỦA HỢP KIM ĐỒNG

## EXPERIMENTAL PLANNING METHOD IN OPTIMIZING HEAT TREATMENT PARAMETERS TO INCREASE HARDNESS OF COPPER ALLOYS

VŨ ANH TUẤN\*, NGUYỄN HẢI YẾN

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

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

### Tóm tắt

Bài báo đã sử dụng phương pháp quy hoạch thực nghiệm để tìm ra chế độ tối ưu hóa trong quy trình hóa già nhằm nâng cao độ cứng bề mặt của hợp kim đồng CuAl9Fe4 và CuAl9Fe4Ni2. Trong thiết kế thí nghiệm thực nghiệm, mười hai mẫu sau khi tôi được hóa già ở các nhiệt độ 250°C, 350°C, 450°C và 550°C trong khoảng thời gian từ 1-3 giờ, sau đó tiến hành thống kê số liệu về độ cứng của vật liệu. Kết quả thu được từ nghiên cứu được thể hiện thông qua hàm biểu diễn độ cứng phụ thuộc vào nhiệt độ và thời gian cho hai nhóm mẫu khác nhau. Độ cứng tối ưu đạt được cho hợp kim CuAl9Fe4 là 92,2HRB khi thực hiện hóa già tại nhiệt độ 354°C trong thời gian 2,21 giờ và hợp kim CuAl9Fe4Ni2 là 382°C trong khoảng 2,03 giờ. Kết quả hoàn toàn phù hợp với thực nghiệm và phân tích ảnh hưởng vi cấu trúc tế vi thu được.

**Từ khóa:** Quy hoạch thực nghiệm, Hàm độ cứng phụ thuộc nhiệt độ và thời gian, hợp kim đồng, hóa già.

### Abstract

The experimental planning method was used to find the optimal parameters in the aging process to improve the surface hardness of CuAl9Fe4 and CuAl9Fe4Ni2 copper alloys. In the experimental design, twelve samples after hardening were aged at temperatures of 250°C, 350°C, 450°C and 550°C for 1 to 3 hours, and statistical data on the hardness values of these samples were collected. The results obtained from the study were expressed through the hardness function depending on temperature and time for two different groups of samples. The optimal hardness achieved for CuAl9Fe4 alloy is 92.2 HRB when aging at 354°C for 2.21 hours and CuAl9Fe4Ni2 alloy aging at 382°C for about 2.03 hours. The results are completely consistent with the experiments and the analysis of the obtained microstructures.

**Keywords:** Experimental planning, The function Hardness depends on temperature and time, copper alloys, aging.

### 1. Mở đầu

Vào giữa những năm 1800, hợp kim đồng nhôm ra đời dựa trên cơ sở đồng với nguyên tố hợp kim chính là nhôm chiếm khoảng 4%-14%. Ngoài ra, hợp kim còn chứa một lượng nhỏ các nguyên tố khác như Ni, Mn, Si, Fe để đáp ứng các yêu cầu đa dạng về độ bền, độ dẻo, độ cứng, tính chống ăn mòn, tính chống mài mòn khi kết hợp với quy trình gia công và xử lý nhiệt. Trong các sản phẩm được làm từ hợp kim đồng, giá trị độ cứng có vai trò quan trọng trong việc tăng khả năng chịu mài mòn bề mặt dưới tác động của lực ma sát hoặc dưới tác động của môi trường. Bên cạnh đó, giá trị độ cứng còn được sử dụng để tính sơ bộ giá trị độ bền của vật liệu [1]. Cahoon và cộng sự [2, 3] đã đề xuất công thức ước tính giới hạn bền và giới hạn chảy sử dụng phép đo độ cứng đơn giản cho đồng, nhôm và thép dưới dạng như sau:

$$UTS = \left( \frac{H}{2.9} \right) \left( \frac{n}{0.217} \right)^n$$

$$UTS = \left( \frac{H}{3} \right) \left( \frac{1}{10} \right)^n$$

Trong đó: UTS: Giới hạn bền, YS: Giới hạn chảy, H: Độ cứng, n: Hệ số biến dạng độ cứng của vật liệu.

Để tăng cường độ cứng của hợp kim đồng có rất nhiều phương pháp khác nhau, trong đó xử lý nhiệt là một trong các biện pháp mang lại hiệu quả cao. Tuy nhiên, nếu không kiểm soát tốt được nhiệt độ, thời gian và môi trường nguội thì có thể ảnh hưởng tới cơ tính và giảm độ cứng của vật liệu [4]. Khác với thép, nhiệt độ ram cho hợp kim đồng thanh nhôm cao hơn nhiệt độ chuyển biến thông thường và thường rơi vào khoảng 565°C-675°C trong 2 giờ, sau đó nguội nhanh để tránh xảy ra phân hóa pha  $\beta$  mactenxit (là pha còn tồn tại sau khi ram) để hình thành nên các pha giòn ( $\alpha + \gamma_2$ ) và điều này làm giảm

**Bảng 1. Bảng thành phần hóa học của vật liệu**

Vật liệu	Al	Mn	Fe	Ni	Sn	Zn	Pb	Si	Cu
CuAl9Fe4	9.2	0.1	3.9	0.145	0.278	0.961	0.217	0.208	Còn lại
CuAl9Fe4Ni2	9.39	0.16	4.97	2.45	0.03	0.10	0.08	0.06	Còn lại

**Bảng 2. Giá trị của các thông số đầu vào kiểm soát**

Thông số đầu vào	Đơn vị	Giá trị lựa chọn
Nhiệt độ	°C	250, 350, 450, 550
Thời gian giữ nhiệt	Phút	1 giờ, 2 giờ, 3 giờ

độ dẻo, độ giãn dài của vật liệu, đồng thời giảm giới hạn bền, độ dai va đập cũng như khả năng chống ăn mòn của vật liệu [5]. Trong nghiên cứu của Yuting Lv và cộng sự [6], khi áp dụng quy trình xử lý nhiệt ở 675°C cho hợp kim đồng nhôm hợp kim thêm hóa thêm niken và sắt, sau đó ủ trong hai giờ sẽ làm giảm độ cứng của vật liệu. Tuy nhiên, nếu kéo dài thời gian ủ lên bốn giờ thì độ cứng giữa các pha đồng đều nhau. Để tăng giá trị độ cứng, một số nghiên cứu đã áp dụng cả biện pháp xử lý nhiệt kết hợp với hợp kim hóa thêm các nguyên tố. Theo W.S. Li, khi cho thêm Fe, Mn, Ni kết hợp xử lý nhiệt sẽ làm tăng pha  $\kappa$  với độ cứng của hợp kim đồng nhôm lên tới trên 700HV, tăng hơn 3 lần so với pha  $\alpha$  - dung dịch rắn giàu đồng và gấp hai lần so với pha  $\beta$  - dung dịch rắn  $\text{Cu}_3\text{Al}$  [7]. Từ các kết quả thu được cho thấy, trong quy trình xử lý nhiệt, nhiệt độ và thời gian có vai trò quan trọng tới độ cứng sau cùng của sản phẩm. Tuy nhiên, rất ít có các nghiên cứu đưa ra được mối liên hệ mô hình toán học giữa các thông số này.

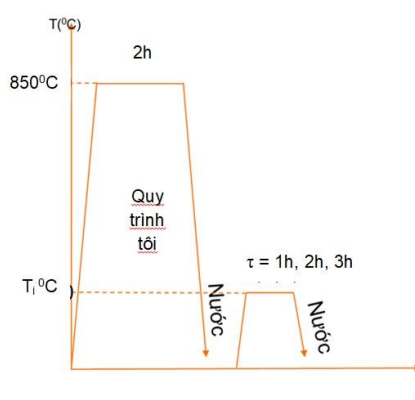
Mục tiêu của nghiên cứu này là xây dựng hàm số biểu diễn độ cứng phụ thuộc vào nhiệt độ và thời gian trong quy trình hóa già của hợp kim đồng nhôm dựa trên kết quả quy hoạch thực nghiệm.

## 2. Thiết kế thí nghiệm

Đối tượng nghiên cứu là hai nhóm hợp kim đồng gồm CuAl9Fe4 và CuAl9Fe4Ni2. Thành phần hóa học của các mẫu được cho trong Bảng 1. Trong số liệu đầu vào, hai thông số được lựa chọn để thay đổi là nhiệt độ hóa già và thời gian hóa già cho các mẫu sau khi tôi. Thông số đầu ra là giá trị độ cứng của bề mặt của mẫu thử. Giá trị các biến kiểm soát đầu vào được cho trong Bảng 2.

Phương pháp bề mặt đáp ứng (RSM) và phần mềm design expert được sử dụng để tính toán số lượng mẫu thử trong quy hoạch thực nghiệm. Ký hiệu mã mẫu thử và thông số được đưa ra trong Bảng 3. Tổng cộng có 24 mẫu được thực hiện với dải nhiệt độ biến đổi từ 250°C-550°C và thời gian giữ nhiệt từ

1 giờ đến 3 giờ, trong đó 12 mẫu dành cho hợp kim CuAl9Fe4 và 12 mẫu cho hợp kim CuAl9Fe4Ni2. Sơ đồ nhiệt luyện được biểu diễn trong Hình 1.



**Hình 1. Sơ đồ quy trình nhiệt luyện**

Để tổng hợp dữ liệu về sự thay đổi độ cứng sau khi áp dụng các điều kiện xử lý nhiệt khác nhau, các mẫu được làm sạch và đo độ cứng tại ít nhất ba điểm khác nhau trên mẫu thử dạng trụ đường kính 20mm, cao 15mm (Hình 2). Sau đó tính giá trị trung bình và loại bỏ các giá trị có sai số lớn.



**Hình 2. Đo độ cứng mẫu thử**

Nghiên cứu đã tiến hành chụp ảnh tổ chức tế vi quang học để làm cơ sở giải thích sự thay đổi độ cứng của các mẫu. Dung dịch tẩm thực là 25g  $\text{FeCl}_3 + 25\text{ml HCl} + 100\text{ml H}_2\text{O}$ . Chụp ảnh tại các vị trí với mức độ phóng đại khác nhau để xác định các tổ chức pha hình thành.

### 3. Kết quả và hàm độ cứng

#### 3.1. Hàm số biểu diễn sự phụ thuộc của độ cứng vào nhiệt độ và thời gian đối với CuAl9Fe4

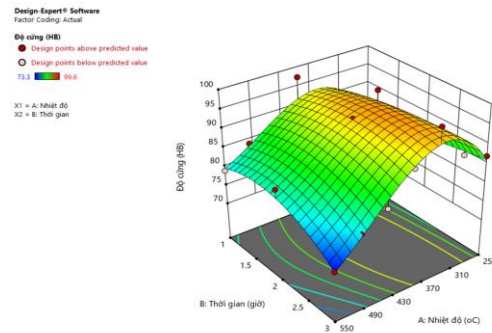
Giá trị độ cứng của mẫu sau tôi và 12 mẫu sau khi hóa già ở nhiệt độ và thời gian khác nhau được thu thập trong Bảng 3. Tính giá trị trung bình của các lần đo và lấy sau dấu phẩy hai chữ số. Theo kết quả thực tế cho thấy, độ cứng của mẫu sau tôi đạt 86,17HRB. Nếu áp dụng hóa già sau tôi ở nhiệt độ thấp 250°C thì độ cứng của mẫu giảm nhẹ. Khi tăng nhiệt độ hóa già lên 350°C, độ cứng tăng dần và đạt giá trị cao nhất ở 350°C trong 2 giờ. Tiếp tục tăng nhiệt độ, độ cứng sẽ giảm dần.

**Bảng 3. Bảng thống kê giá trị độ cứng tại các vị trí đo khác nhau của mẫu CuAl9Fe4**

HRB	Độ cứng			Độ cứng TB
	lần đo 1	lần đo 2	lần đo 3	
Ban đầu	85	88	85.5	86.17
250 °C - 1h	81	82.5	81.5	81.67
250 °C - 2h	84	84	86	84.67
250 °C - 3h	86	87	88	87.00
300 °C - 1h	87	86	87	86.67
300 °C - 2h	89	88.5	88	88.50
300 °C - 3h	91	89	89	89.67
350 °C - 1h	91	89	90	90.00
<b>350 °C - 2h</b>	<b>100</b>	<b>100</b>	<b>99</b>	<b>99.67</b>
350 °C - 3h	98	99	99.5	98.83
400 °C - 1h	97	97	98	97.33
400 °C - 2h	95	95	94	94.67
400 °C - 3h	91	92	90	91.00
450 °C - 1h	85	86	87.5	86.17
450 °C - 2h	90	90	91	90.33
450 °C - 3h	85.5	82	83.5	83.67
500 °C - 1h	84	85	83	84.00
500 °C - 2h	83	82	81	82.00
500 °C - 3h	81	79	80	80.00
550 °C - 1h	80	78	79	79.00
550 °C - 2h	82	85	84	83.67
550 °C - 3h	74	73	73	73.33

Hàm số thể hiện mối quan hệ giữa độ cứng với nhiệt độ và thời gian như sau:

$$\text{Độ cứng} = -112.117 + 1.4057A - 4.60714 B + 0.0387857 AB - 0.00317476 A^2 + 3.22143 B^2 - 0.0149286 AB^2$$



**Hình 3. Đồ thị biểu diễn giá trị độ cứng của hợp kim CuAl9Fe4 theo nhiệt độ và thời gian**

Khảo sát kết quả thống kê cho thấy:

Độ lệch Std.	3.31	R <sup>2</sup>	0.8414
Trung bình	87.20	R <sup>2</sup> điều chỉnh	0.7560
C.V. %	3.80	R <sup>2</sup> dự đoán	0.6330

**Độ chính xác Adeq 10.9309**

R<sup>2</sup> dự đoán là 0,6330 phù hợp hợp lý với R<sup>2</sup> điều chỉnh là 0,7560; tức là sự khác biệt nhỏ hơn 0,2. Độ chính xác Adeq đo tỷ lệ tín hiệu trên nhiễu. Tỷ lệ lớn hơn 4 là mong muốn. Tỷ lệ 10,931 của phương trình cho biết tín hiệu đủ. Mô hình này có thể được sử dụng để điều hướng không gian thiết kế.

Khảo sát lại hàm trên ta thu được giá trị độ cứng đạt cao nhất khi T=354°C trong thời gian t=2,21 giờ. Kết quả này hoàn toàn phù hợp với giá trị thực tế như phân tích ở trên.

#### 3.2. Hàm số biểu diễn giá trị độ cứng phụ thuộc vào nhiệt độ và thời gian của hợp kim CuAl9Fe4Ni2

Trong nhóm mẫu này, Ni được thêm vào 2% nhằm khảo sát ảnh hưởng của Niken tới độ cứng của vật liệu. Kết quả đo được thống kê trong Bảng 4. Tính giá trị trung bình của các lần đo lấy sau dấu phẩy hai chữ số.

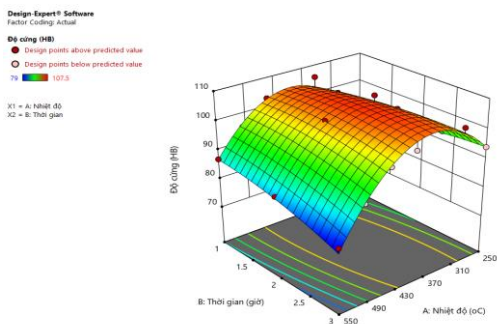
Theo kết quả thực tế cho thấy, độ cứng của mẫu có chứa Ni cao hơn, với giá trị sau tôi đạt 94,5HRB. Quy luật thay đổi độ cứng khi tăng nhiệt độ tương tự như đối với hợp kim CuAl9Fe4. Ban đầu, độ cứng có xu hướng tăng dần và đạt giá trị cao nhất ở nhiệt độ 350°C trong 2 giờ, sau đó độ cứng giảm nếu tiếp tục tăng nhiệt độ và thời gian hóa già.

Hàm số thể hiện mối quan hệ giữa độ cứng với nhiệt độ và thời gian như sau:

$$\text{Độ cứng} = -42.5429 + 0.678952A + 18.3 B - 0.0295714 AB - 0.000807619 A^2 - 1.71429 B^2$$

**Bảng 4. Bảng thống kê giá trị độ cứng tại các vị trí đo khác nhau của mẫu CuAl9Fe4Ni2**

HRB	Độ cứng			Độ cứng TB
	lần đo 1	lần đo 2	lần đo 3	
Ban đầu	94	94.5	95	94.50
250 °C - 1h	83	82	82.5	82.50
250 °C - 2h	90	93	92	91.67
250 °C - 3h	96	98	88	94.00
300 °C - 1h	98	99	97	98.00
300 °C - 2h	99	102	101	100.67
300 °C - 3h	103	104	102	103.00
350 °C - 1h	105	106	106.5	105.83
<b>350 °C - 2h</b>	<b>106.2</b>	<b>107.8</b>	<b>108.5</b>	<b>107.50</b>
350 °C - 3h	105	104.5	104	104.50
400 °C - 1h	104	105	102	103.67
400 °C - 2h	103	104	103	103.33
400 °C - 3h	102	101	100	101.00
450 °C - 1h	104	103	102	103.00
450 °C - 2h	103	104	105	104.00
450 °C - 3h	100	98	98	98.67
500 °C - 1h	97	96	94	95.67
500 °C - 2h	95	94	91	93.33
500 °C - 3h	90	89	91	90.00
550 °C - 1h	86	88	87	87.00
550 °C - 2h	84	84.5	85	84.50
550 °C - 3h	80	79	78	79.00



**Hình 4. Đồ thị biểu diễn giá trị độ cứng của hợp kim CuAl9Fe4Ni2 theo nhiệt độ và thời gian**

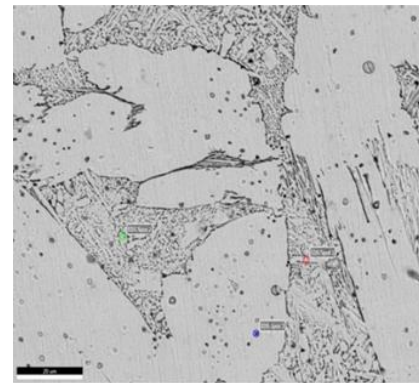
Khảo sát kết quả thống kê cho thấy:

<b>Độ lệch Std.</b>	2.02	<b>R<sup>2</sup></b>	0.9553
<b>Trung bình</b>	96.69	<b>R<sup>2</sup> điều chỉnh</b>	0.9404
<b>C.V. %</b>	2.09	<b>R<sup>2</sup> dự đoán</b>	0.9002
		<b>Độ chính xác Adeq</b>	26.5065

R<sup>2</sup> dự đoán là 0,9002 phù hợp hợp lý với R<sup>2</sup> điều chỉnh là 0,9404; tức là sự khác biệt nhỏ hơn 0,2. Độ chính xác Adeq đo tỷ lệ tín hiệu trên nhiễu. Tỷ lệ lớn hơn 4 là mong muốn. Tỷ lệ 26,507 của mô hình cho biết tín hiệu đủ. Mô hình này có thể được sử dụng để điều hướng không gian thiết kế.

Khảo sát lại hàm trên ta thu được giá trị độ cứng đạt cao nhất khi T=382°C trong thời gian t=2,03 giờ. Kết quả này hoàn toàn phù hợp với giá trị thực tế như phân tích ở trên.

### 3.3. Tổ chức tế vi và độ cứng của vật liệu



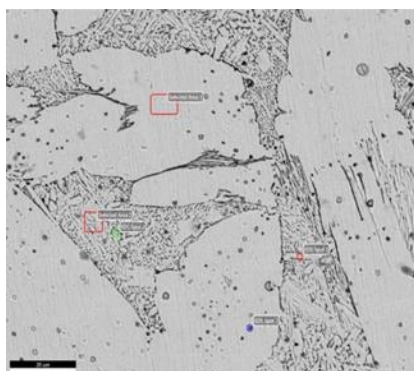
Spot 1			
STT	Nguyên tố	% Trọng lượng	% Nguyên tử
1	Cu	88.78	79.53
2	Al	8.28	17.47
3	Fe	2.94	2.99

Spot 2			
STT	Nguyên tố	% Trọng lượng	% Nguyên tử
1	Cu	26.93	24.26
2	Al	0.76	1.62
3	Fe	72.31	74.12

**Hình 5. Kết quả phân tích EDS của mẫu CuAl9Fe4 khi hóa già ở 350°C trong 2 giờ**

Hình 5, 6 là kết quả phân tích EDS của các mẫu CuAl9Fe4 hóa già ở 350°C và 450°C trong vòng 2 giờ để quan sát tổ chức hình thành và tỉ phần các pha thu được. Ở nhiệt độ 350°C xuất hiện nhiều pha liên kim phân tán đều trên bề mặt. Đây là nguyên nhân làm tăng độ cứng ở điều kiện này. Tuy nhiên, khi tăng nhiệt độ lên 450°C, thành phần Cu, Al, Fe tại các vùng màu sáng và tối tương tự nhau, nghĩa là các pha đã có sự phân hủy. Như vậy, khi hóa già ở nhiệt độ thấp, pha mactenxit sẽ phân hủy thành các pha α và các pha liên kim có kích thước nhỏ mịn phân tán ở trên nền làm giá trị độ cứng của hợp kim tăng lên.

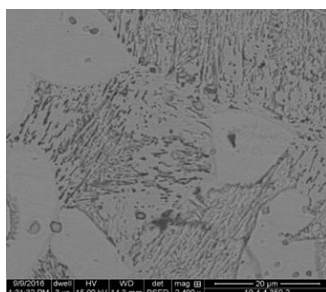




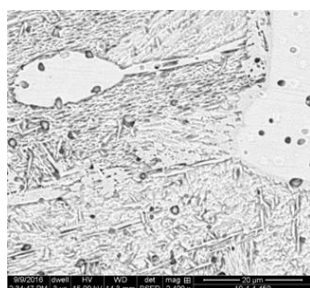
Area 1			
STT	Nguyên tố	% Trọng lượng	% Nguyên tử
1	Cu	88.29	79.78
2	Al	7.44	15.83
3	Fe	4.27	4.39

Area 1			
STT	Nguyên tố	% Trọng lượng	% Nguyên tử
1	Cu	85.74	76.96
2	Al	7.88	16.63
3	Fe	6.28	6.41

Hình 6. Kết quả phân tích EDS của mẫu CuAl9Fe4 khi hóa già ở 450°C trong 2 giờ



(a) 350°C



(b) 450°C

Hình 7. Kết quả phân tích EDS của mẫu CuAl9Fe4Ni2 khi hóa già ở 350°C và 45°C trong 2 giờ

Tuy nhiên, khi tăng nhiệt độ lên 450°C và 550°C, hàm lượng pha  $\alpha$  tăng lên, điều này làm giảm độ

cứng của mẫu. Xét về yếu tố thời gian, ở nhiệt độ thấp, khi hóa già trong thời gian 1 giờ, cấu trúc của pha không có sự thay đổi nhiều so với ban đầu. Tuy nhiên, khi tăng nhiệt độ và thời gian lên 2 giờ, 3 giờ, các pha mactenxit bắt đầu bị phân hủy và lượng phân hủy ngày càng tăng lên, điều này làm giảm độ cứng của mẫu thử.

Hình 7 là hình ảnh SEM của mẫu CuAl9Fe4Ni2 hóa già ở 350°C và 450°C trong vòng 2 giờ. Kích thước pha  $\alpha$  nhỏ mịn và phân tán đều hơn trong nền khi ở nhiệt độ thấp. Khi tăng nhiệt độ, kích thước pha tăng lên đáng kể sẽ tác động tới độ cứng của vật liệu.

#### 4. Kết luận

Nghiên cứu đã tiến hành thiết kế thí nghiệm mẫu theo phương pháp bề mặt đáp ứng (RSM) và phần mềm design expert với thông số đầu vào là nhiệt độ và thời gian hóa già, đầu ra là độ cứng của mẫu thử. Dựa theo kết quả quy hoạch thực nghiệm, nghiên cứu đã đưa ra hàm số biểu diễn sự phụ thuộc của độ cứng vào thời gian và nhiệt độ hóa già, từ đó cho thấy độ cứng tối ưu đạt được cho hợp kim CuAl9Fe4 là 92,2HRB khi thực hiện hóa già tại nhiệt độ 354°C trong thời gian 2,21 giờ và hợp kim CuAl9Fe4Ni2 là 382°C trong khoảng 2,03 giờ. Điều này hoàn toàn phù hợp với kết quả thực tế về giá trị độ cứng và hình ảnh tổ chức tế vi.

#### Lời cảm ơn

Nghiên cứu này được tài trợ bởi Trường Đại học Hàng hải Việt Nam trong đề tài mã số: DT24-25.141.

#### TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] D. Tabor (1951), *The hardness and strength of metals*, Journal Institute of Metals, Vol.79, pp.1-18.
- [2] J. R. Cahoon (1972), *An improved equation relating hardness to ultimate strength*, Metallurgical Transactions, Vol.3, No.11, p.3040.
- [3] J. R. Cahoon, W. H. Broughton, and A. R. Kutzak (1971), *The determination of yield strength from hardness measurements*, Metallurgical Transactions, Vol.2, No.7, pp.1979-1983.
- [4] Krishna, S. C., Gangwar, N. K., Jha, A. K., & Pant, B. (2013). *On the prediction of strength from hardness for copper alloys*. Journal of Materials, 2013(1), 352578p.
- [5] C. H. Chen and T. F. Liu (2002), *Phase transformations in a Cu-14.2Al-120Ni alloy*, Vol.47, pp.515-520.

- [6] Y. Lv et al. (2015), *Effect of Post Heat Treatment on the Microstructure and Microhardness of Friction Stir Processed NiAl Bronze (NAB) Alloy*, Metals (Basel), Vol.5, No.3, pp.1695-1703.
- [7] W. S. Li, Z. P. Wang, Y. Lu, Y. H. Jin, L. H. Yuan, and F. Wang (2006), *Mechanical and tribological properties of a novel aluminum bronze material for drawing dies*, Wear, Vol.261, No.2, pp.155-163.

Ngày nhận bài:	02/11/2024
Ngày nhận bản sửa:	21/11/2024
Ngày duyệt đăng:	16/12/2024