



УКРАЇНА

(19) **UA** (11) **119681** (13) **C2**
(51) МПК (2019.01)

C04B 35/478 (2006.01)

C04B 35/56 (2006.01)

C22C 1/05 (2006.01)

B22F 3/16 (2006.01)

B22F 9/14 (2006.01)

B22F 3/087 (2006.01)

B82Y 40/00

B82B 3/00

МІНІСТЕРСТВО
ЕКОНОМІЧНОГО
РОЗВИТКУ І ТОРГІВЛІ
УКРАЇНИ

(12) ОПИС ДО ПАТЕНТУ НА ВИНАХІД

(21) Номер заявки: **а 2017 05530**

(22) Дата подання заявки: **06.06.2017**

(24) Дата, з якої є чинними
права на винахід: **25.07.2019**

(41) Публікація відомостей
про заявку: **10.12.2018, Бюл.№ 23**

(46) Публікація відомостей
про видачу патенту: **25.07.2019, Бюл.№ 14**

(72) Винахідник(и):

**Сизоненко Ольга Миколаївна (UA),
Липян Євген Васильович (UA),
Зайченко Андрій Дмитрович (UA),
Торпаков Андрій Сергійович (UA),
Пристах Микола Сергійович (UA),
Трегуб Володимир Олександрович (UA)**

(73) Власник(и):

**ІНСТИТУТ ІМПУЛЬСНИХ ПРОЦЕСІВ І
ТЕХНОЛОГІЙ НАЦІОНАЛЬНОЇ АКАДЕМІЇ
НАУК УКРАЇНИ,**
пр. Богоявленський, 43-А, м. Миколаїв,
54018 (UA)

(56) Перелік документів, взятих до уваги
експертизою:

WO 2009/072834 A2, 11.06.2009
Sizonenko O. Pulsed-discharge technology of
metal-matrix composite materials obtainment /
O. Sizonenko, A. Zaichenko, A. Torpakov, Ye.
Lypian, S. Prokhorenko // Materials Science.
Non-Equilibrium Phase Transformation. -
2015. - Vol. 1. - Iss. 1. - P. 15-18

Торпаков А.С. Влияние высоковольтной
обработки порошковых смесей системы Al-
Ti на изменение их морфологии и фазового
состава /А.С. Торпаков, О.Н. Сизоненко,
Е.В. Липян, Е.В. Солодкий // Матеріали для
роботи в екстремальних умовах - 6 :
матеріали міжнар. наук. конф. (Київ, 1-2
грудня 2016 р.). - Київ : НТТУУ «КПІ», 2016.
- С. 78-81

SU 81961 A, 20.07.1959

RU 2479384 C1, 20.04.2013

UA 111396 C2, 25.04.2016

UA 101575 C2, 10.04.2013

UA 109174 C2, 27.07.2015

UA 111411 C2, 25.04.2016

UA 111251 C2, 11.04.2016

UA 78370 U, 11.03.2013

UA 91034 U, 25.06.2014

UA 119681 C2

(54) СПОСІБ ВИГОТОВЛЕННЯ МАХ-МАТЕРІАЛУ НА ОСНОВІ ПОТРІЙНИХ КАРБІДІВ ТИТАНУ І АЛЮМІНІЮ

(57) Реферат:

Винахід належить до порошкової металургії. МАХ-матеріал на основі потрійних карбідів титану і алюмінію здійснюють шляхом синтезу їх з суміші порошоків Ti, Al, взятих у співвідношенні 3/1,2, в умовах високих тисків і температур, що проводять у дві стадії. На першій стадії синтезу на суміш порошоків Ti та Al діють високовольтними імпульсними електричними розрядами у газі з інтегральною питомою енергією 1,4 МДж/кг. На другій стадії здійснюють пресування обробленої порошкової суміші у формі-матриці та спікання виробу. Винахід забезпечує отримання однорідної ультрадисперсної шихти з потрійних карбідів, і за рахунок цього - підвищення фізико-механічних показників консолідованого матеріалу.

Винахід належить до порошкової металургії, а саме - технології виготовлення МАХ-матеріалів на основі потрійних карбідів титану і алюмінію, і може бути використаний для одержання деталей конструкційного призначення в автомобіле-, ракетобудуванні, авіаційній техніці тощо, а також матеріалів, що працюють в умовах підвищених температур та мають підвищені характеристики жаростійкості.

Відомо спосіб виготовлення композиційного матеріалу Ti_3AlC_2 , який включає синтез методом гарячого пресування із суміші порошків TiC_x і Al , взятих у співвідношенні 3/1,2/2, при температурі 1000...1500 °С під тиском 20...50 МПа, протягом 5...600 хв. (заявка WO2009072834 A2, МПК (2006.01) C04B 35/478, дата пріоритету 7.12.2007). Одержаний матеріал містить до 10 мас. % фази Ti_2AlC і до 70 мас. % TiC .

Ознаками, які збігаються з суттєвими ознаками винаходу, що заявляється, є виготовлення МАХ-матеріалу на основі потрійних карбідів з суміші порошків Ti , Al , C , взятих у співвідношенні 3/1,2/2, в умовах високих квазігдростатичних тисків і температур.

Причиною, яка перешкоджає одержанню очікуваного технічного результату, є те, що у одержуваному матеріалі міститься недостатня кількість МАХ-фаз і залишається до 70 мас. % TiC , який використовувався як сировини.

Найбільш близьким за сукупністю ознак до способу, що заявляється, є спосіб виготовлення МАХ-матеріалу на основі потрійних карбідів з суміші порошків Ti , Al , C , взятих у співвідношенні 3/1,2/2, в умовах високих квазігдростатичних тисків і температур, за яким синтез вказаної суміші проводять у дві стадії, на першій - під тиском 1...2 ГПа, при температурі 1000...1300 °С протягом 60...180 хв., а на другій - гомогенізуючий відпал в середовищі аргону при атмосферному тиску і температурі 1200...1400 °С протягом 180...300 хв. (патент № 109174 Україна, МПК (2006.01) C04B 41/80, C04B 35/478, опубл. 27.07.2015, Бюл. № 14).

Ознакою, що збігається з суттєвими ознаками винаходу, що заявляється, є синтез потрійних карбідів титану і алюмінію з суміші порошків Ti , Al , C , взятих у співвідношенні 3/1,2/2, в умовах високих тисків і температур, що проводять у дві стадії.

Причиною, що перешкоджає одержанню очікуваного технічного результату, є утворення надлишкового оксиду титану на стадії синтезу, що потребує додаткового відпалу в середовищі аргону протягом тривалого часу.

В основу винаходу поставлена задача удосконалення способу виготовлення МАХ-матеріалу на основі потрійних карбідів титану і алюмінію шляхом зміни умов синтезу потрійних карбідів Ti_3AlC_2 , що дозволить отримати однорідну ультрадисперсну шихту з потрійних карбідів, і за рахунок цього забезпечити підвищені фізико-механічні показники консолідованого матеріалу.

Поставлена задача вирішується тим, що у способі виготовлення МАХ-матеріалу на основі потрійних карбідів титану і алюмінію шляхом синтезу їх з суміші порошків Ti , Al , C , взятих у співвідношенні 3/1,2/2, в умовах високих тисків і температур, що проводять у дві стадії, згідно з винаходом, на першій стадії синтезу на суміші порошків Ti та Al діють високовольтними імпульсними електричними розрядами у газі та здійснюють одночасно диспергування порошків, їх активацію та синтез нановуглецю C і потрійних карбідів, а на другій стадії - здійснюють пресування обробленої порошкової суміші у формі-матриці та спікання виробу.

Розкриваючи причинно-наслідковий зв'язок між ознаками способу, що заявляється, і технічним результатом, що досягається, необхідно відзначити наступне.

Ознаки "на першій стадії синтезу на суміші порошків Ti та Al діють високовольтними імпульсними електричними розрядами у газі та здійснюють одночасно диспергування суміші порошків, їх активацію та синтез нановуглецю C і потрійних карбідів, а на другій стадії - здійснюють пресування обробленої порошкової суміші у формі-матриці та спікання виробу" створюють умови, за яких відбуватиметься синтез МАХ-фази Ti_3AlC_2 , що дозволить отримати однорідну ультрадисперсну шихту з потрійних карбідів і за рахунок цього забезпечити підвищені фізико-механічні показники консолідованого матеріалу.

Суть винаходу пояснюють креслення.

на Фіг. 1 наведено дифрактограму порошкової шихти після першої стадії синтезу з суміші порошків Ti та Al ;

на Фіг. 2 - дифрактограму одержаного МАХ-матеріалу після другої стадії.

Спосіб здійснюють таким чином.

МАХ-матеріал синтезують з суміші порошків Ti , Al , C , взятих у молярному співвідношенні 3/1,2/2. Попередньо порошки Ti та Al у молярному співвідношенні 3/1,2 завантажують у розрядну камеру-реактор, після чого камеру заповнюють вуглеводневою рідиною та герметизують. На першій стадії синтезу на порошкову суміш Ti та Al діють високовольтними імпульсними електричними розрядами у газі, вуглець C синтезують з газу в процесі обробки. Необхідну кількість вуглецю забезпечують за рахунок попередньо розрахованої питомої енергії,

що визначають за формулою $W_{\text{пит } \Sigma}^{\text{Me}} = C_{\text{ен}} \cdot C_{\text{вуг}}^{\text{Me}} \cdot m_{\text{Me}}$, де $C_{\text{ен}}$ - емпіричний коефіцієнт кількості синтезованого вуглецю від питомої енергії ($C_{\text{ен}} = 10^8$ Дж/кг); m_{Me} - маса порошкової суміші металів; $C_{\text{вуг}}^{\text{Me}}$ - коефіцієнт потрібної кількості вуглецю для утворення сполуки необхідного складу, який розраховують як $C_{\text{вуг}}^{\text{Me}} = \frac{x_{\text{Me}}}{100 - x_{\text{Me}}}$, де x_{Me} - кількість вуглецю для утворення

5 сполуки необхідного складу, % суміші (згідно з патентом № 111396 Україна, МПК (2016.01) B82B 3/00, B22F 9/14 (2006.01), B01J 3/08 (2006.01), C01B 31/30 (2006.01). Спосіб одержання карбідів металів перехідної групи, опубл. 25.04.16, Бюл. № 8.).

На першій стадії синтезу у камері відбувається подрібнення порошку, його активація, синтез нановуглецю С (що є продуктом піролізу вуглеводневої рідини плазовим каналом розряду) і потрібних карбідів та перемішування суміші порошків. Таким чином, під дією високовольтного електричного розряду синтезуються МАХ-фази Ti_3AlC_2 та Ti_2AlC .

Після дії високовольтними електричними розрядами розрядну камеру розгерметизують і одержану суспензію зливають з реактора та розділяють на тверду та рідку фази шляхом центрифугування та фільтрації (за необхідності) та висушують.

15 На другій стадії синтезу оброблену порошкова суміш консолідується шляхом пресування у формі-матриці та спікання виробу з МАХ-матеріалу.

Конкретний приклад

Спосіб було реалізовано при обробці суміші порошків Ti та Al масою 100 г.

20 Враховуючи співвідношення $m = M \cdot n$ між масою m , молярною масою M та кількістю речовини n , від молярного співвідношення $\text{Ti}/\text{Al}/\text{C}$ (3/1,2/2) можна перейти до масового співвідношення - 5,978/1,348/1. При цьому масове співвідношення металів у суміші Ti/Al дорівнює 4,435/1, що становить для 100 г суміші металів 81,6 г Ti та 18,4 г Al .

Тоді $x_{\text{Me}} = 100\% \cdot 1 / (5,978 + 1,348 + 1) = 12,011\%$, $C_{\text{вуг}}^{\text{Me}} = 12,011 / (100 - 12,011) = 0,1365$.

Необхідна питома енергія обробки складає $W_{\text{пит } \Sigma}^{\text{Me}} = 10^8 \cdot 0,1365 \cdot 0,1 = 1,4$ (МДж/кг).

25 На першій стадії синтезу суміш порошків масою 100 грамів складу 81,6 г Ti та 18,4 г Al завантажували в розрядну камеру, заливали 1,5 дм³ гасу та оброблювали високовольтними імпульсними електричними розрядами ($U=50$ кВ) з інтегральною питомою енергією 1,4 МДж/кг. При цьому у камері відбувається подрібнення порошку, його активація, синтез нановуглецю С (що є продуктом піролізу вуглеводневої рідини плазовим каналом розряду) і потрібних карбідів та перемішування суміші порошків. Дифрактограма одержаної суміші після першої стадії, наведена на Фіг. 1, свідчить про початок утворення МАХ-фаз.

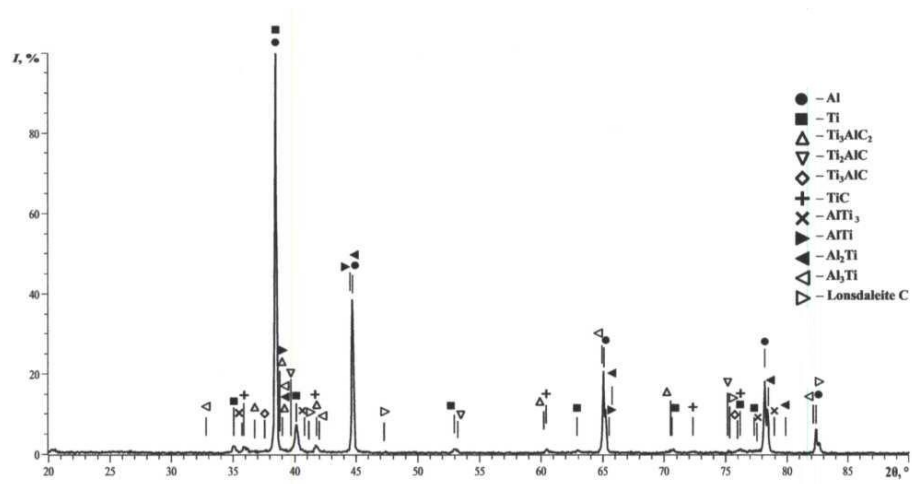
30 На другій стадії синтезу оброблену порошкову суміш консолідували методом іскрового плазового спікання (див. патент № 101575 Україна, МПК (2006.01) B22F 3/14, B22F 3/105. Пристрій для іскроплазового спікання порошків, опубл. 10.04.2013, Бюл. № 7) у формі-матриці при наступних параметрах: температура спікання - 1100 °С, час витримки - 120 секунд, тиск витримки - 60 МПа.

Дифрактограма одержаного МАХ-матеріалу, наведена на Фіг. 2, свідчить про закінчення процесу утворення МАХ-фаз. Одержуваний матеріал містить - 65 % Ti_3AlC_2 , та ~35 % Ti_2AlC , а його мікротвердість складає 4,6 ГПа.

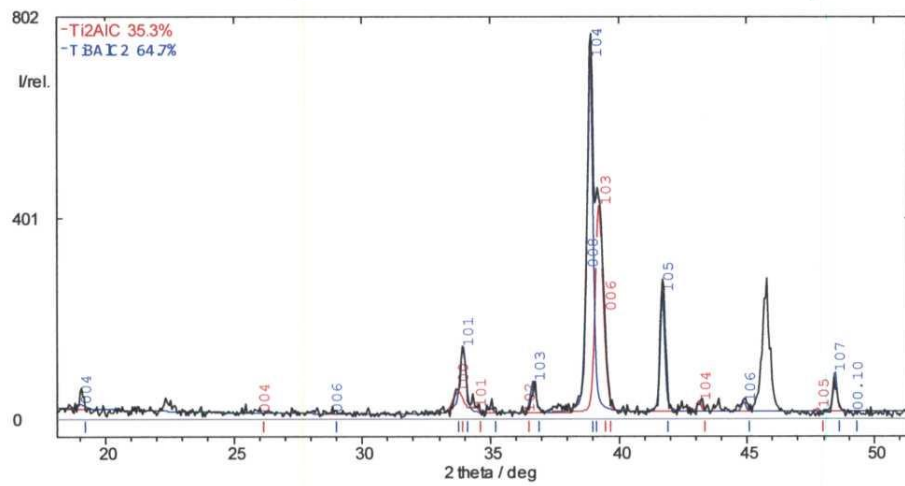
40 Таким чином, спосіб виготовлення МАХ-матеріалу дозволить отримати однорідну ультрадисперсну шихту з потрібних карбідів і за рахунок цього забезпечити підвищені фізико-механічні показники консолідованого матеріалу.

ФОРМУЛА ВИНАХОДУ

45 Спосіб виготовлення МАХ-матеріалу на основі потрібних карбідів титану і алюмінію шляхом синтезу їх з суміші порошків Ti , Al , взятих у співвідношенні 3/1,2, в умовах високих тисків і температур, що проводять у дві стадії, який **відрізняється** тим, що на першій стадії синтезу на суміш порошків Ti та Al діють високовольтними імпульсними електричними розрядами у гасі з інтегральною питомою енергією 1,4 МДж/кг, а на другій стадії здійснюють пресування обробленої порошкової суміші у формі-матриці та спікання виробу.



Фіг. 1



Фіг. 2

Комп'ютерна верстка В. Мацело

Міністерство економічного розвитку і торгівлі України, вул. М. Грушевського, 12/2, м. Київ, 01008, Україна

ДП "Український інститут інтелектуальної власності", вул. Глазунова, 1, м. Київ – 42, 01601