固相燃燒合成鎳鋁與鈦鋁介金屬之實驗研究

蘇信宏、葉俊良

E-mail: 9419521@mail.dyu.edu.tw

摘 要

本研究係利用自持傳遞高溫合成法(Self-propagating High-temperature Synthesis, SHS)，於氬氣環境下進行鎳鋁介金屬 （NiAl Intermetallic）及鈦鋁介金屬（TiAl Intermetallic）之燃燒 合成，探討其燃燒反應之特性，進而研究不同試片密度、粉末粒徑和預熱溫度對於其火焰鋒面傳遞速度（ Flame-Front Velocity ）、燃燒溫度(Combustion Temperature) 及產物轉換 （ conversion） 之影響； 並探討於鎳鋁介金屬中加入碳化鈦 （NiAl+TiC）與鈦鋁介金中屬加入硼化鈦（TiAl+TiB2），對於其 實驗結果之影響。 實驗結果顯示出此四種介金屬之火焰鋒面皆以平整之模式 向下傳遞；鎳鋁介金屬於反應後有些微收縮之現象，其火焰鋒面 傳遞速度會隨試片密度之增加、預熱溫度之上昇及粉末粒徑的改 變而有增加之趨勢，其中粉末粒徑的改變最為明顯，傳遞速度由 20 mm/s 增快至100 mm/s；但燃燒溫度並沒有隨試片密度之增 加、預熱溫度之上昇及粉末粒徑的變化而明顯的改變，燃燒溫度 大致上都介於1510 ~ 1630 ℃之間。添加碳化鈦後，試片於反應 後卻有微量膨脹之現象，且火焰鋒面傳遞速度與燃燒溫度會隨著 碳化鈦含量之增加而變慢與降低；根據添加碳化鈦之鎳鋁介金屬 的火焰鋒面傳遞速度與燃燒溫度之結果，可歸納出反應之活化能 約為128.26 kJ/mole；在產物轉換方面，經由XRD 分析後，鎳鋁試片之產物於試片密度及預熱溫度皆處於最佳條件下，產物中皆 為欲合成之產物。 鈦鋁介金屬於反應後有明顯膨脹之現象，其火焰鋒面傳遞速 度與燃燒溫度皆會隨試片密度之增加、預熱溫度之提昇及粉末粒 徑的改變也有增快與升高之趨勢；添加硼化鈦後，試片於反應後 卻產生收縮之現象，且火焰鋒面傳遞速度與燃燒溫度會隨著硼化 鈦含量之增加而增快與提高；鈦鋁試片之產物經由XRD 分析 後，於粉末粒徑、試片密度及預熱溫度皆處於最佳條件下，產物 中除了生成TiAl 之外，產物裡也有中間相產物Ti3Al 之生成。

關鍵詞 : 自持傳遞高溫合成，鎳鋁介金屬，碳化鈦，鈦鋁介金屬，硼化鈦，火焰鋒面傳遞速度，燃燒溫度，活化能

目錄

目錄 封面內頁 簽名頁 授權書 iii 中文摘要 v 英文摘要 vii 誌謝 ix 目錄 x 圖目錄 xiii 表目錄 xvi 符號說明 xvii 第一章 緒論 1 1.1 研究背景 1 1.2 研究目的 4 第二章 文獻回顧 5 2.1 文獻回顧 5 2.2 鎳鋁介金屬（NiAl）之相關文獻 5 2.3 添加碳化鈦之鎳鋁介金屬（NiAl + TiC）之相關文獻 8 2.4 鈦鋁介金屬（TiAl）之相關文獻 9 2.5 添加硼化鈦之鈦鋁介金屬（TiAl + TiB2）相關文獻 10 第三章 研究方法 11 3.1 試片 11 3.2 燃燒室主體 13 3.3 資料擷取系統 14 3.4 影像擷取系統 14 3.5 產物分析 15 第四章 結果與討論 16 4.1 鎳鋁介金屬（NiAl） 16 4.1.1 固相火焰觀察 16 4.1.2 火焰鋒面傳遞速度（Vf） 17 4.1.3 溫度量測 18 4.1.4 產物分析 19 4.2 添加碳化鈦之鎳鋁介金屬（NiAl + TiC） 20 4.2.1 固相火焰觀察 20 4.2.2 火焰鋒面傳遞速度 21 4.2.3 溫度量測與活化能（Ea）之計算 22 4.2.4 產物分析 23 4.3 鈦鋁介金屬（TiAl） 24 4.3.1 固相火焰觀察 24 4.3.2 火焰鋒面傳遞速度 25 4.3.3 溫度量測 26 4.3.4 產物分析 27 4.4 添加硼化鈦之鈦鋁介金屬（TiAl + TiB2） 28 4.4.1 固相火焰觀察 28 4.4.2 火焰鋒面傳遞速度 29 4.4.3 溫度量測 30 4.4.4 產物分析 31 4.5 添加硼化鈦之鈦鋁介金屬（TiAl3 + TiB2） 32 4.5.1 固相火焰觀察 32 4.5.2 溫度量測與火焰鋒面傳遞速度 33 4.5.3 產物分析 33 第五章 結論 34 5.1 鎳鋁介金屬 34 5.2 鈦鋁介金屬 35 參考文獻 37 附錄1 78 附錄2 79 附錄3 80 圖目錄 圖1. 試片外觀圖 42 圖2. 實驗系統示意圖 42 圖3. 火焰鋒面傳遞影像圖 43 圖4. Xn 位置上灰階值及灰階值沿Y 方向變化率分佈圖 43 圖5. 鎳鋁60% TMD 試片於室溫下燃燒反應之固相火焰 44 (325 mesh Ni / 350 mesh Al) 44 圖6. 鎳鋁60% TMD 試片於室溫下燃燒反應之固相火焰 45 (3~7 μm Ni / 350 mesh Al) 45 圖7. 鎳鋁60% TMD 試片於室溫下燃燒反應之固相火焰 46 (3~7 μm Ni / 10 μm Al) 46 圖8. 鎳鋁系統之火焰鋒面傳遞速度與試片密度之關係圖 47 圖9. 鎳鋁系統之火焰鋒面傳遞速度與粉末粒徑之關係圖 47 圖10. 鎳鋁系統之自持燃燒反應溫度變化曲線圖 48 圖11. 鎳鋁系統之燃燒反應溫度與粉末粒徑之關係圖 48 圖12. 鎳鋁系統之產物相對密度關係圖 49 圖13. 鎳鋁系統之燃燒反應所得產物之XRD 分析圖 49 圖14. 添加18.2 mol%TiC 之60% TMD 鎳鋁試片於室溫下燃燒反應之固相火焰(325 mesh Ni / 350 mesh Al) 50 圖15. 添加18.2 mol%TiC 60% TMD 鎳鋁試片於預熱200℃下燃燒反應之固相火焰(325 mesh Ni / 350 mesh Al) 51 圖16. 火焰鋒面傳遞速度與TiC 含量之關係圖 52 圖17. 添加TiC 之鎳鋁介金屬之自持燃燒反應溫度變化曲線圖 52 圖18. 燃燒反應溫度與TiC 含量之關係圖 53 圖19. 鎳鋁系統之ln(Vf / Tc)2 對(1 / Tc)之關係圖 53 圖20. 添加TiC 之鎳鋁介金屬之產物相對密度關係圖 54 圖21. 添加TiC 之鎳鋁介金屬於室溫下燃燒反應所得產物之XRD 分析圖 54 圖22. 添加TiC 之鎳鋁介金屬於預熱200℃下燃燒反應所得產物之XRD 分析圖 55 圖23. 60% TMD 鈦鋁試片於預熱200℃下燃燒反應之固相火焰(325 mesh Ti / 350 mesh Al) 56 圖24. 60% TMD 鈦鋁試片於預熱300℃下燃燒反應之固相火焰(325 mesh Ti / 350 mesh Al 57 圖25. 60% TMD 鈦鋁試片於預熱200℃下燃燒反應之固相火焰(325 mesh Ti / 10 μm Al) 58 圖26. 鈦鋁系統之火焰鋒面傳遞速度與預熱溫度之關係圖 59 圖27. 鈦鋁系統之火焰鋒面傳遞速度與預熱溫度之關係圖 59 圖28. 鈦鋁系統之燃燒反應溫度

與預熱溫度之關係圖 60 圖29. 鈦鋁系統之燃燒反應溫度與試片密度之關係圖 60 圖30. 鈦鋁系統於預熱200°C下燃燒反應產物之XRD 分析圖 61 圖31. 鈦鋁系統於預熱350°C下燃燒反應產物之XRD 分析圖 61 圖32. 鈦鋁系統於預熱200°C下之燃燒反應產物之XRD 分析圖 62 圖33. 添加10 mol%TiB2 60% TMD 鈦鋁試片於室溫下燃燒反應之固相火焰(325 mesh Ti / 350 mesh Al) 63 圖34. 添加10 mol%TiB2 60% TMD 鈦鋁試片於預熱200°C下燃燒之固相火焰(325 mesh Ni / 350 mesh Al) 64 圖35. 火焰鋒面傳遞速度與TiB2 含量之關係圖 65 圖36. 火焰鋒面傳遞速度與TiB2 含量之關係圖 65 圖37. 燃燒反應溫度與TiB2 含量之關係圖 66 圖38. 燃燒反應溫度與TiB2 含量之關係圖 66 圖39. 添加10 mol%TiB2 之鈦鋁試片於預熱200°C下燃燒反應產物之XRD 分析圖 67 圖40. 添加10 mol%TiB2 之鈦鋁試片於預熱200°C下燃燒反應產物之XRD 分析圖 67 圖41. 鈦鋁系統之產物相對密度關係圖 68 圖42. 添加5 mol%TiB2 60% TMD 鈦鋁（TiAl3）試片於室溫下燃燒反應之固相火焰(325 mesh Ti / 350 mesh Al) 69 圖43. 添加15 mol%TiB2 60% TMD 鈦鋁（TiAl3）試片於預熱200°C下燃燒之固相火焰(325 mesh Ni / 350 mesh Al) 70 圖44. 鈦鋁（TiAl3）試片之燃燒反應溫度與TiB2 含量之關係圖71圖45. 鈦鋁（TiAl3）試片之火焰鋒面傳遞速度與TiB2 含量之關係圖 71 圖46. 添加15 mol%TiB2 之鈦鋁（TiAl3）試片於預熱300°C下燃燒反應所得產物之XRD 分析圖 72 附圖1. 鎳鋁介金屬之反應機制圖[21] 78 附圖2. 鎳鋁系統之相變化圖[36] 79 附圖3. 鈦鋁系統之相變化圖[37] 80 表目錄 表1. 鎳鋁系統各項實驗參數表 73 表2. 鈦鋁系統各項實驗參數表 74 表3. 各種金屬基本材料性質表 75 表4. 鎳鋁系統之實驗結果 76 表5. 鈦鋁系統之實驗結果 77

參考文獻

[1] 方建智, 謝誌鴻, 陳建忠.“ 低溫燃燒合成介金屬之機構探討 ”中華民國材料年會, 台北市國立台灣大學, 2002.
[2] M. X. Gao, Y. Pan, F. J. Oliveira, J. L. Bapstista, and J. M. Vieira,“ Interpenetrating microstructure and fracture mechanism of NiAl/TiC composites by pressureless melt infiltration, ” Materials Letters, Vol. 58, pp. 1761-1765, 2004.
[3] Q. Fan, H. Chai, and Z. Jin,“ Dissolution precipitation mechanism of self-propagating high-temperature synthesis of mononickel aluminide, ” Intermetallics, Vol. 9, pp. 609-619, 2001.
[4] F. H. Froes, C. Suryanarayana, and D. Eliezer,“ Review synthesis, properties and applications of titanium aluminides, ” Journal of Materials Science, Vol. 27, pp. 5113-5140, 1992.
[5] M. Yamaguchi, H. Inui, and K. Ito,“ High-temperature structural intermetallics, ” Acta Materialis, Vol. 48, pp. 307-322, 2000.
[6] K. L. Tee, L. Lu, and M. O. Lai,“ In situ processing of Al-TiB2 composite by the stir-casting technique, ” Journal of Materials Processing Technology, Vol. 89-90, pp. 513-519, 1999.
[7] 李弘斌,“ 高溫材料之自行燃燒合成反應的參數探討, ”行政院國家 科學委員會, NSC 85-2216-E-228-001, 1996.
[8] B. Y. Li, L. J. Rong, Y. Y. Li, and V. E. Gjunter,“ A recent development in producing porous Ni-Ti shape memory alloys, ”Intermetallics, Vol. 8, pp. 881-884, 2000.
[9] G. K. Dey,“ Micropyretic synthesis of NiTi in propagation mode, ” Acta Materialis, Vol. 51, pp. 2549-2568, 2003.
[10] S. H. Lee, J. H. Lee, Y. H. Lee, D. H. Shin, and Y. S. Kim,“ Effect of heating rate on the combustion synthesis of intermetallics, ” Materials Science and Engineering, Vol. A281, pp. 275-285, 2000.
[11] A. G. Merzhanov,“ History and recent developments in SHS, ”Ceramics International, Vol. 21, pp. 371-379, 1995.
[12] J. J. Moore, and H. J. Feng,“ ombustion synthesis of advanced materials: part I. Reaction parameters, ” Materials Science, Vol. 39, pp. 243-273, 1995.
[13] J. J. Moore, and H. J. Feng,“ Combustion Synthesis of Advanced Materials: Part I. Reaction Parameters, ” Progress in Materials Science, Vol. 39, pp. 243-273, 1995.
[14] J. J. Moore, and H. J. Feng,“ Combustion Synthesis of Advanced Materials:Part II. Classification, Applications and Modeling, ” Progress in Materials Science, Vol. 39, pp. 275-316, 1995.
[15] A. Makino,“ Fundamental Aspects of the Heterogeneous Flame in the Self-propagating High-temperature Synthesis (SHS) Process, ” Progress in Energy and Combustion Science, Vol. 27, pp. 1-74, 2001.
[16] F. Scheppe, P. R. Sahm, W. Hermann, U. Paul, and J. Preuhs,“ Nickel aluminides: a step toward industrial application, ” Materials Science and Engineering, A 329-331, pp. 596-601, 2002.
[17] C. M. Ward-Close, R. Minor, and P. J. Doorbar,“ Intermetallic-matrix composites - a review, ” Intermetallics, Vol. 4, pp. 217-229,1996.
[18] R. Darolia,“ Ductility and fracture toughness issues related to implementation of NiAl for gas turbine applications, ” Intermetallics, Vol. 8, pp. 1321-1327, 2000.
[19] 楊聰賢,“ 以Ni3Al作為鑽石刀具基材之製程研究, ” 碩士論文, 國立臺灣大學材料科學與工程學研究所, 2000.
[20] A. Bose, R. H. Rabin, and R. M. German,“ powder metallurgy, ” Intermetallics, Vol. 20, pp. 25, 1988.
[21] A. Hibino, S. Matsuoka, and M. Kiuchi,“ synthesis and sintering of Ni3Al intermetallic compound by combustion synthesis process, ” Journal of Materials Processing Techology, Vol. 112, pp. 127-135, 2001.
[22] A. Biswas, and S. K. Roy,“ Comparison between the microstructual evolutions of two modes of SHS of NiAl: key to a common reation mechanism, ” Acta Materialia Vol. 52, pp. 257-270, 2004.

[23] S. Dong, P. Hou, H. Yang, and G. Zou, “ Synthesis of intermetallic NiAl by SHS reaction using coarse-grained nickel and ultrafine-grained aluminum produced by wire electrical explosion, ” Intermetallics, Vol. 10, pp. 217-223, 2002.
[24] P. Zhu, J. C. M. Li, and C. T. Liu, “ Adiabatic temperature of combustion synthesis of Al-Ni systems, ” Materials Science and Engineering, Vol. A357, pp. 248-257, 1995.
[25] V. M. Maslov, I. P. Borovinskaya, and A. G. Merzhanov, Combustion Explosion Shock Waves, Vol. 12, pp. 631, 1976.
[26] I. Barin, O. Knacke, and O. Kubaschewski, “ Thermochemical Properties of Inorganic Substances:Supplement, ” Springer-Verlag, New York, pp. 490, 1977.
[27] W. Wang, Z. Fu, and R. Yuan, Journal of Wuhan University of Technology, Vol. 9, pp. 10, 1994.
[28] J. T. Guo, D. T. Jiang, Z. P. Xing, and G. S. Li, “ Tensile properties and microstructures of NiAl-20TiB2 and NiAl-20TiC in situ composites, ” Materials and Design, Vol. 18 pp. 357-360, 1997..
[29] K. Taguchi, and M. Ayada, “ Near-net shape processing of TiAl intermetallic compounds via pseudo HIP-SHS route, ” Intermetallics, Vol. 3, pp. 91-98, 1995.
[30] J. Beddoes, L. Zhao, P. Au, and W. Wallace, “ The brittle-ductile transition in HIP consolidated near γ -TiAl + W and TiAl + Cr powder alloys, ” Materials Science and Engineering, Vol. A192/193, pp. 324-332, 1995.
[31] T. Wang, Y. X. Lu, M. L. Zhu, and J. S. Zhang, “ Identification of the comprehensive kinetics of thermal explosion synthesis - 41 - Ti+3Al → TiAl3 using non-isothermal differential scanning calorimetry, ” Materials Letters, Vol. 54, pp. 284-290, 2002.
[32] A. Hirose, M. Hasegawa, and K. F. Kobayashi, “ Microstructures and mechanical properties of TiB2 particle reinforced TiAl composites by plasma arc melting process, ” Materials Science and Engineering, Vol. A239-240, pp. 46-54, 1995.
[33] S. Gedevanishvili, and Z. A. Munir, “ The synthesis of TiB2-TiAl3 composites by field-activated combustion, ” Materials Science and Engineering, Vol. A246, pp. 81-85, 1998.
[34] M. Eslamloo-Grami, and Z. A. Munir, “ Effect of Nitrogen Pressure and Diluent Content on the Combustion Synthesis of Titanium Nitride, ” Journal of American Ceramic Society, Vol. 73, No. 5, pp. 2222-2227, 1990.
[35] S. Zhang, and Z. A. Munir, “ The Combustion Synthesis of Refractory Nitrides, Part II The Synthesis of Niobium Nitride, ” Journal of Materials Science, Vol. 26, pp. 3380-3385, 1991.
[36] K. Krivoroutchko, T. Kulik, H. Matyja, V. K. Portnoy, and V. I. Fadeeva, “ Solid state reactions in Ni – Al – Ti – C system by mechanical alloying, ” Journal of Alloys and Compounds, Vol. 308, pp. 230-236, 2000.
[37] N. Bertolinoa, M. Monagheddua, A. Taccaa, P. Giuliania, C. Zanottia, “ Ignition mechanism in combustion synthesis of Ti – Aland Ti – Ni systems, ” Intermetallics, Vol. 11, pp. 41-49, 2003.
[38] 宋文義, “ 固相燃燒合成鈦鎳介金屬與鎳鋁介金屬之實驗 研究 ” 碩士論文, 大葉大學機械工程研究所, 2004.