

Dr hab. inż. M. Wróbel
WIMiIP AGH
Kraków

Kraków 05.06. 2018

Recenzja

Rozprawy doktorskiej mgr inż. Pawła Koprowskiego

pt. „ Mikrostruktura i własności mechaniczne aluminium i jego stopów po wyciskaniu metoda KoBo”

Wstęp

Rozdrobnienie ziarna jest najkorzystniejszym z obecnie znanych sposobów umocnienia materiałów. W ostatnich latach obserwowane jest stałe dążenie do opracowania ekonomicznie akceptowalnych technologii rozdrobnienia ziarna. Wymóg ten spełniają opracowane przez profesorów Andrzeja Korbla i Włodzimierza Bochniaka i znane pod akronimem KoBo technologie wyciskania lub przeciągania odkształcanego materiału przez oscylujące narzędzie. Technologie KoBo pozwalają na kształtowanie trudno odkształcalnych metali oraz umożliwiają poprawę parametrów wytrzymałościowych typowych metali przerabianych plastycznie. Pomimo opatentowania w roku 1998 technologie KoBo należy nadal traktować jako technologie rozwojowe z możliwością stosunkowo szybkiej aplikacji przemysłowej. Oznacza to, że pełne wykorzystanie potencjału tych technologii wymaga optymalizacji parametrów technologicznych. W tym celu niezbędne jest wyznaczenie wpływu poszczególnych parametrów procesu na własności wyrobów i ekonomię procesu. Wymaga to jednak obszernych badań. Zakres wymaganych prac może być istotnie zmniejszony w przypadku zrozumienia wpływu krytycznych parametrów procesu KoBo w odniesieniu do własności obrabianego materiału. Przedstawiona do recenzji praca wpisuje się w nurt tego typu badań. **Oceńm, że tematyka podjęta w recenzowanej pracy jest bardzo istotna nie tylko ze względów poznawczych ale jest również potencjalnie korzystna dla przyszłych aplikacji technologicznych metod KoBo. Ponadto wpisuje się ona w aktualny trend badań zmierzających do poprawy wytrzymałości wyrobów metalowych otrzymywanych na drodze odkształcenia plastycznego.**

Jako materiał do badań wybrano aluminium o wysokiej czystości, techniczne czyste aluminium AA1070 (>99,7%Al) oraz umacniany wydzieleniowo stop AA6013 zawierający po ok. 1% Mg, Si i Cu. Aluminium jest obecnie drugim metalem najczęściej stosowym w technice, a jego zastosowania wykazują stałą tendencję wzrostową. **Wybór aluminium jako materiału badawczego należy więc uznać za uzasadniony. Należy także podkreślić inteligentny dobór badanych gatunków ujmujący metal o wysokiej czystości oraz dwa gatunki istotnie różniące się zawartością domieszek.**

Praca została tradycyjnie podzielona na dwie główne części. W pierwszej części w oparciu o przegląd literatury przedstawiono stan zagadnienia. Druga część zawiera wyodrębnione rozdziały przedstawiające metodykę badawczą, wyniki badań własnych, dyskusję uzyskanych wyników oraz wnioski. Taki układ pracy jest klarowny, choć warto zauważyć, że ze względu na obszerność zrealizowanego programu badawczego zarówno jego raportowanie jak i dyskusja wyników nie były łatwe. Prawdopodobnie w tym należy upatrywać źródła niektórych niedociągnięć pracy.

W rozdz. 3, będącym łącznikiem między częścią teoretyczną i częścią badawczą recenzowanej pracy, Autor recenzowanej pracy (w skrócie Autor) stwierdza, że celem pracy była charakterystyka

struktury i własności mechanicznych wskazanych powyżej metali, poddanych przeróbce plastycznej metodą KoBo. W pracy zrobiono jednak znacznie więcej. Porównano bowiem mikrostruktury i wybrane własności mechaniczne prętów wyciskanych konwencjonalnie i wyciskanych metodą KoBo przy dwóch istotnie różnych częstotliwościach oscylacji matrycy. **Moim zdaniem cel pracy został sformułowany poprawnie, a jego ograniczenie świadczy może o skromności Autora.**

W tym samym rozdziale została postawiona bardzo ambitna teza pracy: „*Przebudowa mikrostruktury podczas cyklicznie zmiennych odkształceń plastycznych jest związana z ciągłym procesem nakładania się mechanizmów odkształcenia i dynamicznej odnowy mikrostruktury. Odpowiedni dobór parametrów procesu KoBo pozwala na kontrolę mikrostruktury i własności mechanicznych aluminium i stopów aluminium*”. **Uważam, że udowodnienie tak postawionej tezy jest bardzo trudne, a zakres niezbędnych ku temu badań wykraczał poza możliwości techniczne i czas przeznaczony na zrealizowanie pracy doktorskiej. Pomimo tego Autorowi udało się zebrać materiał eksperymentalny pozwalający przynajmniej częściowo wykazać poprawność postawionej tezy.**

Zrozumienie pracy istotnie utrudniają liczne potknięcia językowe (na przykład: *maksymalna siła uzyskana dla wariantu 2,5 +Hz jest wyższa od 8 Hz...* str. 84) i terminologiczne (na przykład z użycie terminu „*dyfrakcja liniowa*” ... str. 77, czy zakwalifikowanie ścinania jako mechanizmu odkształcenia plastycznego... str. 18), brak precyzji sformułowań (na przykład: *zniekształcenie sieci dla tego typu granic wynosi 5-7 nm....*str. 25, *ziarna obracają się wokół kierunków ...*, str. 53, *orientacja <110> na granicy między kierunkami <100> i <111>* ... str. 68), kolokwializmy (na przykład *swobodna przestrzeń granic ziaren ...* str. 25, *szerokość i długość ziaren ...*str. 62), skróty myślowe (*ziarna niebieskie i czerwone ..* str. 50, *wydzienienia o kształcie kwadratów..* str. 70) oraz pojawiające się błędy edytorskie (na przykład termin „*kastry atomów*”... str. 29, „*odczynnik TUKER*” zamiast odczynnik Tuckera ... str. 35, czy zaznaczanie na mapach EBSD granic małego kąta cienkimi liniami w kolorze czerwonym, które są dla mnie niewidoczne albo niewłaściwy dobór skali na wykresach – na przykład rys. 6.7). W niniejszej recenzji, szczegółowe wyliczanie tego typu niedociągnięć zostało pominięte.

Część teoretyczna

Część teoretyczna obejmuje zaledwie 26 stron. Zawiera ona książkowe informacje dotyczące oznaczenia i podstawowej charakterystyki stopów aluminium z serii 1xxx i 6xxx, odkształcenia sprężystego i plastycznego oraz mechanizmów odkształcenia plastycznego. Również bardzo pobieżnie opisano metody intensywnego odkształcenia plastycznego. Więcej uwagi poświęcono procesom wydzielania w stopach z serii 6xxx, charakterystyce metody KoBo oraz wpływowi intensywnego odkształcenia na procesy wydzielania oraz na mikrostrukturę i własności mechaniczne materiałów. Szczegółowy przebieg procesów zachodzących w materiale odkształcanym technologiami KoBo nie jest w pełni poznany, dlatego jego opis jest trudny. W tej części pracy Autor ograniczył się do przedstawienia zbioru informacji literaturowych bez ich krytycznej analizy. Podobny mankament dotyczy opisu wpływu intensywnego odkształcenia na mikrostrukturę i własności mechaniczne materiałów.

Większość szczegółowych uwag została przekazana Autorowi. W recenzji chciałbym się ograniczyć do jedynie do przytoczenia stwierdzenia Autora zapisanego na stronie 27. Autor pisze tam, że zazwyczaj przeróbkę plastyczną przeprowadza się po przesycaaniu lub przesycaaniu a następnym starzeniu. O ile pierwsza część tego stwierdzenia nie budzi zastrzeżeń, to trudno mi się zgodzić ze stwierdzeniem, że typową jest przeróbka plastyczna stopu starzonego. Ponieważ twierdzenie Autora nie jest poparte referencją literaturową, chciałbym prosić o wytłumaczenie

celowości takiej technologii i podanie przykładów jej aplikacji. Zgodnie z moją wiedzą zwykle odkształcenie plastyczne stopów wykonywane jest bowiem w stanie miękkim (a więc stopów wyżarzonych lub przesyconych). Stosowanie w tym celu materiałów o zmniejszonej plastyczności w wyniku ich utwardzenia (na przykład stopów starzonych), zwykle powoduje problemy technologiczne. Nawet gdy odkształcenie trudno odkształcalnych materiałów jest możliwe, jak to zostało wielokrotnie wykazane w przypadku stosowania technologii KoBo, należy liczyć się ze zwiększeniem obciążenia urządzeń, wzrostem zużycia oprzyrządowania i pogorszenia wskaźników ekonomicznych procesu. Pytanie moje wydaje się istotne ponieważ taki wariant jest badany w części eksperymentalnej recenzowanej pracy (wyciskanie KoBo materiału wstępnie starzonego przez 2 h przy temperaturze 165°C i końcowe starzenie wyciśniętych wyrobów przy temperaturze 165°C), gdzie również nie udało mi się znaleźć jego uzasadnienia.

Należy zauważyć, że część teoretyczna recenzowanej pracy bazuje na 129 pozycjach literaturowych w większości opublikowanych w XXI wieku. Cytowane są także starsze źródłowe publikacje (na przykład prace Halla [96], Petcha [97], Nabarro [54] czy Coble [55]), co uważam za godne pochwały. Szkoda jednak, że Autor nie uwzględnił anglojęzycznych podręczników i licznych przeglądowych publikacji dobrze przedstawiających niektóre z zagadnień poruszanych przez Autora recenzowanej pracy. Myślę, że mogły one istotnie ułatwić przygotowanie części teoretycznej recenzowanej rozprawy.

Część badawcza

Opis metodyki badawczej rozpoczyna wyszczególnienie celów szczegółowych (str. 36) w zasadzie będących zestawieniem wykonanych badań. Następnie stosunkowo dokładnie przedstawiono sposób przygotowywania i odkształcania badanych materiałów uzupełniając opis pomocnymi schematami (rys. 5.1 i rys. 5.2). Brak jest jednak przejrzystego wyspecyfikowania czasu końcowego starzenia. W pracy można doszukać się informacji, że czas ten dochodził do 10 h, przy czym do poszczególnych badań wybierano zestawy próbek o różnych czasach końcowego starzenia. Szkoda, że na rys. 5.1 i 5.2 nie zaznaczono stanów materiałów wybieranych do poszczególnych technik badawczych. Uważam, że bez szkody dla pracy można było pominąć opis tworzenia obrazu EBSD, zasady pomiarów kalorymetrycznych, czy rentgenowskiej analizy fazowej, tym bardziej, że nie zamieszczono podobnego opisu dla zaawansowanych metod transmisyjnej mikroskopii elektronowej stosowanych w recenzowanej pracy (mikroskopia wysokorozdzielcza, dyfrakcja w wiązce równoległej, dyfrakcja w wiązce zbieżnej). Opis stosowanych analiz obrazów EBSD uważam za uzasadniony.

Pomiary siły wyciskania w funkcji czasu procesu wykazują istotne różnice dla materiałów wyciskanych przy częstotliwości oscylacji matrycy wynoszącej 2,5 Hz i 8 Hz (rys. 6.11). Wyniki te wskazują na możliwość gradientu własności i mikrostruktury na długości wyciskanych prętów. Ważnym wydaje się więc sprawdzenie czy gradient taki występuje, jak jest on silny oraz wyznaczenie obszarów dla których można oczekiwać spójnych wyników poszczególnych badań. W tekście recenzowanej rozprawy nie znalazłem informacji czy praca taka została wykonana oraz czy próbki do badań były pobierane z dokładnie wyspecyfikowanych obszarów otrzymanych prętów. Dotkliwym jest również brak istotnych szczegółowych informacji pozwalających ocenić wiarygodność niektórych z otrzymanych wyników. Dotyczy to głównie prób rozciągania i badań EBSD. Próby rozciągania są trudne w przypadku, gdy nie ma możliwości stosowania próbek z główkami. Jak przypuszczam sytuacja taka dotyczyła badanych drutów. W przypadku mocowania drutu w szczękach maszyny wytrzymałościowej, rozciągane próbki często zrywają się w obszarach ich mocowania. Istotna jest więc wiedza jak mocowano próbki, jakie wyniki uznawano za poprawne i zamieszczano w pracy, oraz

czy są to wyniki z jednej próby czy średnie z serii kilku prób (ilu?). Co się tyczy pomiarów EBSD to co prawda podano wielkości kroku pomiarowego i parametr filtrowania obrazu, ale brak jest informacji dotyczącej wielkości analizowanych obszarów oraz kształtu stosowanej siatki położenia punktów pomiarowych. Nie jest więc dla mnie jasnym czy pokazywane na jednym rysunku mapy porównywanych próbek, dla jednego wariantu materiału obejmujące obszar ok. 1250 um*1250 um, a dla drugiego materiału obszar 100 um *100 um, są wycinkami z większych pomierzonych obszarów, czy może obejmują całe obszary pomierzone dla poszczególnych próbek (na przykład rys. 6.6). Brak jest również informacji dotyczącej jednorodności mikrostruktury na przekroju poprzecznym wyrobu. Wstępnych informacji mogła dostarczyć konwencjonalna metalografia. Podsumowując w odniesieniu do badań EBSD stwierdzam, że nie odnalazłem informacji pozwalającej mi ocenić na ile otrzymane wyniki są reprezentacyjne dla badanych próbek. Na możliwość występowania tego typu problemów wskazują wyniki uzyskane dla materiału Al6N o równoosowym ziarnie. Na str. 47 pokazano bowiem, że materiał o najmniejszym ziarnie charakteryzuje się najmniejszą gęstością granic ziaren i podziaren podczas gdy rozsądnym wydaje się by wielkości te były odwrotnie proporcjonalne do siebie. Należy jednak zauważyć, że nie zauważyłem tego typu niezgodności wyników w przypadku pozostałych materiałów badanych w pracy a więc można przyjąć, że w tym przypadku uzyskane wyniki są spójne. Analizy wyników EBSD są mocną stroną recenzowanej pracy. Godnym uznania jest fakt, że Autor zauważył istotny i często pomijany w literaturze problem związany z tzw. „niedomykaniem się” granic ziaren o dużym kącie dezorientacji. Niestety w pracy nie znalazłem jednoznacznych informacji wskazujących, że Autor podjął jakąś próbę rozwiązania tego problemu.

Analiza tekstury przedstawiona w pracy bazuje na wynikach EBSD. W mojej opinii ważnym może być porównanie tych tekstur z bardziej globalnymi teksturami wyznaczonymi na przykład metodami dyfrakcji promieni rentgenowskich i/lub neutronów. Wyniki takie mogły umożliwić pogłębienie porównawczej analizy tekstur badanych materiałów. W recenzowanej pracy dyfrakcje promieni rentgenowskich wykorzystano jedynie do wykonania analizy fazowej porównywanych materiałów. Ze względu na teksturę krystalograficzną osnowy oraz mały udział objętościowy występujących w niej faz problemy z ich jednoznaczną identyfikacją nie budzą mojego zdziwienia.

Rzeczywiście jak to zauważył Autor, w bardzo dobrej książce prof. Dymka dotyczącej stopów aluminium jest stwierdzenie iż cyt. *niewykluczonym jest, że składowa <100> związana jest z początkowymi stadiami rekrytalizacji ciągnionych i wyciskanych drutów ze stopów aluminium*. Stwierdzenie to nie jest jednak poparte żadną referencją i tłumaczenie na tej podstawie wyników w dyskusji, zamieszczonej na str. 82 recenzowanej rozprawy, uważam za mocno ryzykowne. Tym bardziej, że w kolejnym zdaniu Autor pisze, że pomimo zakładanej rekrytalizacji uzyskane przez niego wyniki wskazują, że w wyniku procesu KoBo materiał jednak uległ umocnieniu. Należy nadmienić, że problem tworzenia się tekstury ciągnięcia stopów aluminium i jej transformacji podczas rekrytalizacji był od dawna badany i został opisywany w literaturze przedmiotu (na przykład przeglądowa praca prof. H. Hu, *Texture 1 (1974) 233*).

W mojej ocenie dużo wysiłku włożono w badania metodami transmisyjnej mikroskopii elektronowej. Rozsądnym było więc ograniczenie liczby przebadanych wariantów. Autorowi udało się zidentyfikować wydzielenia różnicujące badane warianty materiału. W przypadku identyfikacji fazy na podstawie dyfrakcji selektywnej należy zidentyfikować wszystkie refleksy tworzące sieć refleksów pochodzących od danej fazy, a więc wyznaczyć wskaźniki przynajmniej trzech różnych refleksów, tak jak to zrobiono na rys. 6.24b. Niestety na pozostałych dyfraktogramach Autor ograniczał się do wyznaczenia jedynie dwóch wskaźników dla identyfikowanych faz (na przykład rys. 6.22) lub pokazuje obrazy w ciemnym polu wykonane z niewywskaźnikowanych refleksów (na przykład rys. 6.23 i 6.26), co istotnie utrudnia wnioskowanie.

Niewątpliwie mocną stroną pracy są badania kalorymetryczne. W opisie procedury eksperymentalnej autor syntetycznie przedstawił zasadę pomiaru, nie podał jednak znacznie bardziej istotnych informacji dotyczących sposobu wykorzystania wyników z drugiego cyklu nagrzewania. W odniesieniu do tych badań myślę, że może warto dodatkowo wykonać analogiczne pomiary dla próbek wyciskanych bezpośrednio po przesycaaniu. Wyniki takie mogą dostarczyć informacji ułatwiających identyfikację procesów transformacji mikrostruktury podczas wyciskania KoBo. Ciekawym wynikiem jest brak efektów kalorymetrycznych w przypadku próbki wyciskanej z częstotliwością oscylacji matrycy wynoszącą 2,5 Hz, a ich wyraźna obecność w przypadku próbki wyciskanej z częstotliwością matrycy równą 8 Hz. Szkoda, że ten bardzo istotny efekt nie został w pracy przedyskutowany.

W odniesieniu do wyników pomiarów mikrotwardości myślę, że warto było trochę zwiększyć liczbę pomiarów z których wyznaczano średnia twardość materiału. W pracy ograniczono się do wykonywania jedynie po pięć odcisków na wariant porównywanych materiałów.

Dyskusja uzyskanych wyników prowadzona jest kolejno dla poszczególnych materiałów, a dla każdego z nich kolejno dyskutowane są wyniki otrzymane z poszczególnych technik badawczych. Dyskusja kończy się stwierdzeniem, że zmiana częstotliwości oscylacji matrycy może być wykorzystana do sterowania własnościami wyciśniętego materiału, jednak konsekwencją przyjętego układu tekstu jest rozproszenie w nim informacji uzasadniających to stwierdzenie. Myślę, że w napisaniu dyskusji bardzo pomogłoby zamieszczenie w poprzednich rozdziałach krótkiego podsumowania wyników badań materiałów. W odniesieniu do dyskusji chciałbym poprosić Autora o wytłumaczenie przyczyny zaobserwowanego w pracy braku wpływu wielkości ziarna na umocnienie materiału podczas starzenia (stwierdzenie ze str. 85). Również nie rozumiem co Autor miał na myśli pisząc, że mały udział zanieczyszczeń wpływa na procesy odkształcenia plastycznego (str. 83).

W podsumowaniu części eksperymentalnej recenzowanej pracy stwierdzam, że **na uznanie zasługuje opanowanie przez doktoranta licznych technik badawczych** (kalorymetria, rentgenowska analiza fazowa, skaningowa mikroskopia elektronowa- technika EBSD, transmisyjna mikroskopia elektronowa: techniki jasnego i ciemnego pola, mikrodyfrakcja, STEM, EDS i mikroskopia wysokorozdzielcza, pomiary twardości i statyczna próba rozciągania). Używanie tak szerokiej gamy trudnych technik badawczych, które należało zrozumieć i opanować w krótkim czasie przeznaczonym na wykonanie rozprawy doktorskiej może skutkować drobnymi niedopatrzeniami. W mojej ocenie najważniejsze z nich przedstawiłem w niniejszej recenzji. Oprócz oceny rozprawy doktorskiej istotnym celem recenzji było danie Autorowi wskazówek, które mogą być przydatne w jego przyszłej pracy.

Podsumowanie

Podsumowując stwierdzam, że przedstawiona do oceny rozprawa spełnia wymogi ustawowe stawiane rozprawom doktorskim i wnioskuje o dopuszczenie jej do publicznej obrony.

