

УДК 622.24.051:536.2:004.942

В. А. Дутка, канд. техн. наук

Институт надтвердых материалов им. В. М. Бакуля НАН Украины, м. Київ

КОМП'ЮТЕРНЕ МОДЕЛЮВАННЯ ІНФІЛЬТРАЦІЇ ПРИ СПІКАННІ КЕРАМІЧНИХ КОМПОЗИТІВ

Наведено комп'ютерну модель інфільтрації пористих зразків при спіканні. Модель базується на рівнянні Річардса та формулах ван Генуцтена для опису властивостей інфільтрації. Для просторово-часової дискретизації рівняння Річардса використано метод скінченних елементів та різницеву цілком неявну схему в часі. Виконано моделювання інфільтрації рідким кремнієм пористих SiC-зразків при їх спіканні.

Ключові слова: комп'ютерне моделювання, інфільтрація, пористі SiC-зразки, спікання.

Вступ

Явище інфільтрації рідкої фази використовують у різних технологічних процесах виробництва композитних матеріалів [1–4]: при спіканні керамічних матеріалів, виготовленні металевих та твердосплавних композицій, спіканні під тиском алмазовмісних матеріалів. Під цим оглядом для отримання якісних виробів важливо вивчити процес інфільтрації. До шляхів вивчення цього явища належить комп'ютерне моделювання. На цей момент існує багато праць, присвячених математичному опису і комп'ютерному моделюванню інфільтрації води та сольових розчинів у ґрунтові й гірські породи, просочування рідинних речовин у підземні шари, а також моделюванню інфільтрації розплавлених та газоподібних субстанцій у пористі зразки при виготовленні з них виробів з потрібними фізико-механічними характеристиками [5–8].

Математична модель процесу інфільтрації

Пропонована робота присвячена побудові математичної моделі інфільтрації рідкого кремнію в пористі SiC-зразки при їх спіканні за температури 2000 – 2200 °С без зовнішнього тиску. Інфільтрація рідини в пористу структуру відбувається під дією капілярних сил та сили гравітації. У цій моделі вважається, що між рідким кремнієм та стінками капілярів зразка не відбувається хімічної взаємодії. У цьому разі рух фронту інфільтрації та розподіл тиску в заповнених інфільтратом капілярах описуються рівнянням Річардса [7–9] (вважається, що дія сил гравітації спрямована вздовж осі Oz)

$$\left(\frac{C}{\rho g} + S_e S \right) \frac{\partial p}{\partial t} = \operatorname{div} \left[\frac{k_s k_r}{\mu} (\operatorname{grad} p - \rho g \operatorname{grad} z) \right], \quad (1)$$

де C – капілярна вологомисткість; ρ – густина інфільтрату; g – прискорення земного тяжіння; S_e – ефективна насиченість пористого матеріалу інфільтратом; S – загальне стискання середовища, що залежить від пористості, стискання рідини, що просочується, та матеріалу каркасу; k_s – коефіцієнт проникності пористого середовища при насиченні; k_r – відносна проникність пористого середовища; μ – динамічна в'язкість інфільтрату, $p = p(\mathbf{r}, t)$ – тиск; \mathbf{r} – радіус-вектор досліджуваної точки простору; t – час. Для обчислення загального стискання середовища S використовують лінійний щодо вологості θ (відносного вмісту інфільтрату) вираз $S = \theta \chi_f + (1 - \theta) \chi_p$, де χ_f , χ_p – коефіцієнт стискання відповідно рідини і матеріалу каркасу пористої структури. Значення властивостей k_r , S_e та C визначають за результатами експерименту просочування рідиною пористого середовища. При використанні моделі ван Генуцтена [10] вирази для обчислення k_r , S_e і C мають вигляд

$$S_e = \begin{cases} \frac{1}{[1 + |\alpha H|^n]^m}, & p < 0, \\ 1, & p \geq 0; \end{cases}$$

$$C = \begin{cases} \frac{\alpha m}{1-m} (\theta_s - \theta_r) S_e^{\frac{1}{m}} \left(1 - S_e^{\frac{1}{m}}\right)^m, & p < 0, \\ 0, & p \geq 0; \end{cases} \quad (2)$$

$$k_r = \begin{cases} S_e^{1/2} \left[1 - \left(1 - S_e^{\frac{1}{m}}\right)^m\right]^2, & p < 0, \\ 1, & p \geq 0; \end{cases}$$

$$\theta = \begin{cases} \theta_r + S_e (\theta_s - \theta_r), & p < 0, \\ \theta_s, & p \geq 0, \end{cases}$$

де $H = p/(\rho g)$ – потенціал; $m = 1 - 1/n$; коефіцієнти α і n обчислюють за характерними точками та конфігурацією S-подібної кривої $H = H(\theta)$, яка апроксимує у площині « H - θ » експериментальні дані; θ_r – залишкова вологість; θ_s – вологість насиченого пористого середовища.

Для розв'язання рівняння (1) задають такі початкові та граничні умови:

$$p(\mathbf{r}, 0) = -P_k, \quad \mathbf{r} \in V; \quad (3)$$

$$p(\mathbf{r}, t) = 0, \quad \mathbf{r} \in \Sigma_{\text{вх}}; \quad (4)$$

$$\mathbf{u} \cdot \mathbf{n} = 0, \quad \mathbf{r} \in \Sigma \setminus \Sigma_{\text{вх}}, \quad (5)$$

де P_k – капілярний тиск; V – розрахункова область пористого середовища, яке просочується інфільтратом; Σ – поверхня області V ; $\Sigma_{\text{вх}}$ – частина поверхні Σ , через яку інфільтрат потрапляє в область V . Обґрунтування умов (3) – (5) використано з [11].

Чисельна методика

Рівняння (1) із коефіцієнтами (2) є нелінійним рівнянням параболічного типу. Для чисельного розв'язання задачі (1) – (5) використано метод скінченних елементів у поєднанні з методом Бубнова-Гальоркіна. Для дискретизації в часі використано стійку неявну різницеву схему [12]. На кожному кроці в часі числовий розв'язок отримано методом ітерацій. Критерієм завершення ітераційного процесу є умова

$$\frac{\left| \|\mathbf{p}^{i,s+1}\| - \|\mathbf{p}^{i,s}\| \right|}{\|\mathbf{p}^{i,s+1}\|} \leq \varepsilon,$$

де $\mathbf{p}^{i,s}$ і $\mathbf{p}^{i,s+1}$ – вектори вузлових значень тиску на двох сусідніх ітераціях на i -му кроці в часі; i – номер кроку в часі; $s + 1$ – номер останньої ітерації на кроці в часі; ε – відносна похибка ітераційного процесу.

Розв'язання тестових задач

Тестування розробленого програмного забезпечення було виконано шляхом розв'язання нелінійних задач.

А. Задача про температурні хвилі. У [12] наведено точний розв'язок такої одновимірної нестационарної нелінійної задачі теплопровідності: функція $u(x, t)$ задовольняє рівняння

$$\frac{\partial u}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(a u^b \frac{\partial u}{\partial x} \right) \quad (a > 0, b > 0) \text{ при } x > 0, \quad (6)$$

та умови: початкову

$$u(x, 0) = 0, \quad x > 0 \quad (7)$$

і граничну

$$u(0, t) = u_0 t^n, \quad t \geq 0. \quad (8)$$

Розв'язок задачі (6) – (8) має вигляд

$$u(x, t) = \begin{cases} \frac{u_0}{D^{1/b}} (Dt - x)^{1/b}, & 0 \leq x \leq Dt, \\ 0, & x > Dt, \end{cases} \quad (9)$$

де $n = 1/b$; $D = \sqrt{a u_0^b / b}$, і є рухомою тепловою хвилею, фронт якої рухається в додатному напрямі осі Ox зі швидкістю $v = dx/dt = D$.

При тестуванні розробленого комп'ютерного забезпечення на цій задачі вираз в дужках лівої частини рівняння (1) покладено рівним 1, в правій частині цього рівняння другий член не враховується, $k_s = 1$; $\mu = 1$; $k_r = a u^b$. Порівняння числового та аналітичного розв'язків при $a = 0,5$; $b = 2$; $D = 5$; $x \in [0; 2]$ і рівномірній дискретизації цього відрізка з кроком $\Delta x = 0,02$ показано на рис. 1.

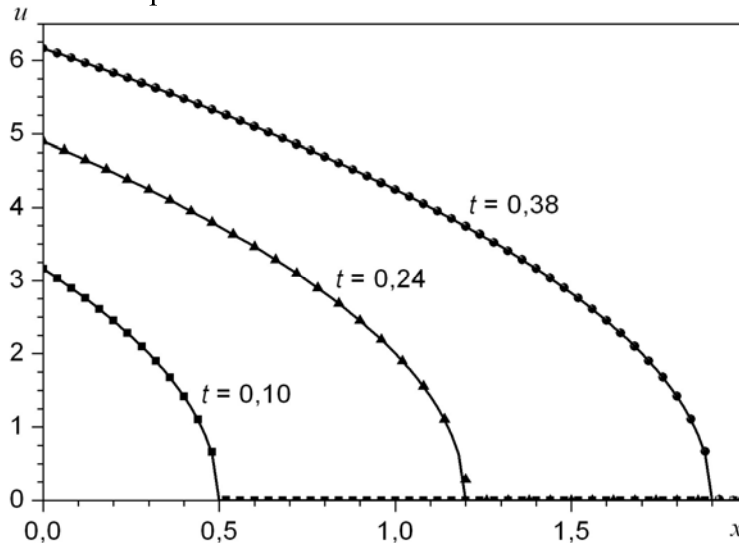


Рис. 1. Порівняння числового (позначено квадратиками, трикутниками і кружечками) і точного (суцільні лінії) розв'язків задачі про температурні хвилі в різні моменти

Як бачимо, числовий розв'язок добре узгоджується з аналітичним.

Б. Задача про інфільтрацію ґрунту. Розглянемо задачу про інфільтрацію води в шар ґрунту [13] товщиною $L = 40$ см. У початковий момент величина потенціалу H у шарі дорівнює $-61,5$ см. На верхньому боці шару ($z = 0$) величина потенціалу дорівнює $-20,7$ см, на нижньому ($z = -L$) значення потенціалу становить $-61,5$ см. Інфільтрація описується рівнянням Річардса в термінах потенціалу H :

$$C(H) \frac{\partial H}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left[K(H) \left(\frac{\partial H}{\partial z} - 1 \right) \right], \quad z \in [0; L], \quad t > 0, \quad (10)$$

де питома вологомiсткiсть $C(H)$ та гiдропровiднiсть $K(H)$ описуються рiвняннями

$$\theta(H) = \theta_r + \frac{\alpha(\theta_s - \theta_r)}{\alpha + |H|^\beta}, \quad K(H) = k_s \frac{A}{A + |H|^\gamma}, \quad C(H) = \frac{\partial \theta}{\partial H}; \quad (11)$$

α, β, A, γ – параметри, якi визначаються за результатами лабораторного експерименту.

Початкова та граничнi умови мають вигляд

$$H(z, 0) = -61,5; \quad H(0, t) = -20,7; \quad H(-L, t) = -61,5 \text{ см.} \quad (12)$$

У [13] наведено графiчно розв'язок задачi (10) – (12), отриманий при $\theta_r = 0,075$; $\theta_s = 0,287$; $\alpha = 1,611 \cdot 10^6$; $\beta = 3,96$; $A = 1,175 \cdot 10^6$; $\gamma = 4,74$; $L = 40$ см. Порiвняння числового розв'язку, отриманого в [13] (позначено кружечками), та числового розв'язку, отриманого з використанням розробленого програмного забезпечення (апроксимовано суцiльною лiнiєю), показано на рис. 2. Вiдрiзок змiни просторової координати z подiлено на 100 однакових елементiв.

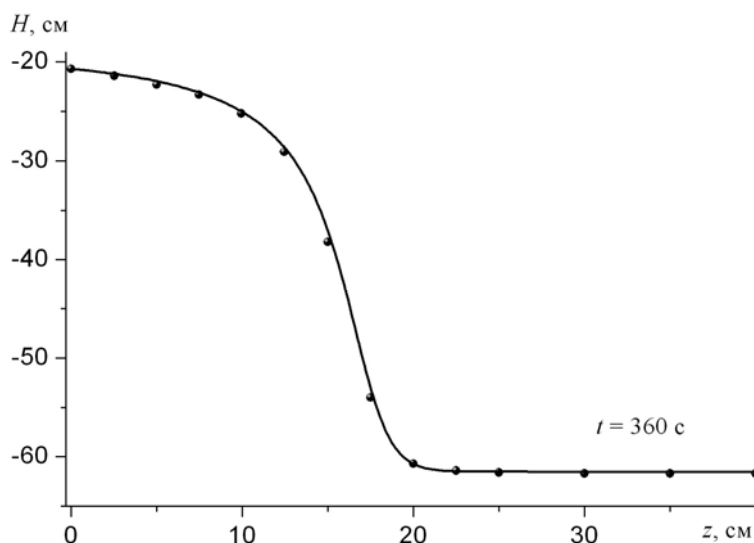


Рис. 2. Порiвняння отриманого числового розв'язку (апроксимовано суцiльною лiнiєю) iз числовим розв'язком, наведеним у [13]

Як бачимо, отриманий числовий розв'язок добре узгоджується iз розв'язком, наведеним у [13].

В. Задача про просочування рiдким кремнiєм пористого SiC-зразка.

Результати лабораторних дослiджень та чисельного моделювання iнфiльтрацiї рiдкого кремнiю в пористi зразки з карбiду кремнiю наведено в [5; 7].

У пропонуванiй роботi з метою тестування розробленого пакета програм виконано комп'ютерне моделювання iнфiльтрацiї рiдким кремнiєм пористих SiC-зразкiв з використанням математичної моделi (1) – (5). Висота зразка – 60 мм, загальна пористiсть $\theta_{\text{заг}} = 0,50$, закрита пористiсть $\theta_{\text{закр}} = 0,05$, середнiй дiаметр зерна структури каркасу $d_{\text{зер}} = 40$ мкм. Коефiцiєнт проникностi k_s обчислено за формулою [14]

$$k_s = \frac{\theta_{\text{iб}} d_{\text{ао}}^2}{32},$$

де $\theta_{\text{пр}} = \theta_{\text{заг}} - \theta_{\text{закр}}$; $d_{\text{еф}}$ – ефективний дiаметр пор [1],

$$d_{\text{ао}} = d_{\text{с\`ао}} \left(\sqrt{\frac{\pi}{2\sqrt{3}(1-\theta_{\text{iб}})}} - 1 \right);$$

$d_{\text{зер}}$ – дiаметр зерна пористої заготовки.

Для $d_{\text{зєр}} = 45$ мкм маємо величини $d_{\text{єф}} = 12,8$ мкм; $k_s = 0,23 \cdot 10^{-11}$ м². Капілярний тиск обчислено за формулою [1]

$$P_{\text{є}} = \frac{2 k_{\text{є}} \sigma \cos \psi}{d_{\text{єф}}},$$

де $k_{\text{ф}}$ – коефіцієнт форми (для сферичних пор $k_{\text{ф}} = 2$), σ – поверхневий натяг інфільтрату, ψ – кут змочування інфільтратом стінок капілярів. Кут змочування рідким кремнієм SiC-каркасу за температури 1415–1700 °С становить 31°–27° [2]. Значення поверхневого натягу використано з [15] ($\sigma = 0,86$ Н/м), для температурних залежностей густини і в'язкості – з [16]. При $\psi = 30^\circ$ значення $P_{\text{є}} = 2,33 \cdot 10^5$ Па.

Чисельне розв'язання задачі інфільтрації рідкого кремнію в пористий SiC-зразок виконали за таких значень параметрів: густина рідкого кремнію $\rho = 2370$ кг/м³, в'язкість $\mu = 0,52 \cdot 10^{-3}$ Па·с; $\chi_f = 4,24 \cdot 10^{-10}$ Па⁻¹; $\chi_p = 4,0 \cdot 10^{-12}$ Па⁻¹; $\theta_r = 0$; $\theta_s = 0,45$; $\alpha = 1,345$; $n = 1,264$. Параметри α і n для формул (2) визначали за відповідними формулами з [10] за умови узгодження отриманих результатів обчислень з числовими та експериментальними результатами, наведеними в [5; 7]. Порівняння отриманих числових результатів з результатами, наведеними в [7], показано на рис. 3 (слід зазначити, що наведені в [5; 7] результати з моделювання та експериментального дослідження інфільтрації рідкого кремнію в пористі карбідокремнієві зразки доволі близькі).

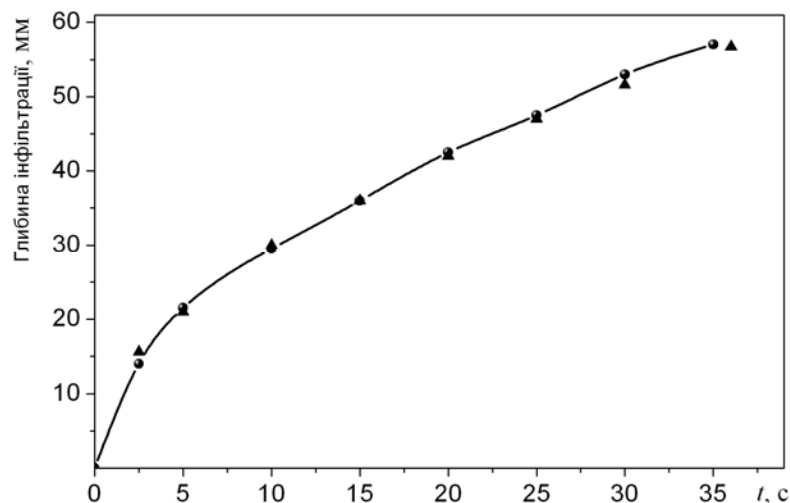


Рис. 3. Зміна в часі глибини інфільтрації рідкого кремнію в пористий SiC-зразок: порівняння отриманого числового розв'язку (суцільна лінія з кружечками) із даними, наведеними в [7] (позначено трикутниками)

Як бачимо, отримані результати узгоджуються з результатами, наведеними в [7] протягом усього процесу інфільтрації. Це свідчить про адекватність розробленої комп'ютерної моделі інфільтрації та її придатність для розв'язання задач інфільтрації.

Обговорення результатів

Виконана робота спрямована на комп'ютерне моделювання інфільтрації розплаву при спіканні керамічних композитів. Як впливає з наведеної в п. В інформації, для отримання в результаті моделювання достовірних результатів необхідно попередньо визначити параметри пористої структури заготовки – пористості, звивистості капілярної будови – та її інфільтраційних властивостей – коефіцієнта проникнення, питомої вологомісткості. Для коректного визначення останніх потрібно мати результати лабораторних досліджень

аналогічного процесу інфільтрації у зразках простої форми. Така інформація може бути своєрідною “реперною точкою” при моделюванні інфільтрації у зразках складної конфігурації.

Висновок

Розроблену комп’ютерну модель можна використовувати для моделювання та чисельного дослідження інфільтрації при спіканні керамічних композитів.

Приведена компьютерная модель инфильтрации пористых образцов при спекании. Модель основана на уравнении Ричардса и формулах ван Генучтена для описания свойств инфильтрации. Для пространственно-временной дискретизации уравнения Ричардса использован метод конечных элементов и разностная полностью неявная схема по времени. Выполнено моделирование инфильтрации жидким кремнием пористых SiC-образцов при их спекании.

Ключевые слова: компьютерное моделирование, инфильтрация, пористые SiC-образцы, спекание.

The computer model of infiltration of the porous specimen during sintering is presented. Model is based on Richards equation and retention model in formulas of van Genuchten. For spatio-temporal discretisation of Richards equation the finite elements method and full implicit finite-difference time-scheme are used. The simulation of infiltration of melt silicon in porous SiC-specimen is realized.

Key words: computer simulation, infiltration, porous SiC-specimens, sintering.

Література

1. Тучинский Л. И. Композиционные материалы, получаемые методом пропитки. – М.: Металлургия, 1986. – 208 с.
2. Гнесин Г. Г. Карбидокремниевые материалы. – М.: Металлургия, 1977. – 216 с.
3. Бочечка А. А. Миграция жидкой фазы при спекании алмазных порошков методом пропитки в условиях высоких давлений и температур // Сверхтвердые матер. – 1999. – № 2. – С. 17–23.
4. Косинский В. В. Математическое обоснование влияния основных технологических факторов на процессы пропитки недеформируемых пористых оснований вязкими средами под высоким давлением// Порошковая металлургия. – 2009. – № 1/2. – С. 18–28.
5. Einset E. Analysis of reactive melt infiltration in the processing of ceramics and ceramic composites// Chem. Eng. Sci. – 1998. – **53**. – N 5. – P. 1027–1038.
6. Michaud V., Mortensen A. Infiltration processing of fibre reinforced composites: governing phenomena // Composites: Part A. – 2001. – N 32. – P. 983–996.
7. Yushanov S. P., Crompton J. S., Koppenhoefer K. C. Simulation of Manufacturing Process of Ceramic Matrix Composites// Excerpt from the Proceedings of the COMSOL Conference 2008, Boston. – P. 1–6.
8. Patro D., Bhattacharya S., Jayaram V. Flow Kinetics in Porous Ceramics: Understanding with Non-Uniform Capillary Models // J. Am. Ceram. Soc. – 2007. – **90**. – N 10. – P. 3040–3046.
9. Tomography of the Darcy velocity from self-potential measurements / A. Jardani, A. Revil, A. Boleve, et al. // Geophysical Research Letters. – 2007. – **34**. – L24403. – P. 1–6.
10. Van Genuchten M. T. A closed-form for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils// Soil Sci. Soc. Am. J. – 1980. – **44**. – N 5. – P. 892–898.
11. Баренблатт Г. И., Ентов В. М., Рыжик В. М. Теория нестационарной фильтрации жидкости и газа. – М.: Недра, 1972. – 288 с.
12. Самарский А. А. Теория разностных схем. – М.: Наука, 1989. – 616 с.

13. Shahraiyini H. T., Ashtiani B. A. Comparison of Finite Difference Schemes for Water Flow in Unsaturated Soils // Intern. J. of Aerospace and Mechanical Engineering. – 2009. – 3. – N 1. – P. 1–5.
14. Коллинз Р. Течение жидкостей через пористые среды. – М.: Мир, 1964. – 350 с.
15. Таблицы физических величин: Справочник / Под ред. И. К. Кикоина. – М.: Атомиздат, 1976. – 1008 с.
16. Глазов В. М., Чижевская С. Н. Жидкие полупроводники. – М.: Наука, 1968. – 244 с.

Надійшла 25.05.12

УДК 621.762:921.34

Г. С. Олейник, д-р физ-мат. наук, **В. М. Волкогон**, д-р техн. наук,
С. К. Аврамчук, канд. техн. наук, **А. В. Котко**, канд. физ-мат. наук, **Ю. А. Федоран**

Институт проблем материаловедения им. И.Н. Францевича НАН Украины, г.Киев

МИКРОСТРУКТУРНЫЕ ОСОБЕННОСТИ КОНТАКТНОГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ В СИСТЕМЕ ЧАСТИЦ АЛМАЗА И ВЮРТЦИТНОГО НИТРИДА БОРА ПРИ ВЫСОКИХ ДАВЛЕНИИ И ТЕМПЕРАТУРЕ

Представлено краткое рассмотрение результатов исследования методами просвечивающей электронной микроскопии тонких фольг и реплик от естественных поверхностей разрушения, а также растровой электронной микроскопии микроструктуры модельных образцов на основе смеси порошков алмаза и BN_v , спеченных при $P = 7,7$ ГПа в интервале $T = 1600\text{--}2000$ °С. Сделан вывод, что такие особенности микроструктуры образцов (полученных при $T = 1700\text{--}1800$ °С) как наличие сплошных межфазных границ, формирование промежуточного слоя между частицами алмаза и матричной составляющей BN_v , оваллизация частиц алмаза могут служить непосредственным подтверждением контактного взаимодействия алмаза и BN_v .

Ключевые слова: нитрид бора, алмаз, спекание, структура, твердый раствор.

Одно из важнейших направлений в разработке новых сверхтвердых материалов – создание композитов на основе плотных модификаций углерода и нитрида бора. Наибольший интерес представляет получение таких композитов со связующей составляющей в форме твердого раствора указанных фаз с алмазоподобной решеткой а-В–N–С.

В ряде работ [1–5] сообщалось о получении материалов состава (сBN+алмаз), однако сведения о структурном состоянии межфазных границ в таких материалах и в целом о взаимодействии исходных фаз отсутствуют. Для получения таких материалов использовали смеси порошков следующих составляющих: графитоподобного карбонитрида бора [1], алмаза и графитоподобного BN_r [2], графита и сBN [3], графита и BN_r [4], сBN+алмаз [5].

Первые сведения о получении при высоких давлениях и температурах твердых растворов а-В–N–С были представлены в [6; 7]. В качестве исходных составляющих использовали графитоподобный карбонитрид бора [6], графит и BN_r [7]. В настоящее время имеется множество работ, посвященных синтезу, исследованию свойств, а также теоретическому анализу структуры и расчету прочностных характеристик твердых растворов а-В–N–С [8–16]. Наиболее детальные исследования раствора состава а- BC_2N , полученного на основе исходного графитоподобного карбонитрида бора, приведены в [11; 12]. Твердость упомянутого твердого раствора при нагрузке до $5 \text{ Н } H_V = 76$ ГПа и, по данным [6], содержание углерода в сBN достигает 6,5 % (ат.).