

В. А. Дутка*, А. Л. Майстренко, В. Г. Кулич

Інститут надтвердих матеріалів ім. В. М. Бакула

НАН України, м. Київ, Україна

*vadutka@ukr.net

Вплив конструктивних параметрів технологічної установки на перепад температури в заготовці при високошвидкісному спіканні під тиском

Методом скінчених елементів проведено комп'ютерне моделювання температурного поля в робочій комірці технологічної установки високошвидкісного спікання під тиском порошкових заготовок із карбіду бору. Враховано залежність теплофізичних властивостей порошкової заготовки від пористості та температури. З метою мінімізації перепаду температури в порошковій заготовці виконано комп'ютерне дослідження впливу схеми комірки на перепад температури в заготовці. За результатами комп'ютерних експериментів вибрано схему робочої комірки установки високошвидкісного спікання під тиском і відповідні режими нагрівання, при яких протягом 80–150 с досягається температура спікання заготовки 2000 °С, а перепад температури в заготовці на стадії витримки протягом 100–150 с знаходиться в межах 50–30 град. За результатами лабораторних експериментів встановлено, що використання вибраної схеми комірки дає змогу отримати практично однорідний розподіл мікротвердості матеріалу спеченого виробу.

Ключові слова: комп'ютерне моделювання, високошвидкісне спікання під тиском, карбід бору, мінімізація перепаду температури, однорідний розподіл мікротвердості.

ВСТУП

Висока механічна міцність та термостійкість керамічних виробів на основі карбіду бору В₄С досягається за умови високої щільності спеченого матеріалу, малого розміру зерна структури [1] та однорідності термомеханічних властивостей. З цією метою спікання сумішей на основі В₄С необхідно проводити за високих температур під тиском і за як можливо найменшої тривалості процесу спікання. Актуальним за таких умов є забезпечення допустимого – не більше 50 град – перепаду температури в заготовці на стадії витримки при завершенні формування властивостей виробу.

Порошкові заготовки на основі карбіду бору залежно від добавок та розмірів зерен порошкової суміші спікають в графітових прес-формах під тиском 30–100 МПа за температури 1800–2200 °С [1–6]. Температуру спікання можна суттєво знизити – на 200–300 град, а тривалість спікання значно скоротити, використовуючи спосіб високошвидкісного спікання під тиском (ВШСТ) при збільшенні тиску до 500 МПа [7, 8]. На даний час є широкий спектр способів швидкісного спікання під тиском [9, 10] металевих і керамічних композицій. Схему технологічної установки та відповідний режим спі-

кання вибирають залежно від умов отримання якісного спеченого виробу. Для спікання під тиском, більшим за 100 МПа, необхідно використовувати в технологічній установці пуансони з термостійких матеріалів, міцніших від графіту. Такими матеріалами є молібденові сплави [11, 12], які є термостійкими за температури 1500–1800 °С протягом тривалого часу, а за температури 2000–2300 °С є термостійкими не більше 5 хв.

В даній роботі з метою мінімізації перепаду температури в об'ємі заготовки в процесі ВШСТ виконано комп'ютерне моделювання температурного поля в робочій комірці технологічної установки. Серед розглянутих вибрано таку конструкцію робочої комірки і відповідний режим нагрівання, для яких вдається на стадії витримки досягнути невисокого перепаду температури в заготовці і забезпечити практично рівномірний розподіл твердості по об'єму спеченого зразка.

МАТЕМАТИЧНА МОДЕЛЬ

В технологічній установці в процесі ВШСТ протікає електричний струм промислової частоти 50 Гц. В результаті протікання струму в електропровідних елементах установки діють джоулеві джерела тепла, що приводить до нагрівання цих та інших елементів установки. В комп'ютерній моделі вибрано чверть осьового перетину робочої комірки технологічної установки (рис. 1).

Для моделювання електричного і температурного полів використано зв'язану систему рівнянь квазістаціонарної електропровідності

$$\operatorname{div}(\sigma \operatorname{grad} U) = 0 \quad (1)$$

і нестационарної теплопровідності

$$c\gamma \frac{\partial T}{\partial t} = \operatorname{div}(\lambda \operatorname{grad} T) + \sigma (\operatorname{grad} U)^2 \quad (2)$$

з початковими умовами

$$U(r, z, 0) = 0, \quad T(r, z, 0) = T_0, \quad (3)$$

граничними умовами на зовнішніх поверхнях S_{AB} і S_{BC} розрахункової області

$$U(r, z, t) = f(t), \quad \lambda \frac{\partial T}{\partial n}(r, z, t) = \alpha_2(T_c - T), \quad (r, z) \in S_{AB}; \quad (4)$$

$$\sigma \frac{\partial U}{\partial n}(r, z, t) = 0, \quad \lambda \frac{\partial T}{\partial n}(r, z, t) = \alpha_1(T_c - T), \quad (r, z) \in S_{BC}, \quad (5)$$

умовами симетрії на поверхні S_{OC}

$$U(r, z, t) = 0, \quad \frac{\partial T}{\partial n}(r, z, t) = 0, \quad (r, z) \in S_{OC} \quad (6)$$

і на осі симетрії Oz

$$\frac{\partial U}{\partial n}(r, z, t) = 0, \quad \frac{\partial T}{\partial n}(r, z, t) = 0, \quad (r, z) \in AO. \quad (7)$$

Тут $U = U(r, z, t)$, $T = T(r, z, t)$ – відповідно діючий електричний потенціал і температура в момент часу t в точці з координатами r і z в циліндричній системі координат; σ , γ , c і λ – питома електропровідність, густина, питома

теплоємність і коефіцієнт теплопровідності відповідно, які є функціями температури і координат точки; T_0 – початкова температура (20 °C), T_c – температура зовнішнього повітряного середовища (20 °C); $\alpha_1 = 15 \text{ Вт}/(\text{м}^2 \cdot \text{град})$ – коефіцієнт конвективного теплообміну (розрахованого за методикою [13]); $\alpha_2 = 50 \text{ Вт}/(\text{м}^2 \cdot \text{град})$ – ефективний коефіцієнт теплообміну з плитою від пресу, розрахований на основі закону збереження тепла на поверхні плити. У виразах (4)–(7) $\frac{\partial}{\partial n}$ – похідна від відповідної величини в напрямі вектора зовнішньої нормалі до поверхні.

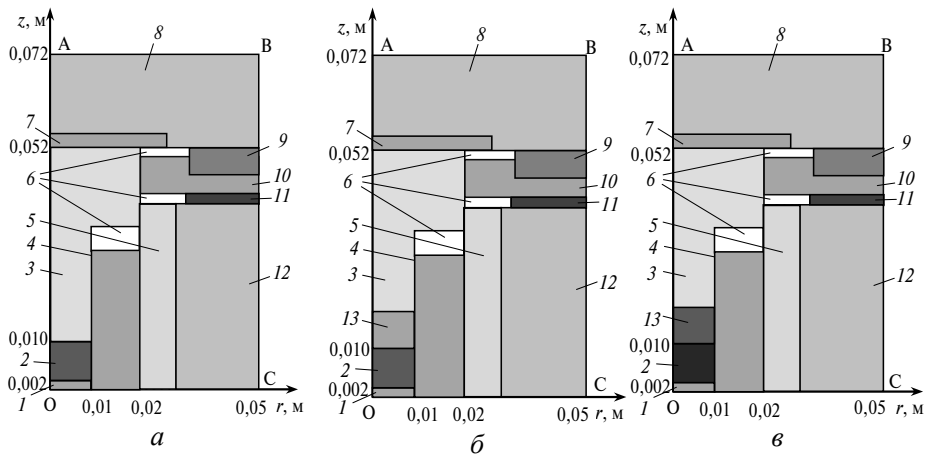


Рис. 1. Схеми робочої комірки технологічної установки ВШСТ (чверть осьового перетину): схема I (а), II (б), III (в); 1 – графітова прокладка (МПГ-6); 2 – брикет ($\text{В}_4\text{С}$); 3 – пуансон (Мо); 4 – прес-форма (МПГ-6); 5 – контейнер (літографський камінь); 6 – повітряні порожнини; 7 – контактна пластина (латунь); 8 – пластина пресу (сталь 35ХГСА); 9 – пружний наповнювач (термостійка гума); 10 – роздільна пластина (сталь 35ХГСА); 11 – електроізоляційна пластина (кварц); 12 – обойма (сплав ЕІ); 13 – теплоізоляційний диск (графіт МПГ-6 (б, схема II) і ZrO_2 (в, схема III)).

Між поверхнями, що утворюють повітряні порожнини (див. рис. 1), враховується, аналогічно [14], променевий теплообмін із такими значеннями коефіцієнта випромінювання: для графіту – 0,8, латуні – 0,7, молібдену – 0,8, сталі і латуні – 0,7, літографського каменю і кварцу – 0,6.

На поверхнях контакту пуансону і заготовки, пуансону і прес-форми, пуансону і контейнера, пуансону і роздільної пластини, заготовки і прес-форми, заготовки і прокладки, прес-форми і контейнера, контейнера і обойми задаються умови електричного і теплового контактів [15–17]:

$$q_k|_1 = q_k|_2 = \lambda_k(T, p, r, z)(T_1 - T_2); \quad (8)$$

$$j_k|_1 = j_k|_2 = \sigma_k(T, p, r, z)(U_1 - U_2), \quad (9)$$

де q_k і j_k – відповідно тепловий потік і густина електричного струму на поверхні контакту, індексами 1 і 2 позначено величини по одну та по другу сторони поверхні контакту; λ_k і σ_k – контактні коефіцієнт теплопровідності та питома електропровідність; p – тиск. Значення контактної тепло- та електропровідності були задані як функції температури з урахуванням тиску на поверхнях контакту та використанням даних [15–17].

На горизонтальних і вертикальних поверхнях контакту пуансону з заготовкою, заготовки з графітовою прокладкою, пуансона і заготовки з прес-формою було вибрано умови суцільного теплового контакту внаслідок дії тут великих тисків близьких до 500 МПа. На вертикальних поверхнях контакту пуансона з контейнером, пуансона з роздільною пластиною, прес-форми з контейнером і контейнера з обіймою значення контактної теплопровідності було вибрано рівним $3,0 \cdot 10^4$ Вт/(м²·град), а значення контактної питомої електропровідності σ_k – залежним від температури (табл. 1) аналогічно [15–17].

Таблиця 1. Залежність контактної електропровідності від температури

$T, ^\circ\text{C}$	0	100	300	500	800	1000	1400	1900	2500
$\sigma_k \cdot 10^{-6}, \text{Om}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$	3,0	3,2	3,4	3,5	4,2	5,0	5,3	6,1	7,4

В комп'ютерних експериментах було прийнято значення температури спікання заготовки 2000 °С. Відомо [1, 2, 18], що високої щільності зразки з карбиду бору отримують при температурі гарячого пресування 2050–2150 °С, а при використанні різних добавок її можна знизити до 1800–2000 °С. Значення теплофізичних властивостей матеріалів робочої комірки технологічної установки було вибрано за даними [1, 14, 19–24].

При моделюванні теплофізичних властивостей матеріалу заготовки в процесі спікання під тиском 500 МПа було використано, аналогічно [25, 26], спрощений підхід з урахуванням зміни пористості від температури $\theta = \theta(T)$. Функцію $\theta = \theta(T)$ було отримано з графіка в [25], на якому наведено експериментальні й розрахункові дані зміни в часі щільності та температури зразка з карбиду бору в процесі SPS-спікання. Графік функції $\theta = \theta(T)$ наведено на рис. 2. Слід зазначити, що в [1] наведено графік залежності щільності порошкової заготовки на основі карбиду бору від температури гарячого пресування при тиску 37,5 МПа в діапазоні температур 1800–2200 °С; цей графік при перерахунку щільності через пористість є близьким до наведеного на рис. 2.

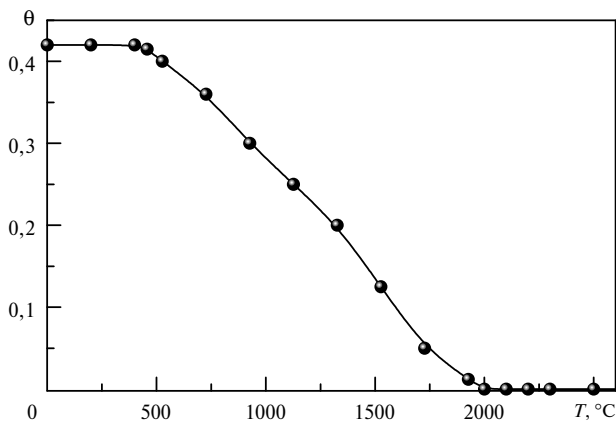


Рис. 2. Моделювання зміни пористості в процесі спікання як функції температури (за результатами [25]).

З урахуванням пористості теплофізичні властивості порошкової заготовки обчислювали за формулами [25, 26]

$$C(T) = C_m(T)(1 - \theta(T)); \quad (10)$$

$$\lambda(T) = \lambda_m(T) \left(1 - \frac{3}{2} \theta(T) - \frac{1}{2} \theta^2(T) \right); \quad (11)$$

$$\sigma(T) = \sigma_m(T) \frac{1 - \theta(T)}{1 + 2\theta(T)}, \quad (12)$$

де $C_m(T)$, $\lambda_m(T)$, $\sigma_m(T)$, – відповідно питома теплоємність, коефіцієнт теплопровідності та питома електропровідність суцільного матеріалу. Ці функції мають вигляд

$$C_m(T) = (C_0 + C_1 T + C_2 T^2 + C_3 T^3 + C_4 T^4 + C_5 T^5) / A_{B_4C};$$

$$\lambda_m(T) = \lambda_0 + \lambda_1 \exp\left(-\frac{T}{A_1}\right) + \lambda_2 \exp\left(-\frac{T}{A_2}\right);$$

$$\sigma_m(T) = \sigma_0 + \sigma_1 T + \sigma_2 T^2 + \sigma_3 T^3,$$

де $C_0 = -53,266$, $C_1 = 5,339 \cdot 10^{-1}$, $C_2 = -6,991 \cdot 10^{-4}$, $C_3 = 45,437 \cdot 10^{-8}$, $C_4 = -139,224 \cdot 10^{-12}$, $C_5 = 1,637 \cdot 10^{-14}$; $A_{B_4C} = 0,05485$ – атомна вага карбїду бору; $\lambda_0 = 4,151$, $\lambda_1 = 25,814$, $\lambda_2 = 96,917$; $A_1 = 1386,462$, $A_2 = 197,199$; $\sigma_0 = -5652,503$, $\sigma_1 = 26,302$, $\sigma_2 = -1,562 \cdot 10^{-2}$, $\sigma_3 = 3,203 \cdot 10^{-6}$; T – температура за Кельвіном. Функцію $C_m(T)$ було визначено за експериментальними даними [27] для питомої теплоємності карбїду бору B_4C за температури в інтервалі 298–2700 К, $\lambda_m(T)$ – за експериментальними даними [22–24, 28–30] для коефіцієнта теплопровідності B_4C за температури в інтервалі 298–1700 К, $\sigma_m(T)$ – за експериментальними даними [1, 30] для питомої електропровідності карбїду бору B_4C в інтервалі температур 293–2450 К.

З метою достовірного моделювання властивостей порошкової заготовки з карбїду бору B_4C в процесі спікання було проведено вимірювання питомого електроопору порошкової заготовки при кімнатній температурі під тиском 500 МПа і спеченої при цьому ж тиску заготовки. Для вимірювання питомого електроопору зразків використовували двохзондовий метод. За результатами вимірювання середнє значення питомого електроопору пористих зразків за кімнатної температури під тиском 500 МПа дорівнювало 7450 Ом·м, яке на шість порядків більше від значення $0,3 \cdot 10^{-2}$ Ом·м, розрахованого за кімнатної температури і початкової пористості $\theta = 0,42$ з використанням формули (12). Як вдалося встановити в результаті структурного аналізу, така велика розбіжність між вимірним і розрахунковим питомим електроопором в значній мірі зумовлена наявністю оксидних плівок із B_2O_3 на B_4C -частинках суміші. Тому для апроксимації питомої електропровідності $\sigma(T)$ суміші в інтервалі температур від кімнатної до температури остаточного ущільнення 2000 °С у

вирази для обчислення $\sigma(T)$ було введено множник $\left(1 + K_\sigma \cdot 10^{-a \frac{T}{T_\sigma}} \right)^{-1}$, коефі-

цієнти K_σ і b якого вибиралися такими, щоби за кімнатної температури питома електропровідність матеріалу $\sigma(T)$ заготовки дорівнювала вимірній $1,342 \cdot 10^{-4}$ Ом $^{-1}$ ·м $^{-1}$, а за температури 2000 °С значення $\sigma(T)$ дорівнювало питомій електропровідності ущільненого матеріалу з карбїду бору B_4C , обчис-

леної за формулою (12) при залишковій пористості 0,02. В результаті для температурної залежності питомої електропровідності заготовки в процесі спікання було отримано вираз

$$\sigma(T) = \begin{cases} \sigma_m(T) \frac{1-\theta(T)}{1+2\theta(T)} \left(1 + K_\sigma 10^{-a \frac{T}{T_\sigma}} \right)^{-1}, & (T_0 + 273) \text{ K} \leq T \leq 2273 \text{ K}, \\ \sigma_m(T) \frac{1-\theta(T)}{1+2\theta(T)}, & T > 2273 \text{ K}, \end{cases} \quad (13)$$

де $K_\sigma = 5,667 \cdot 10^7$, $a = -10,753$, $T_\sigma = 2273 \text{ K}$.

Для моделювання коефіцієнта теплопровідності заготовки в процесі спікання під тиском 500 МПа з урахуванням зміни її пористості та наявності оксидних плівок із V_2O_3 на V_4C -частинках суміші використовували формулу

$$\lambda(T) = \begin{cases} \lambda_m(T) \left(1 - \frac{3}{2}\theta(T) - \frac{1}{2}\theta^2(T) \right) \left(1 + K_\lambda 10^{-b \frac{T}{T_0}} \right)^{-1}, & (T_0 + 273) \text{ K} \leq T \leq 2273 \text{ K}; \\ \lambda_m(T) \left(1 - \frac{3}{2}\theta(T) - \frac{1}{2}\theta^2(T) \right), & T > 2273 \text{ K}, \end{cases} \quad (14)$$

аналогічну (13) для питомої електропровідності (у формулах (10)–(14) значення температури береться за Кельвіном). Оскільки значення коефіцієнта теплопровідності оксиду V_2O_3 , що дорівнює 0,54 Вт/(м·град) при кімнатній температурі і тиску 500 МПа [31], значно менше (в 24,5 разів) від значення коефіцієнта теплопровідності пористого матеріалу на основі V_4C , обчисленого за формулою (11) – 13,24 Вт/(м·град), то в комп'ютерних експериментах було розглянуто три таких моделі виду (14) коефіцієнта теплопровідності заготовки.

В першій моделі коефіцієнти K_λ і b вибирали такими, щоб за кімнатної температури і початкової пористості коефіцієнт теплопровідності заготовки дорівнював коефіцієнту теплопровідності оксиду (0,54 Вт/(м·град)), а за температури спікання 2000 °С коефіцієнт теплопровідності заготовки дорівнював коефіцієнту теплопровідності ущільненого матеріалу карбіду бору з відносною залишковою пористістю 0,02. В цій моделі $K_\lambda = 74,817$, $b = -3,874$.

В другій (проміжній) моделі коефіцієнти K_λ і b вибирали такими, щоб за кімнатної температури і початкової пористості значення коефіцієнта теплопровідності заготовки було в кілька разів більше від коефіцієнта теплопровідності оксиду (дорівнював 1,97 Вт/(м·град)), а за температури спікання 2000 °С коефіцієнт теплопровідності заготовки дорівнював коефіцієнту теплопровідності ущільненого матеріалу карбіду бору. В цій моделі $K_\lambda = 16,866$, $b = -3,680$.

В третій моделі не враховували наявність оксидних плівок і значення коефіцієнта теплопровідності матеріалу заготовки обчислювали за формулою (11).

Потрібно зауважити, що для ущільненого матеріалу заготовки за температури, більшої від 2000 °С, значення коефіцієнта теплопровідності матеріалу заготовки в усіх його моделях є практично однаковими. Всі три моделі базуються на врахуванні низької температури плавлення 450–470 °С і невисокої (1860 °С) температури випаровування оксиду бору V_2O_3 [32, 33]. Звідси впливає, що в процесі спікання по мірі зростання температури матеріалу заготовки вплив плівок з оксиду бору V_2O_3 на теплофізичні властивості заготовки поступово буде зменшуватися і на момент досягнення температури 2000 °С цей вплив стає незначним. Тому в усіх трьох моделях коефіцієнта теплопровідності матеріалу заготовки, починаючи з температури 2000 °С, вплив плівок з оксиду бору V_2O_3 не враховували.

Необхідно також зазначити, що за результатами проведених комп'ютерних експериментів значення перепаду температури в заготовці на стадії витримки процесу спікання ΔT_1 , ΔT_2 , ΔT_3 , отримані для випадків використання відповідно першої, другої і третьої моделі коефіцієнта теплопровідності заготовки, відрізнялися між собою несуттєво – в межах 5 град. Тому більшість комп'ютерних експериментів було виконано з використанням другої (проміжної) моделі коефіцієнта теплопровідності заготовки.

РЕЗУЛЬТАТИ ОБЧИСЛЕНЬ ТА ОБГОВОРЕННЯ

Для розв'язання задачі (1)–(11), (13)–(14) використано метод скінченних елементів. Розрахункову область (див. рис. 1) розбивали на 8-вузлові елементи з квадратичною апроксимацією електричного потенціалу та температури. Розв'язання результуючої системи нелінійних рівнянь відносно вузлових значень потенціалу та температури виконували методом Ньютона-Рафсона у поєднанні з методом випромінювань. Обчислення проведено з відносною похибкою 10^{-2} .

Спочатку було виконано обчислення для найпростішої схеми I технологічної установки (див. рис. 1, а), в якій молібденовий пуансон безпосередньо контактує з заготовкою. На рис. 3, а наведено режим прикладеної електричної напруги, який забезпечує швидке (за 90–100 с) досягнення максимальної температури в заготовці $2000\text{ }^\circ\text{C}$ і утримання цього рівня на стадії витримки в процесі спікання (див. рис. 3, б). Слід зазначити, що в обчисленнях значення електричної напруги в межах 1,2–2,0 В (прикладеної до половини робочої комірки) на стадії нагрівання вибирали на основі даних із лабораторних дослідів по спіканню заготовок діаметром 10–20 мм. На рис. 4 і 5 наведено картини температурного поля в технологічній установці та в заготовці в процесі спікання. Як видно на рис. 5, перепад температури в заготовці $\Delta T_{\text{зар}}$ під час витримки помітно (на 22 %) зменшується – від $397\text{ }^\circ\text{C}$ в момент 100 с до $311\text{ }^\circ\text{C}$ при 250 с, однак він залишається досить значним, а температурне поле в заготовці є сильно неоднорідним (див. рис. 5, з). Слід зазначити, що за результатами обчислень, починаючи з 20–30 с, мінімальна і максимальна температури в заготовці знаходяться на її поверхні в точках 2 і 4 відповідно (див. рис. 3, б). Як бачимо на рис. 4, зона з максимальною температурою розташована в об'ємі прес-форми і з плином часу зміщується до площини $z = 0$ симетрії установки, ближче до заготовки.

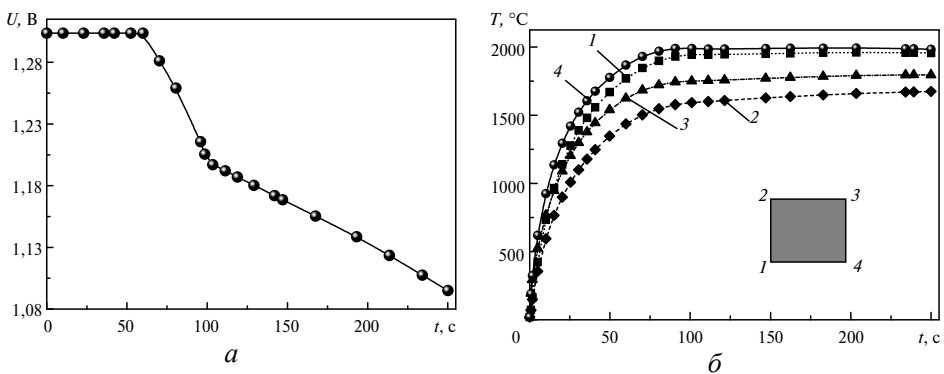


Рис. 3. Зміна напруги електричного поля (а) в процесі спікання і температура (б) в точках 1, 2, 3 і 4 заготовки при використанні схеми I (див. рис. 1, а); товщина стінки графітової прес-форми $\Delta r = 0,010$ м.

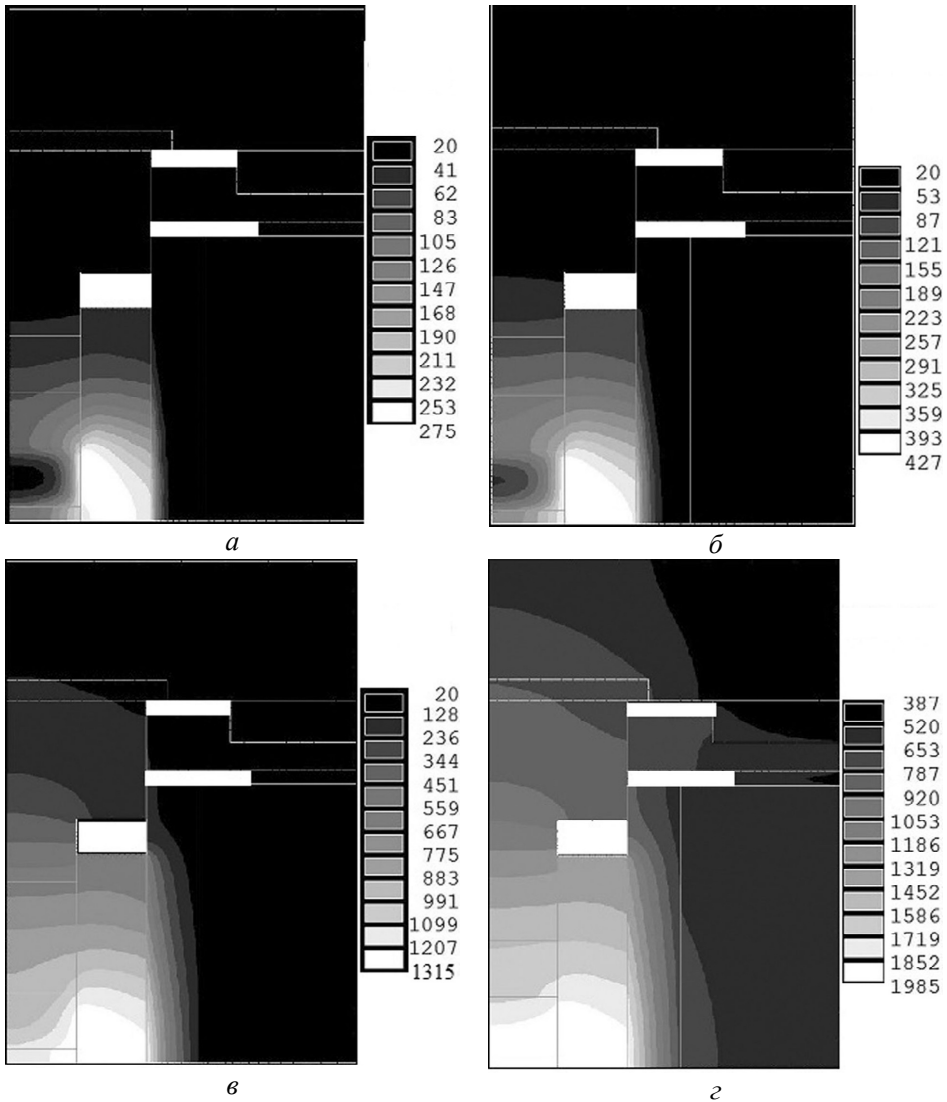


Рис. 4. Обчислений розподіл температури T , °C, в технологічній установці схеми I в різні моменти спікання: 1 (*a*), 2 (*б*), 20 (*в*), 250 (*г*) с; товщина стінки графітової прес-форми $\Delta r = 0,010$ м.

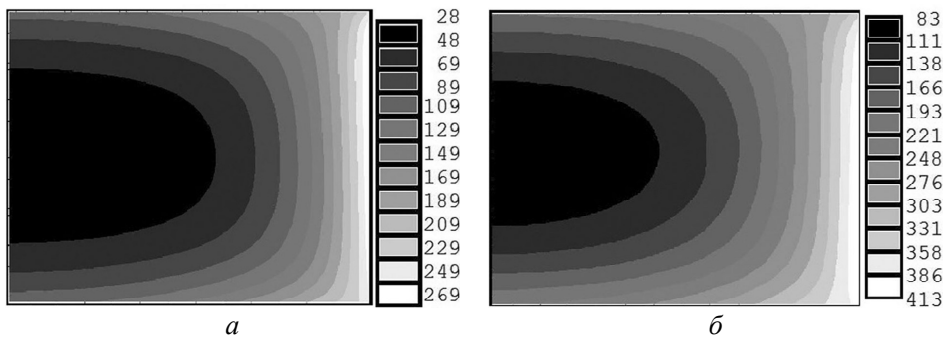


Рис. 5. Обчислене температурне поле T , °C, в заготовці в різні моменти спікання при використанні схеми I: 1 (*a*), 2 (*б*), 20 (*в*), 250 (*г*) с; товщина стінки графітової прес-форми $\Delta r = 0,01$ м.

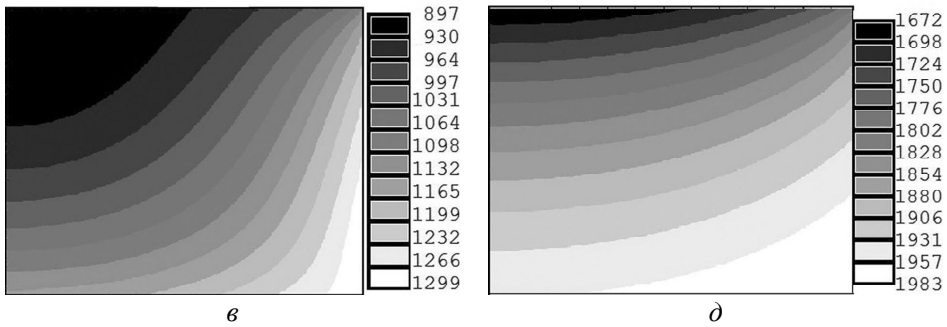


Рис. 5. (Продовження).

Характерним при використанні схеми I є те, що протягом всього процесу спікання спостерігається великий відтік тепла від заготовки безпосередньо через пуансон (див. рис. 4), матеріал якого – молибден, має велику теплопровідність. Внаслідок цього в заготовці є великий перепад температури. Для його зменшення доцільно на шляху відтоку тепла від заготовки до пуансону розмістити, наприклад, диск із термостійкого матеріалу, який має значно меншу теплопровідність, ніж молибден чи його сплави. З цією метою було виконано комп'ютерне моделювання температурного поля ще у двох таких схемах технологічної установки: в схемі II (див. рис. 1, б), в якій між пуансоном і заготовкою розміщено графітовий диск висотою 0,008 м, і в схемі III (див. рис. 1, в), в якій між пуансоном і заготовкою розташовано диск із двоокису цирконію ZrO_2 такої ж висоти. Зміну електричної напруги, при якій протягом 90–100 с температура в заготовці досягає 2000 °С, для схем II і III наведено відповідно на рис. 6, а і 7, а, а зміну в часі температури в контрольних точках поверхні заготовки – на рис. 6, б і 7, б відповідно. Як бачимо на рис. 3, б, 6, б і 7, б при переході від схеми I до схеми II перепад температури в заготовці при завершенні витримки зменшується в 2,2 рази – з 310 до 138 °С, а при переході від схеми II до схеми III перепад температури зменшується ще суттєвіше – в 2,8 рази, до 49 град; при такому перепаді вже є можливим досягнути однорідності фізико-механічних властивостей матеріалу спеченої заготовки.

Отже, схему III доцільно використовувати для забезпечення однорідності фізико-механічних властивостей спеченого виробу.

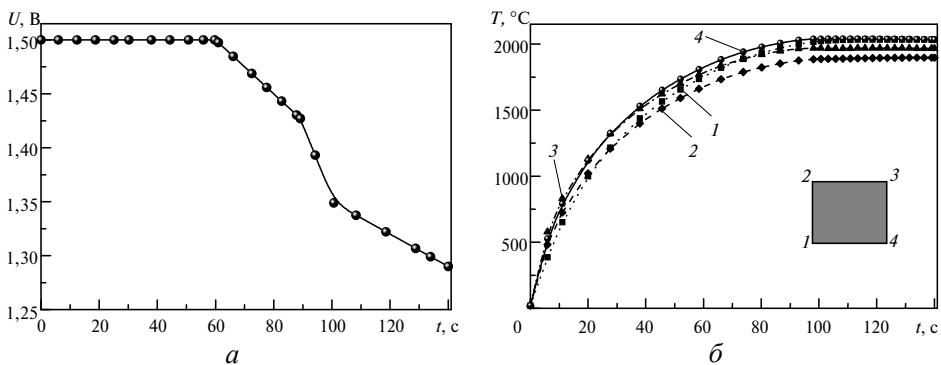


Рис. 6. Зміна напруги електричного поля (а) в процесі спікання і температура (б) в точках заготовки 1, 2, 3 і 4 при використанні схеми II (див. рис. 1, б); товщина стінки графітової прес-форми $\Delta r = 0,01$ м.

Як впливає з результатів обчислень, проведених для схеми III, на розподіл температури в технологічній установці і перепад температури в заготовці

в процесі ВШСТ суттєво впливає товщина стінки прес-форми і висота диску між пуансоном і заготовкою. Це ілюструє рис. 8 – при збільшенні товщини стінки прес-форми від 0,005 до 0,015 м перепад температури в заготовці при завершенні витримки зменшується більше ніж в 3 рази (криві 1, 2 і 3), а при збільшенні висоти теплоізоляційного диску з ZrO_2 від 0,008 до 0,012 м перепад температури в заготовці ще зменшується майже на третину – від 50 до 35 град (див. рис. 8, криві 3 і 4). У кожному з чотирьох комп'ютерних дослідів (див. рис. 8, криві 1–4) було вибрано такі режими електричної напруги, подібно до наведених на рис. 3, а, 6, а і 7, а, що приблизно за 100 с максимальна температура в заготовці досягала 2000 °С, а протягом наступних 150 с проводили витримку при цій температурі. Для комп'ютерного дослідів, за результатами якого отримано найменший перепад температури в заготовці (див. рис. 8, крива 4), на рис. 9 наведено вибраний режим електричної напруги і зміну в часі температури в чотирьох точках поверхні заготовки. Для даного режиму спікання зі схемою III на рис. 10 і 11 наведено розподіл температури в робочій комірці установки і в заготовці в процесі ВШСТ. Як видно на рис. 4 і 10, з плином часу зони максимальної температури в робочій комірці зміщуються до зовнішньої бічної поверхні заготовки. Порівняння картин поля на рис. 4 і 10 показує, що в схемі III теплоізоляційний диск із ZrO_2 суттєво стримує відтік тепла від заготовки в бік пуансона. При використанні схеми I розподіл температури в заготовці є неоднорідним в усіх напрямках. При використанні схеми III температурне поле в заготовці стає на заключній стадії процесу спікання однорідним в радіальному напрямі (майже горизонтальні ізотерми на рис. 11, з) до завершення витримки: градієнт температури в заготовці має лише осьовий напрям. Ймовірно, що картина розподілу температури в заготовці залежить від співвідношення теплофізичних властивостей матеріалу заготовки і матеріалів елементів комірки, які контактують із заготовкою.

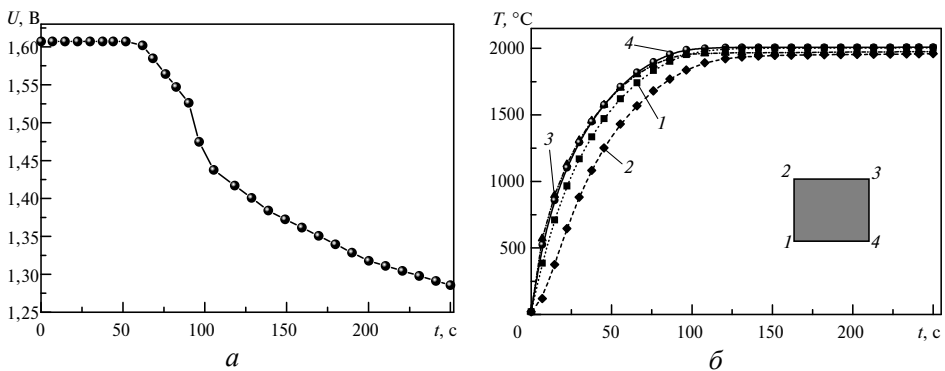


Рис. 7. Зміна напруги електричного поля (а) в процесі спікання і температура (б) в точках 1, 2, 3 і 4 заготовки при використанні схеми III (див. рис. 1, в): товщина стінки графітової прес-форми $\Delta r = 0,015$ м, висота ZrO_2 -диску $h_d = 0,008$ м.

Відомо [34, 35], що є пропорційна залежність між розміром зерна структури матеріалу спечених порошкових керамічних виробів і щільністю, між щільністю і температурою на завершальній стадії спікання. Тому шляхом вибору конструкції робочої комірки технологічної установки можна створювати певну градієнтну структуру матеріалу спеченого зразка і, зокрема, використовувати схему III для створення градієнтної структури в спеченому виробі.

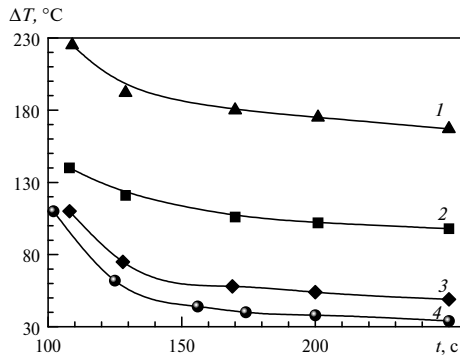


Рис. 8. Зміна в часі перепаду температури ΔT в заготовці при використанні схеми III (з ZrO_2 -диском, див. рис. 1, в) при різних товщині стінки графітової прес-форми: $\Delta r = 0,005$ (1), 0,010 (2), 0,015 (3) м, висота диску $h_d = 0,008$ м; $\Delta r = 0,015$ (4) м, $h_d = 0,012$ м.

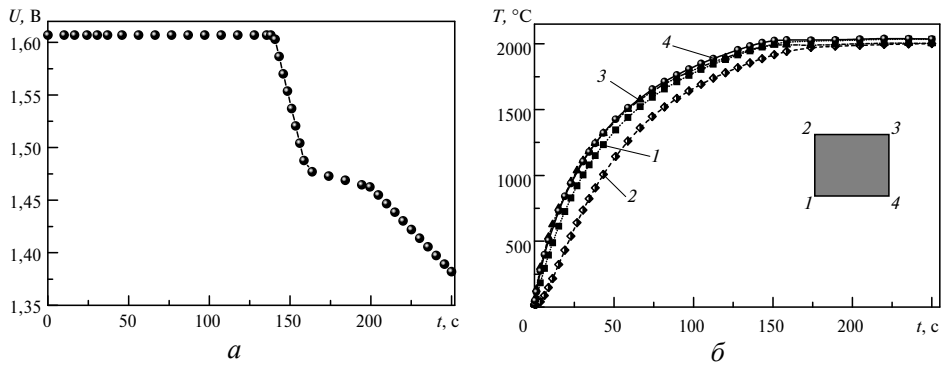


Рис. 9. Зміна напруги електричного поля (а) в процесі спікання і температура (б) в точках 1, 2, 3 і 4 заготовки при використанні схеми III (з ZrO_2 -диском, див. рис. 1, в): товщина стінки графітової прес-форми $\Delta r = 0,015$ м, висота диску $h_d = 0,012$ м.

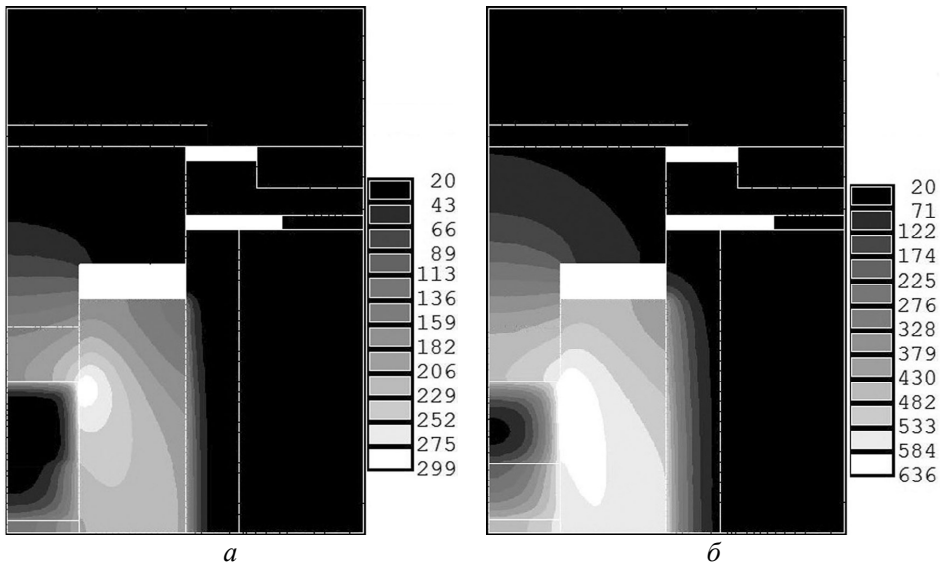


Рис. 10. Розрахований розподіл температури T , $^{\circ}C$, в технологічній установці зі схемою III в різні моменти спікання: 2 (а), 51 (б), 100 (в), 250 (г) с.

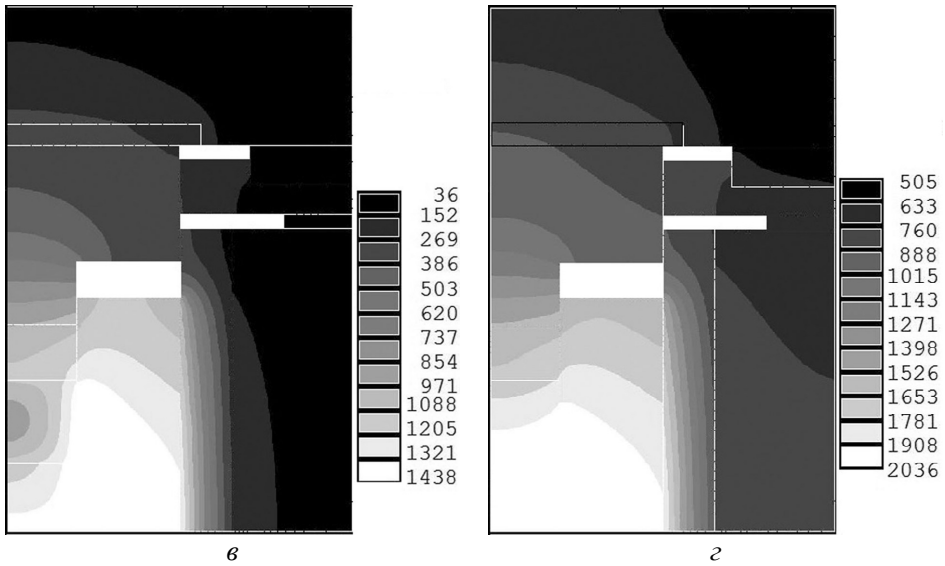


Рис. 10. (Продовження).

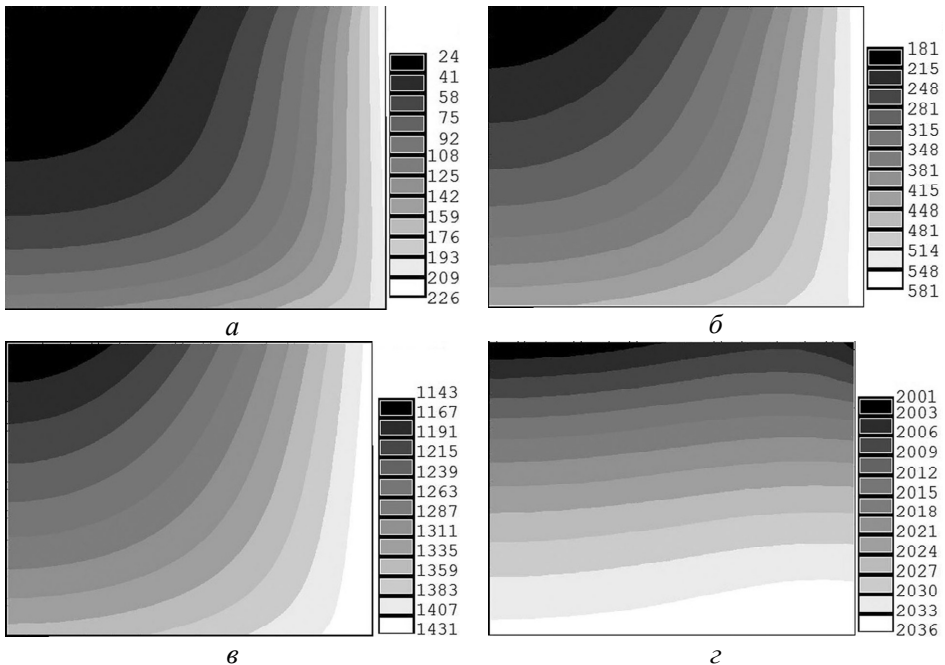


Рис. 11. Розрахований розподіл температури T , °C, в заготовці в установці зі схемою III в різні моменти спікання: 2 (а), 51 (б), 100 (в), 250 (г) с.

Схему III робочої комірки технологічної установки було використано при ВСПТ брикетів на основі карбіду бору B_4C . В дослідженнях використовували порошок карбіду бору виробництва ПАТ “Запорізький абразивний комбінат”, Україна, з середньою зернистістю 3,15 мкм, хімічний склад якого наведено в табл. 2, а загальний вигляд у вихідному стані наведено на рис. 12.

Попередньо спресовані при кімнатній температурі два брикети з порошкової суміші на основі B_4C одночасно спікали в технологічній установці під тиском 185 МПа. Вимірювали густину спечених зразків (методом гідростатичного зважування), зернистість і твердість. Рентгеноструктурний аналіз фазо-

вого складу спечених зразків проводили в навчально-науковому центрі рентгеноструктурного аналізу “RIGAKU” Національного технічного університету України “Київський політехнічний інститут” на універсальному рентгенівському дифрактометрі Ultima IV RIGAKU і рентгенівському дифрактометрі ДРОН–4.13001. Дослідження структури матеріалу спеченого зразка і вимірювання твердості проводили у площині осьового перетину зразка. Твердість визначали методом індентування з використанням алмазної піраміди Кнупа при навантаженні на індентор 9,8 Н. Густина дослідних зразків знаходилась в межах 2,43–2,46 г/см³. Завдяки швидкоплинності процесу ВШСТ зернистість матеріалу в результаті спікання зростає незначно порівняно з методами традиційного гарячого пресування, її середнє значення становило 3,67 мкм. На рис. 13 зображено фрагмент мікроструктури спеченого зразка, а на рис. 14 наведено результати вимірювання мікротвердості в площині осьового перетину спеченого зразка. На рис. 13 видно, що матеріал спеченого зразка має рівномірно розподілену мікроструктуру. На рис. 14 чорними кружечками позначено точки площини, в яких вимірювали мікротвердість. Звідси видно, що різниця між максимальним і мінімальним значеннями мікротвердості знаходиться в межах 5 % від її середнього значення, що свідчить про практично рівномірний розподіл мікротвердості в об’ємі спеченого зразка. Таким чином, наведені дані розподілу мікротвердості підтверджують доцільність використання схеми III робочої комірки технологічної установки для забезпечення невеликого перепаду температури в об’ємі зразка на стадії витримки в процесі ВШСТ і отримання рівномірного розподілу мікротвердості та інших фізико-механічних властивостей в спеченому зразку.

Таблиця 2. Хімічний склад порошку карбіду бору зернистості F1200

Зернистість	Марка	Склад, % (за масою)						
		B ₄ C	B	C	B ₂ O ₃	Si	Fe	N
		не менше			не більше			
F 1200	2В	80,0	65,0	18,0	1,0	3,0	0.60	1,0

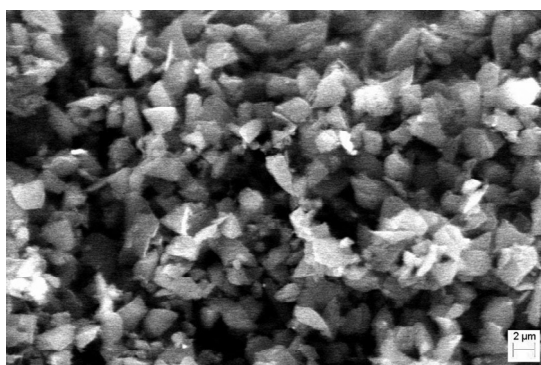


Рис. 12. Загальний вигляд порошку карбіду бору B₄C у вихідному стані.

ВИСНОВКИ

Комп’ютерне моделювання температурного поля в робочій комірці технологічної установки ВШСТ порошкових заготовок із карбіду бору з врахуванням залежності теплофізичних властивостей матеріалу заготовки від пористості та температури дало можливість за результатами комп’ютерних експериментів виявити вплив наявності та розмірів елементів комірки на перепад

температури в заготовці в процесі спікання. Встановлено, що на перепад температури в заготовці суттєво впливає товщина стінки графітової прес-форми і висота теплоізоляційного диску на шляху відтоку тепла від заготовки.

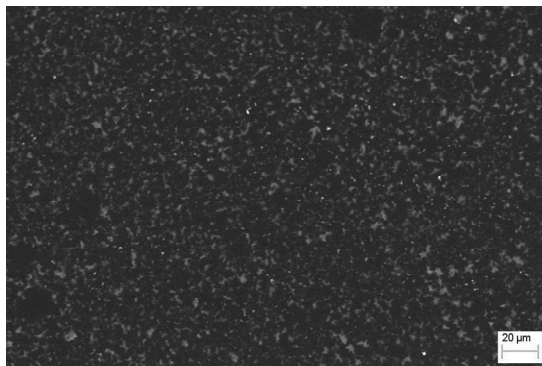


Рис. 13. Мікроструктура матеріалу спеченого зразка з B_4C (домішки заліза від 3 до 8 %).

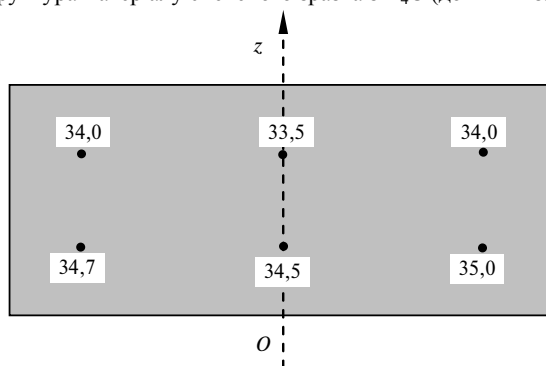


Рис. 14. Розподіл мікротвердості, ГПа, в площині осевого перетину спеченого зразка з B_4C діаметром 20 мм і висотою 10 мм.

На основі результатів чисельних експериментів показано, що шляхом вибору схеми робочої комірки технологічної установки та відповідного режиму нагрівання можна на стадії витримки процесу ВШСТ одержати в заготовці практично однорідне температурне поле, що є важливою умовою досягнення однорідності фізико-механічних властивостей в спеченому виробі.

Запропонована схема робочої комірки установки ВШСТ і відповідний режим нагрівання забезпечує однорідність фізико-механічних властивостей в об'ємі спеченого виробу і дає змогу отримати практично однорідний розподіл мікротвердості матеріалу спеченого виробу.

ФІНАНСУВАННЯ

Робота виконана в рамках науково-дослідницької теми III-6-16 (0972) “Розробка процесів електроспікання керамічних матеріалів на основі неелектропровідних тугоплавких сполук” Інституту надтвердих матеріалів ім. В. М. Бакуля НАН України; Державний реєстраційний номер роботи 0115U006576, за постановою Бюро відділення фізико-технічних проблем матеріалознавства НАН України від 06.10.2015, протокол № 15.

Методом конечных элементов проведено компьютерное моделирование температурного поля в рабочей ячейке технологической установки высокоскоростного спекания под давлением порошковых заготовок из карбида бора. Учитывается зависимость теплофизических свойств порошковой заготовки от пористости и температуры. С целью минимизации перепада температуры в порошковой заготовке выполнено компь-

ютерное исследование влияния схемы ячейки на перепад температуры в заготовке. По результатам компьютерных экспериментов выбрано схему рабочей ячейки установки высокоскоростного спекания под давлением и соответствующие режимы нагрева, при которых в течение 80–150 с достигается температура спекания заготовки 2000 °С, а перепад температуры в заготовке на стадии выдержки в течение 100–150 с находится в пределах 50–30 град. По результатам лабораторных экспериментов установлено, что использование выбранной схемы рабочей ячейки технологической установки позволяет получить практически однородное распределение микротвердости материала испеченного изделия.

Ключевые слова: компьютерное моделирование, высокоскоростное спекание под давлением, карбид бора, минимизация перепада температуры, однородное распределение микротвердости.

Using finite elements method the computer simulation of the temperature field in the working cell of the technological unit during High Speed Sintering under Pressure of boron carbide powdered billets was done. The dependence of the thermophysical properties of the powder blend on porosity and temperature is taken into account. In order to minimize the temperature drop in the powder billet volume, a computer studies of the effect of the scheme of the working cell and the heating regime on the temperature drop in the billet was performed. As a result of the computer experiments, the scheme of the working cell and the corresponding heating regime were selected, for which during 80–100 s the temperature in the powder billet is reached 2000 °C, and the temperature drop in the billet is within 50–30 degrees during dwell time 150 s. According to the results of laboratory experiments, it has been established that the use of the chosen cell scheme enables to obtain a practically homogeneous distribution of microhardness of the sintered product.

Keywords: computer simulation, high-speed sintering under pressure, boron carbide, minimization of temperature drop, uniform distribution of microhardness.

1. Кислый П.С., Кузенкова М.А., Боднарчук Н.И., Грабчук Б.Л. Карбид бора. Киев: Наук. думка, 1988. 216 с.
2. Остапенко И.Т., Слезов В.В., Тарасов Р.В., Карцев Н.Ф., Подтыкан В.П. Уплотнение порошка карбида бора при горячем прессовании. *Порошк. металлургия*. 1979. № 5. С. 38–43.
3. Yue X.Y., Zhao S.M., Lü P., Chang Q., Ru H. Q. Synthesis and properties of hot pressed B₄C-TiB₂ ceramic composite. *Mater. Sci. Eng. A*. 2010. Vol. 527. P. 7215–7219.
4. Huang S.G., Vanmessel K., Van der Biest O. In situ synthesis and densification of submicrometer-grained B₄C/TiB₂ Composites by pulsed electric current sintering. *J. Eur. Ceram. Soc.* 2011. Vol. 31. P. 637–644.
5. Dudina D.V., Hulbert D.M., Jiang D., Unuvar C., Cytron S.J., Mukherjee A.K. In situ boron carbide–titanium diboride composites prepared by mechanical milling and subsequent Spark Plasma Sintering. *J. Mater. Sci.* 2008. Vol. 43. P. 3569–3576.
6. Sairam K., Sonber J.K., Murthy T.S.R.Ch., Paul B., Nachiket K., Jothilakshmi N., Bedse R. D., Kain V. Processing and properties of boron carbide with hafnium diboride addition. *Ceramics-Silikáty*. 2016. Vol. 60, no. 4. P. 330–337.
7. Майстренко А. Л., Дутка В. А., Переяслов В. П., Иванов С. А. Математичне моделювання теплового стану елементів технологічного вузла в процесі швидкісного електроспінання алмазовмісних композиційних матеріалів. *Сверхтв. материалы*. 1999. № 4. С. 26–35.
8. Майстренко А.Л., Иванов С.А., Переяслов В.П., Волошин М.Н. Интенсивное электроспекание алмазосодержащих композиционных материалов. *Сверхтв. материалы*. 2000. № 5. С. 39–45.
9. Wang X., Fang Z., Sohn H.Y. Nanocrystalline cemented tungsten carbide sintered by an ultra-high-pressure rapid hot consolidation process. *Int. Conf. on Powder Metallurgy & Particulate Mater. Engquist*. Denver, US, 2007. P. 8–10.
10. Lahiri D., Singh V., Rodrigues G.R., Costa T. M. H., Gallas M. R., Bakshi S. R., Seal S., Agarwal A. Ultrahigh-pressure consolidation and deformation of tantalum carbide at ambient and high temperatures. *Acta Materialia*. 2013. Vol. 61. P. 4001–4009.
11. Моргунова Н.Н., Клыпин Б.А., Бояршинов В.А., Тараканов Л.А., Манегин Ю.В. Сплавы молибдена. Москва: Металлургия. 1975. 392 с.
12. Справочник по цветным металлам. <https://libmetal.ru/wo/mo.htm>

13. Тепло- и массообмен. Теплотехнический эксперимент: Справ. / под общ. ред. В. А. Григорьева, В. И. Зорина. Москва: Энергоиздат, 1982. 510 с.
14. Дутка В. А. Комп'ютерне моделювання температурного поля в процесі спікання карбідних композитів при використанні індукційного та променевого нагрівання. *Сверхтв. материалы*. 2013. № 1. С. 40–55.
15. Zavaliangos A., Zhang J., Krammer M., Groza J. Temperature evolution during field activated sintering. *Mat. Sci. Eng. A*. 2004. Vol. 379. P. 218–228.
16. Wei X., Giuntini D., Maximenko A.L. Electric contact resistance in spark plasma sintering tooling setup. *J. Am. Ceram. Soc.* 2015. P. 1–35.
17. Rothe S., Kalabukhov S., Frage N., Hartmann S. Field assisted sintering technology. Part I: Experiments, constitutive modeling and parameter identification. *ГАММ-Митт*. 2016. Vol. 39, no. 2. P. 114–148.
18. Ковальченко М.С., Ткаченко Ю.В., Очкас Л.Ф., Юрченко Д. З., Винокуров В. Б. Кинетика уплотнения карбида бора при горячем прессовании. *Порошк. металлургия*. 1987. № 11. С. 18–21.
19. Thevenot F. A review on boron carbide. *Key Eng. Mater.* 1991. Vol. 56–57. P. 59–88.
20. Kuzenkova M.A., Kislyi P.S., Grabchuk B.L., Bodnaruk N.I. The structure and properties of sintered boron carbide. *J. Less-Common Metals*. 1979. Vol. 61. P. 217–223.
21. Химушин Ф. Ф. Жаропрочные стали и сплавы. Москва: Металлургия, 1969. 752 с.
22. Wood C., Emin D., Gray P.E., Thermal conductivity behaviour of boron carbides. *Phys. Rev. B*. 1985. Vol. 31, iss. 10. P. 6811–6814.
23. Самсонов Г.В., Виницкий И.М. Тугоплавкие соединения: Справ. М.: Металлургия, 1976. 560 с.
24. Свойства, получение и применение тугоплавких соединений: Справочное издание / под ред. Т.Я. Косолаповой. Москва: Металлургия, 1986. 928 с.
25. Liu J., Zeng F., Zou Z., Li Y., Gu Y., Zhang F., Liang T. Continuum modeling of B₄C densification during Spark Plasma Sintering. *J. Mater. Res.* 2017. P. 1–9.
26. Zhang J. Numerical simulation of transient thermoelectric phenomena in field activated sintering. Philadelphia: Drexel University, 2004. 154 p.
27. Гурвич Л.В., Вейц И.В., Медведев В.А., Хачкурузов Г.А., Юнгман В.С., Бергман Г.А., Байбуз В.Ф., Иориш В.С. Термодинамические свойства индивидуальных веществ. Справ. издание: в 4 т. Т. 3. Кн. 2. Москва: Наука, 1981. 400 с.
28. Thevenot F. A review on boron carbide. *Key Engineering Materials*. 1991. Vol. 56–57. P. 59–88.
29. Nishi Y., Arita Y., Matsui T., Nagasaki T. Isotope effects on thermal conductivity of boron carbide. *J. Nuclear Sci. Technol.* 2002. Vol. 39, no. 4. P. 391–394.
30. Gunjishima i., Akashi T., Goto T. Characterization of directionally solidified B₄C–TiB₂ composites prepared by a floating zone method. *Materials Transactions*. 2002. Vol. 43, no. 4. P. 712–720.
31. Nilsson O., Sandberg O., Bäckström G. Thermal conductivity of B₂O₃ glass under pressure. *Int. J. Thermophysics*. 1985. Vol. 6, no. 3. P. 267–273.
32. Самсонов Г.В., Борисова А.Л., Жидкова Т.Г., Знатокова Т.Н., Калошина Ю.П., Киселева А. Ф., Кислый П.С., Ковальченко М.С., Косолапова Т.Я., Малахов В.Я., Панасюк А.Д., Славута В.И., Ткаченко Н.И. Физико-химические свойства окислов: Справ. / под ред. Г.В. Самсонова. Москва: Металлургия, 1978. 472 с.
33. Metcalfe A.G., Elsner N.B., Allen D.T., Wuchina E., Opeka M., Opila E. Oxidation of hafnium diboride. In book: High temperature corrosion and materials chemistry. *Proc. of the Per Kofstad Memorial Symposium* / eds. M. McNallan, E. Opila, T. Maruyama, T. Narita. 2000. Vol. 99–38. P. 489–501.
34. Bordia R.K., Kang S.-J.L., Olevsky E. Current understanding and future research directions at the onset of the next century of sintering science and technology. *J. Am. Ceram. Soc.* 2017. Vol. 100. P. 2314–2352.
35. Milsom B. The effect of CNTs on the sintering behaviour and properties of structural ceramic composites. Doct. Dissertation. Queen Mary, University of London, 2013. 146 p.

Надійшла до редакції 14.09.18

Після доопрацювання 15.03.19

Прийнята до опублікування 15.03.19