

УДК 669

**ПРЯМОЕ НАБЛЮДЕНИЕ ПРОЦЕССОВ НА КОНТАКТАХ ЧАСТИЦ
ПРИ ЭЛЕКТРОИМПУЛЬСНОЙ КОНСОЛИДАЦИИ ПОРОШКА ТИТАНА****А. С. Рогачев*, С. Г. Вадченко, В. А. Кудряшов, А. С. Щукин,
член-корреспондент РАН М. И. Алымов**

Поступило 03.07.2019 г.

Данные прямой высокоскоростной микровидеосъемки доказывают существование сильно перегретых зон на контактах порошковых частиц при прохождении импульсов электрического тока продолжительностью около 1 мс. Величина перегрева может превышать 1600 градусов и приводить к формированию шеек жидкофазного спекания, размеры которых хорошо коррелируют с размерами перегретых зон. Микронеоднородности температурного поля при электроимпульсном нагреве порошковой среды позволяют понять необычно высокие скорости консолидации порошковых материалов, наблюдаемые при электроискровом плазменном спекании.

Ключевые слова: электроискровое плазменное спекание, экспериментальное моделирование, титан, высокоскоростная видеосъемка.

DOI: <https://doi.org/10.31857/S0869-56524885504-507>

Методы консолидации порошковых материалов с использованием электрического тока и электромагнитного поля находят всё более широкое применение в науке, новых технологиях и в промышленности [1]. Наиболее распространено электроискровое плазменное спекание (ЭПС, spark plasma sintering, SPS), быстро развивается импульсное спекание (flash sintering). Особенность этих методов состоит в прямом пропускании коротких импульсов электрического тока через порошковый образец в отличие от традиционного спекания и горячего прессования, когда ток проходит через пресс-форму или внешние нагреватели. В настоящее время достоверно установлено, что ЭПС позволяет сократить время консолидации материала и снизить температуру процесса, что имеет важное значение для получения нанокристаллических материалов. Природа этого эффекта пока недостаточно изучена и активно дискутируется. Предполагается, что прохождение импульсного тока через порошковый образец приводит к возникновению искровых разрядов и плазмы в области контактов порошковых частиц (отсюда и название метода). Однако попытки прямого наблюдения и регистрации светового излучения от электрических микрозарядов дали отрицательный результат, что привело к утверждениям об отсутствии плазмы при ЭПС [2, 3]. Вторым фактором, который может ускорить процесс консолидации электропроводных материалов, считается неравномерный Джо-

улев нагрев порошковой среды электрическим током [4]. Так как электрическое сопротивление контакта между частицами выше, чем сопротивление самой частицы (вследствие малого сечения контакта и примесей на поверхности частиц), в области контакта может локально выделяться большая мощность, температура в этой области будет превышать среднюю температуру образца, и процесс спекания ускорится. Моделирование, выполненное в рамках предположения о том, что контакты шарообразных частиц TiAl имеют сечение 0,0036 от максимального сечения шара, показало, что при плотности тока 50 000 А/см² локальный перегрев не превышает одного градуса Цельсия [5]. Отсутствие перегрева было подтверждено металлографическим исследованием частиц после спекания. Повышенное сопротивление контактов может быть связано с наличием оксидных плёнок на поверхности металлических частиц. Исследования искрового плазменного спекания металлических порошков (Fe, Ni, и Cu) показали, что электросопротивление контактов уменьшается при нагреве, а при температуре, равной 0,3 от температуры плавления металла, происходит диэлектрический пробой оксидных слоёв, после чего сопротивление остаётся примерно постоянным [4]. Исследования зависимости электропроводности порошковых образцов от их микроструктуры показали, что реальная контактная площадка имеет сложную структуру, состоящую из газового или вакуумного зазора шириной около 80 нм и точечных контактов твёрдой фазы, что приводит к высокому электросопротивлению контактов [6, 7]. Фактором, ускоряющим процесс спекания, может быть также ускорение диффузионного массопереноса под действием элект-

Институт структурной макрокинетики и проблем материаловедения им. А.Г. Мерджанова Российской Академии наук, Черноголовка Московской обл.

*E-mail: rogachev@ism.ac.ru

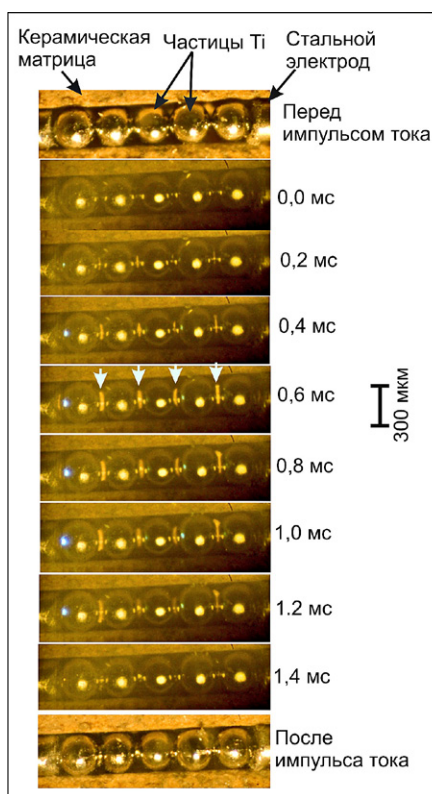


Рис. 1. Высокоскоростная видеорегистрация модельного эксперимента. Скорость видеосъёмки 5000 кадров в 1 секунду. Продолжительность электрического импульса 1,0 мс, сила тока 50 А.

рического поля и электрического тока [8, 9]. Модельные эксперименты по припеканию медных шариков диаметром 3 мм к медной подложке выявили влияние импульсного электрического тока на формирование шейки между частицей и подложкой вследствие электромиграции атомов [10]. Таким образом, современные данные о механизмах влияния электрических импульсов на процессы спекания неполны и довольно противоречивы. Для понимания этих механизмов требуются новые экспериментальные данные.

В настоящей работе проведено экспериментальное моделирование прохождения электрического импульса через порошковую среду с целью прямого наблюдения и регистрации происходящих процессов. Сферические частицы титана диаметром 250–300 мкм помещались в открытый канал диаметром 300 мкм в диэлектрической матрице, специально изготовленной из терракотовой керамики (рис. 1). Канал закрывался кварцевым стеклом, и с двух сторон в него вставлялись электроды из закалённой стали, которые служили также мини-пуансонами для сжатия цепочки частиц. Канал располагался вертикально, на верхний пуансон помещался груз 140 г, что соответствует среднему давлению сжатия

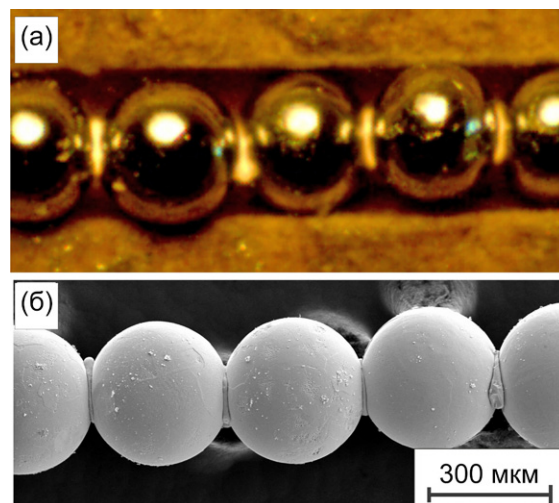


Рис. 2. Модельная цепочка порошковых частиц: при прохождении электрического импульса, видеокادر (а); после остывания, сканирующая электронная микроскопия (б).

около 20 МПа. На электроды подавался электрический импульс продолжительностью 0,5–5,0 мс от конденсатора ёмкостью 10 мФ, заряженного до разности потенциалов 25 В. Сила тока в импульсе составляла 50 А, т.е. плотность тока в максимальном сечении частиц достигала $70\,000\text{ А/см}^2$. Процесс фиксировался на высокоскоростную видеокамеру MIRO-310 с микроскопической оптикой с частотой 2000–10 000 кадров в секунду. Микроструктура образцов изучалась с помощью сканирующего электронного микроскопа Zeiss Ultra Plus.

Сразу же после подачи электрического импульса (0,2 мс) на контактах между частицами появляется жёлто-оранжевое свечение, свидетельствующее о сильном локальном разогреве (рис. 1). Интенсивность свечения возрастает, достигая максимума через 0,6 мс (показано белыми стрелками на рисунке), и затем сохраняется постоянной вплоть до окончания электрического импульса (1,0 мс). Остывание, т.е. полное погасание свечения, происходит за время менее 0,2 мс. После остывания в местах контактов частиц видны образовавшиеся шейки спекания.

Размеры светящихся областей (рис. 2а) хорошо коррелируют с размерами образующихся шеек (рис. 2б), форма образовавшихся перешейков (рис. 2б, 3) ясно указывает на плавление материала в этой области. Температура плавления титана 1911 К, следовательно, локальный разогрев в области контакта превысил эту температуру и во время прохождения электрического импульса началось жидкофазное спекание. Признаком начальной стадии спекания, который удаётся выявить путём измерения положения частиц на последовательности видеокад-

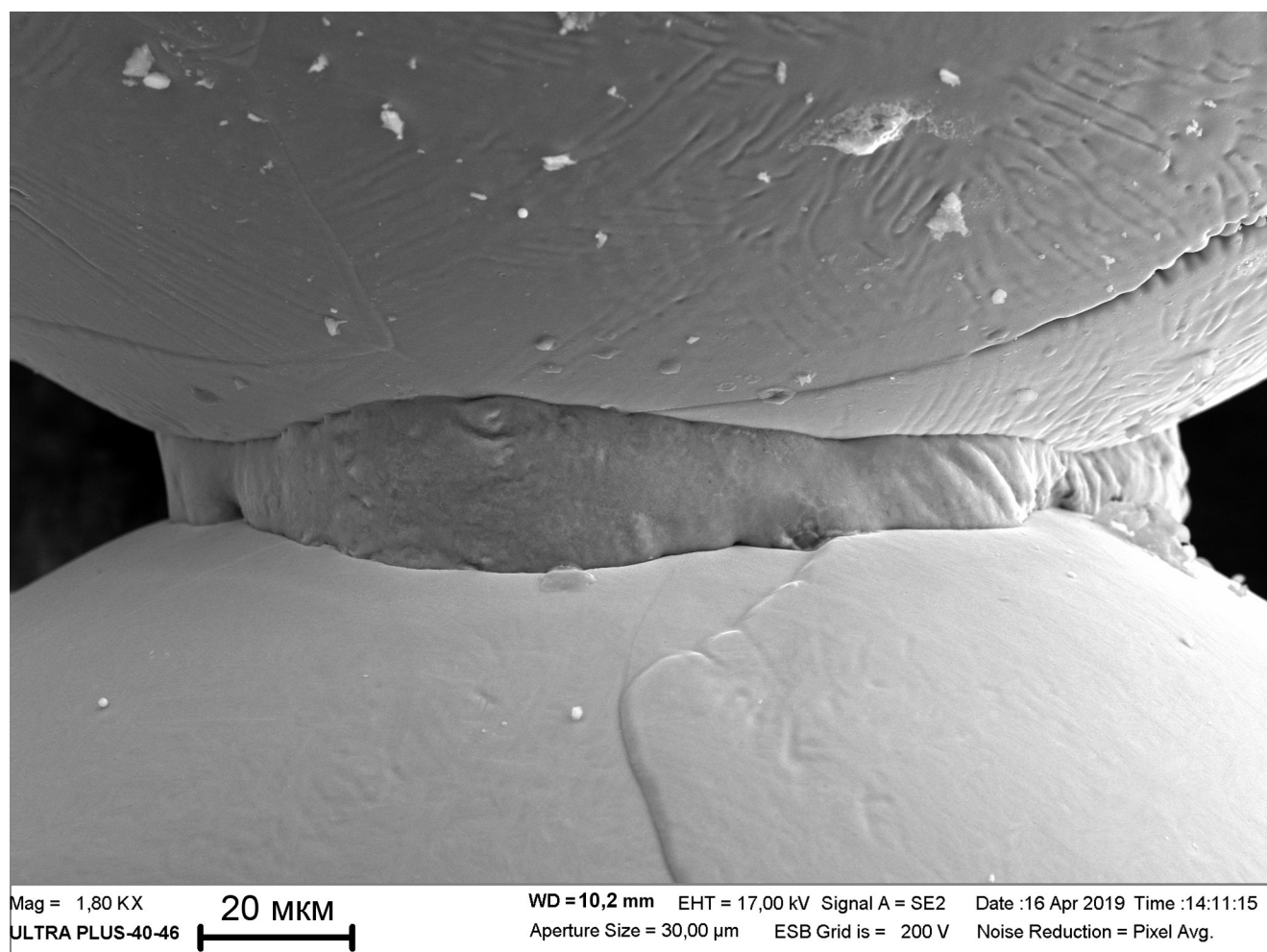


Рис. 3. Структура области контакта после прохождения одного электрического импульса. Сканирующая электронная микроскопия, изображение во вторичных электронах.

дров, является также уменьшение расстояния между центрами частиц на 1–3% (соответственно сокращается и длина всей цепочки). Анализ микроструктуры области контакта (рис. 3) показывает, что поверхность частицы титана даже в непосредственной близости от расплавленной области остаётся неизменной, без следов плавления.

Характерное время выравнивания температуры внутри частицы титана (время тепловой релаксации) можно оценить по формуле

$$\tau \approx \frac{c\rho D^2}{4\lambda} \approx 2,4 \text{ мс,}$$

где c , ρ и λ – удельная теплоёмкость, плотность и теплопроводность титана соответственно, D – диаметр частицы. Если электрический импульс имеет продолжительность менее этого времени, в порошковой среде возникают существенные температурные микронеоднородности.

Таким образом, впервые получены данные прямой высокоскоростной микровидеосъёмки, доказывающие существование сильно перегретых зон на контактах порошковых частиц при прохождении импульсов электрического тока, параметры которых соответствуют условиям ЭПС. Величина перегрева может превышать 1600 градусов и приводить к формированию шеек жидкофазного спекания, размеры которых хорошо коррелируют с размерами перегретых зон. Данные микронеоднородности температурного поля помогают понять необычно высокие скорости консолидации порошковых материалов, наблюдаемые при электроискровом плазменном спекании.

Благодарности. Авторы выражают благодарность С.М. Годину за разработку и изготовление электронной схемы управления электрическим разрядом.

Источник финансирования. Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 19–03–00293).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Bordia R.K., Kang S.-J.L., Olevsky E.A. // *J. Am. Ceram. Soc.* 2017. V. 100. P. 2314–2352.
2. Hulbert D.M., Anders A., Dudina D.V., Andersson J., Jiang D., Unuvar C., Anselmi-Tamburini U., Lavernia E.J., Mukherjee A.K. // *J. Appl. Phys.* 2008. V. 104. 033305 (1–7).
3. Hulbert D.M., Anders A., Andersson J., Lavernia E.J., Mukherjee A.K. // *Scripta Materialia*. 2009. V. 60. P. 835–838.
4. Chawake N., Pinto L.D., Srivastav A.K., Akkiraju K., Murty B.S., Kottada R.S. // *Scripta Materialia*. 2014. V. 93. P. 52–55.
5. Trzaska Z., Collard C., Durand L., Couret A., Chaix J.-M., Fantozzi G., Monchoux J.-P. // *J. Am. Ceram. Soc.* 2019. V. 102. P. 654–661.
6. Емельянов А.Н., Шкиро В.М., Рогачев А.С., Рубцов В.И. // *Известия ВУЗов. Цветная металлургия*. 2002. № 2. С. 67–70.
7. Кочетов Н.А., Рогачев А.С., Емельянов А.Н., Илларионова Е.В., Шкиро В.М. // *Физика горения и взрыва*. 2004. V. 40. С. 74–80.
8. Yang C., Zhu M.D., Luo X., Liu L.H., Zhang W.W., Long Y., Xiao Z.Y., Fua Z.Q., Zhang L.C., Lavernia E.J. // *Scripta Materialia*. 2017. V. 139. P. 96–99.
9. Aman Y., Garnier V., Djurado E. // *J. Mater. Sci.* 2012. V. 47. P. 5766–5773.
10. Frei J.M., Anselmi-Tamburini U., Munir Z.A. // *J. Appl. Phys.* 2007. V. 101. 114914 (1–8).

DIRECT OBSERVATION OF THE PROCESSES NEAR PARTICLE-TO-PARTICLE CONTACTS AT ELECTRIC PULSE CONSOLIDATION OF TITANIUM POWDER

A. S. Rogachev, S. G. Vadchenko, V. A. Kudryashov, A. S. Shchukin,

Corresponding Member of the RAS M. I. Alymov

*Merzhanov Institute of Structural Macrokinetics and Materials Science of the Russian Academy of Sciences,
Chernogolovka, Moscow region, Russian Federation*

Received July 3, 2019

Direct high-speed micro-video records prove the existence of highly overheated zones at the contacts of powder particles during short (~ 1 ms) electric current pulses. The value of overheating can exceed 1600 degrees and lead to the formation of liquid-phase sintering necks, the dimensions of which are well correlated with the size of the overheated zones. The micro-uniformity of the temperature field in the electric pulse heating allow understanding the unusually high consolidation rates of powder materials observed in spark plasma sintering.

Keywords: spark plasma sintering, experimental modeling, titanium, high-speed video recording.