

Особливості розмелу порошку електролітичної міді у млинах різного типу

А. О. Гончарук, О. В. Хоменко, Ю. І. Найда

Інститут проблем матеріалознавства ім. І. М. Францевича НАН України,
Київ, e-mail: homhelen@mail.ru

Проведено аналіз змін гранулометричного складу та форми частинок порошку міді в умовах розмелу у млинах з розмельними тілами (вібраційного, атриторного та планетарного типів) та у млині нового типу без розмельних тіл, розробленому в ІПМ НАН України. Запропоновано модель диспергування частинок порошку у млині нового типу в залежності від профілю абразивної поверхні на робочих елементах млина. За результатами модельних досліджень визначено оптимальні топологічні характеристики робочих поверхонь та удосконалено камеру помолу. Експериментальні дослідження залежності середнього розміру частинок від часу розмелу електролітичної міді у млині удосконаленого типу показали якісну відповідність модельним розрахункам.

Ключові слова: мідь, розмел порошоків, моделювання.

Порошкова мідь, як відомо, широко використовується у виробництві деталей електротехнічного призначення як самостійно, так і у складі композитних матеріалів [1]. Реалізація нових підходів інженерії порошкових композитів передбачає можливість прогнозування структури та властивостей на всіх етапах технологічної переробки матеріалу. Одержання ультрадисперсної структури та її збереження є однією з основних проблем виробництва таких матеріалів, у зв'язку з чим завдання регульованого розмелу порошоків має важливе науково-технічне значення. У промисловості найбільшого розвитку отримали методи розмелу міді у млинах з розмельними тілами. В Інституті проблем матеріалознавства НАН України розроблено млин нового типу, який забезпечує механічне подрібнення сипучих матеріалів з можливістю проходження робочого процесу в сухому середовищі нейтрального газу без використання розмельних тіл [2].

Метою роботи є аналіз змін форми та розміру частинок порошку електролітичної міді при розмелі у млинах з розмельними тілами, зокрема атриторного, планетарного, вібраційного типів, та моделювання умов її розмелу у млині нового типу, розробленого в ІПМ НАН України.

Розмел у атриторі вели зі швидкістю руху валу 1200 об/хв при співвідношенні порошку та куль 1 : 2 та 1 : 3 впродовж 15—30 хв. Розмел у вібромлині здійснювали при використанні сталевих куль діаметрами 8—22 мм (кулі розмірами 18—22 мм склали до 25% (мас.)) при співвідношенні мас куль та шихти 10 : 1; загрузка млина шихтою сягала 30%, кулями — 40%; час розмелу становив від 15 хв до 6 год. Технічні характеристики вібраційного млина: об'єм робочої камери млина — 10 дм³; частота коливань — 3000 хв⁻¹; число обертів — 2900 хв⁻¹; електродвигун типу АО2-41-2 потужністю 5,5 кВт.

Морфологію порошків вивчали на растровому електронному мікроскопі Superprob-733, гранулометричний склад — на фотоседиментаційній установці SK Laser Micron Sizer, де в якості диспергуючого середовища використовували суміш дистильованої води та поверхнево-активної речовини у пропорції 10 : 1, та мікроскопічним методом (ГОСТ 23402-78) при аналізі дисперсії частинок, орієнтованих площиною найбільшої сталості паралельно площині стеження, за допомогою програми пакету автоматичної обробки зображень АМИС [3]. Основним розрахунковим параметром лінійного розміру частинок при використанні мікроскопічного методу був середній діаметр Фере D_f , що дорівнює усередненій величині довжин проєкцій частинки у різних напрямках з кутом повороту від 0 до 360 град з шагом 3 град. Для визначення фактора форми частинок було вибрано фактор K_f , що розраховується за методом Салтикова [4] по формулі $K_f = 4,51\sqrt{\bar{P}/\bar{N}}$, де \bar{P} і \bar{N} — периметр та площа частинки відповідно.

Частинки порошку міді мають типову для електролітичного порошку дендритну форму (рис. 1, *a*) та середній розмір 29—37 мкм (межі розбіжності седиментаційного та мікроскопічного аналізів).

Розмел міді в атриторі та млинах планетарного та вібраційного типів супроводжується деформацією частинок та формуванням чисельних конгломератів (рис. 1, *б—г*). Гальмування процесу диспергування порошків у млинах з розмельними тілами є типовим явищем для пластичних металів, до яких відноситься мідь, і пояснюється утворенням агломератів із уламків частинок [5, 6]. Гістограма розподілу частинок міді у вихідному стані апроксимується нормальною функцією з лівобічною асиметричністю та розмитим піком (рис. 2, *a*), що кількісно характеризується від'ємними

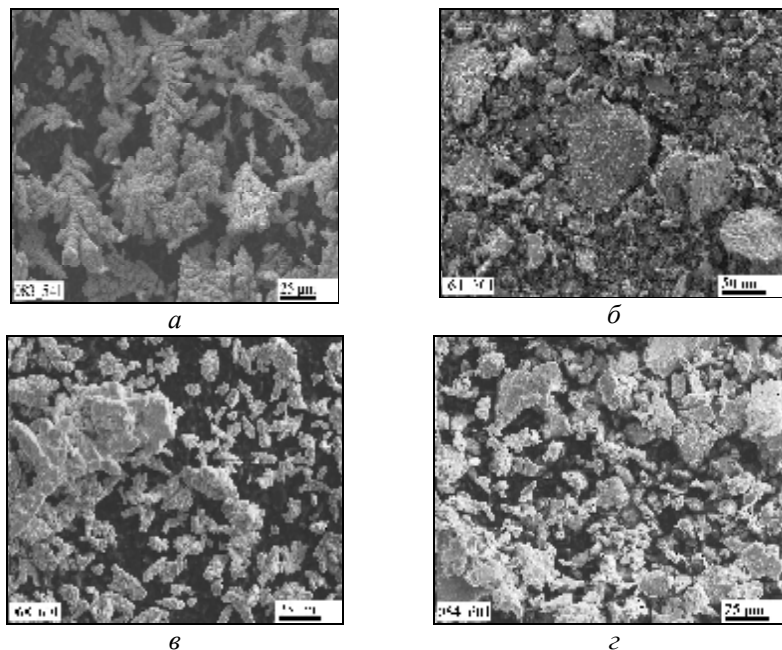


Рис. 1. Форма частинок міді до (*a*) та після розмелу в атриторі впродовж 30 хв (*б*) та в вібромлині впродовж 30 (*в*) та 90 хв (*г*).

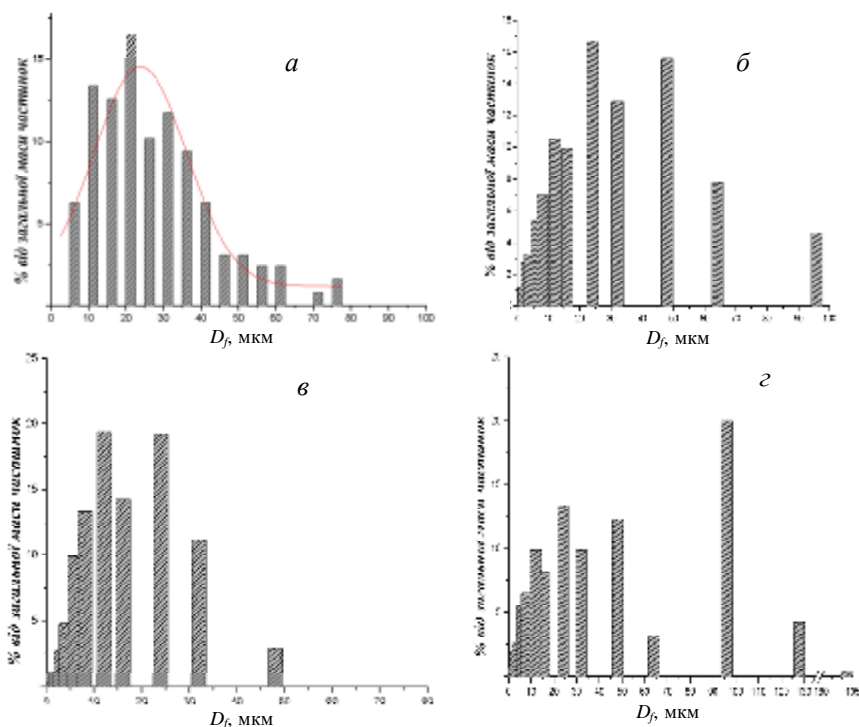


Рис. 2. Гранулометричний склад порошку електролітичної міді до (а) та після розмелу у вібромліні впродовж 15 (б), 30 (в) та 90 хв (з).

значеннями коефіцієнтів асиметрії та ексцесу, а також значним коефіцієнтом варіації (таблиця).

Після розмелу міді суттєво зменшується середній розмір частинок, головним чином, через руйнування дендритів абочної будови по гілках другого та інших порядків та деформується їх центральна частина. Це призводить до змінення форми частинок, що відображається на збільшенні коефіцієнта форми. У роботі [4] приведено наступні значення K_f для ряду плоских фігур: правильний трикутник — 0,777, квадрат — 0,886, правильний шестикутник — 0,953, круг — 1. На відміну від частинок вихідного порошку, які характеризуються малими значеннями коефіцієнта форми (55% від загальної кількості частинок мають $K_f \leq 0,7$), після розмелу, зокрема у вібромліні впродовж 30 хв, близько 80% частинок мають $K_f \geq 0,7$, а середнє значення K_f наближається до 0,9, що, по класифікації Салтикова, є ознакою наближення до округлої форми.

Але водночас с цим процес розмелу супроводжується формуванням агломератів частинок і згодом ці новостворені конгломерати деформуються як суцільне тіло (рис. 1, в, з). Так, зокрема, при розмелі у вібромліні середній та максимальний розміри частинок спочатку зменшуються, але згодом середній розмір збільшується майже у 2 рази, а максимальний — майже у 3 у порівнянні з початковими значеннями цих параметрів (таблиця).

Ці процеси відображаються на формі гістограми розподілу частинок, спостерігається її зсув в область більших розмірів (рис. 2, б—з), а також

Статистичні характеристики гістограми розподілу частинок міді за розмірами в вихідному стані та після розмелу у вібромлині (за результатами седиментаційного аналізу)

Час розмелу, хв	Розмір, мкм			Стандартне відхилення, мкм	Коефіцієнт асиметрії	Ексцес	Коефіцієнт варіації, %
	мін.	макс.	середній				
0	1	86	35,1	31	-1,028	-1,854	88
15	<1	32	13,3	11,4	-0,934	-1,721	86
30	<1	48	11,5	9,77	-0,968	-1,547	84
90	<1	192	24,1	19,8	-1	-1,94	90
180	<1	192	43,1	22	—	—	51
270	<1	200	82	39	—	—	47

зростання значень стандартного відхилення, коефіцієнтів асиметрії, ексцесу та варіації, що вказує на збільшення неоднорідності частинок за формою (таблиця).

Формування агломератів пояснюється наступною схемою. При обробці порошоків у млині з розмельними тілами паралельно проходять процеси руйнування частинок та новоутворення їх із уламків шляхом зварювання [5, 6]. Автори показали, що при ударній дії розмельних тіл на частинки міді в місцях контакту має місце зварювання, яке супроводжується дифузійними процесами і утворенням міцних агломератів, і що ця агломерація частинок має етапний характер. Тобто на початку обробки превалює процес руйнування, а потім — середній розмір частинок починає безперервно збільшуватися. Співвідношення між швидкостями диспергування та конгломерації залежить від ряду взаємопов'язаних факторів, кількісний внесок кожного з них оцінити наразі практично неможливо. Основними факторами, що мають вплив на процес, є природа матеріалу, що обробляється, та енергонапруга режиму обробки. Вони обумовлюють характер і розвиток диспергування металів. В свою чергу, здатність до пластичної деформації є однією з основних властивостей, які визначають інтенсивність утворення конгломератів і, відповідно, кінетику змін їх розмірів. Встановлено, що із активно досліджуваних систем, основою котрих є мідь, алюміній, нікель, залізо, при використанні в якості розмельних тіл із сталі ШХ-15 найбільшу схильність до зварювання мають мідні композиції. Виходячи з наведеного, можна зробити висновок, що для більш тонкого диспергування порошку міді необхідно уникнути або уповільнити процес агломерації частинок. Це проблематично зробити у млинах з розмельними тілами і тому потребують досліджень умови розмелу в млинах інших конструкцій.

Механізм помолу у млині нового типу, який запропоновано в ІПМ НАН України [2], подібний до механізму, що реалізується у вихрових або струменевих млинах. Але вища ефективність пристрою забезпечується за рахунок диспергування за механізмом взаємодії частинок з поверхнями робочої камери, які мають абразивне покриття. Розроблений пристрій містить вентилятор та турбіну у робочій камері розмелу, яка розташована у горизонтальній площині.

Для підвищення ефективності диспергування порошоків у млині в роботі розглянуто модель взаємодії частинок з поверхнею робочих органів млина та проведено оціночні розрахунки ймовірності контакту частинок з абразивними включеннями в залежності від кутів атаки та визначення ступеню подрібнення частинок порошку після багаторазової взаємодії з абразивною поверхнею. В рамках моделі приймали, що всі частинки порошку рухаються у одному потоці, тобто в одному напрямку за прямолінійними траєкторіями, який співпадає з кутом атаки до поверхні робочих органів млина. Потік частинок розглядали як плоский фронт рівномірно розподілених точок — центрів частинок, що взаємодіє з абразивною поверхнею під різними кутами атаки α . Припускали, що частинки у потоці розподілені рівномірно. Це цілком правомірне, бо будь-яке розміщення частинок в умовах турбулентності реального процесу є рівноймовірним. Розглядали 2 випадки: коли на робочих поверхнях млина є покриття, що складається з абразивних ізольованих включень, з різальними крайками, які розташовані по всій висоті виступу їх над поверхнею (рис. 3, а), та коли робочі поверхні мають ребристий профіль з ріжучою крайкою на вершинах ребер вздовж всієї її довжини (рис. 3, б). Вважали, що ріжучі крайки абразивних включень мають нульову товщину. Приймали, що розрізання частинки відбувається тільки при її повному контакті з крайкою, тобто коли довжина ріжучої крайки буде не меншою за діаметр перерізу частинки у площині різання, оскільки при неповному контакті задача суттєво ускладнюється. Геометрично ця умова виконується, якщо траєкторія руху центру частинки перетинає зону контакту біля крайки. У першому випадку ця зона має форму циліндра з радіусом, що дорівнює радіусу частинки R (рис. 3, а), а в другому — усіченого циліндра з радіусом основи R та висотою, яка співпадає з довжиною ребра (рис. 3, б). В рамках моделі оцінювали вплив топологічних параметрів поверхні, а саме щільності розміщення різальних крайок K та висоти її виступу над поверхнею H , на ймовірність перетину частинками зон

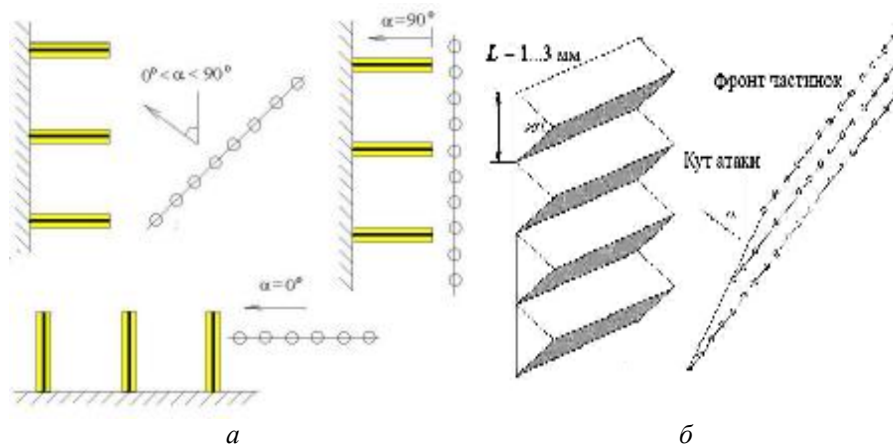


Рис. 3. Схеми взаємодії плоского фронту частинок з абразивною поверхнею різного профілю на робочих елементах млина в залежності від кута атаки: а — різальні крайки, розташовані на боковій поверхні відокремлених включень, що виступають за рівень поверхні; б — різальні крайки, розташовані на вершинах ребер, що виступають над поверхнею вздовж всієї її довжини.

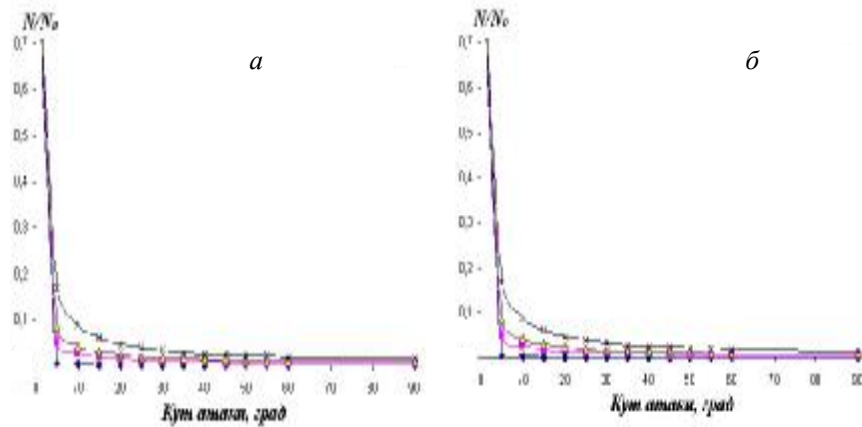


Рис. 4. Залежності ймовірності перерізу різальними крайками частинок радіусом $R = 1$ (♦), 10 (■), 25 (Δ) и 50 мкм (х) від кута атаки до поверхні ребристого профілю з висотою ребер $H = 0,3$ см (а) та частинок радіусом 50 мкм — до поверхні з висотою виступів $H = 0,1$ (◇), $0,2$ (■), $0,3$ (Δ) та $0,5$ см (х) (б).

контакту P ($P = N/N_0$, де N та N_0 — кількість частинок, що контактують з крайками, та загальна кількість частинок у потоці). В першому наближенні для встановлення можливості розрізання частинки при контакті з різальною крайкою складали баланс енергій, який враховував витрачання кінетичної енергії частинки на роботу різання без витрат на теплове розсіювання та утворення нових поверхонь (по розрахункам, на утворення нової поверхні при розрізанні навпіл частинки радіусом $R = 1\text{--}100$ мкм затрачується не більше 1% від загальної кінетичної енергії).

Розрахунки показали, що у випадку ребристої поверхні зростання кута атаки та зменшення розмірів частинок знижують ймовірність їх розрізання (рис. 4, а). Аналогічна тенденція спостерігається при збільшенні висоти ребер над поверхнею в інтервалі $10^{-3}\text{--}10^{-1}$ см (рис. 4, б), що зумовлено оберненою залежністю висоти ребер та щільності їх розташування на поверхні лопаток (згідно з прийнятою геометрією профілю поверхні, рис. 3, а).

При взаємодії частинок з абразивними включеннями існує діапазон найбільш сприятливих кутів атаки α_{opt} , за яких ймовірність перетину частинками зон контакту є максимальною (рис. 5). Для потоку частинок радіусом $R = 1\text{--}100$ мкм (типичним діапазоном розмірів для порошку міді) збільшення параметра H призводить до зсуву α_{opt} в зону малих кутів; при цьому ймовірність диспергування зростає для частинок всього діапазону розмірів. В той же час збільшення параметра K приводить до зростання ймовірності контакту, так що вже при $K = 10^5 \text{ см}^2$ має місце взаємне перекривання проєкцій зон контакту на фронт частинок з $R \geq 10$ мкм (при малих кутах атаки) і це означає, що всі ці частинки будуть контактувати з включеннями. Але і в цьому випадку ймовірність розрізання частинок мікронних і субмікронних розмірів менше одиниці.

Порівняння двох розглянутих типів поверхні показало, що значно більша ймовірність контактування частинок з абразивом та їх диспергування мають місце при нанесенні покриття на робочі елементи млина з

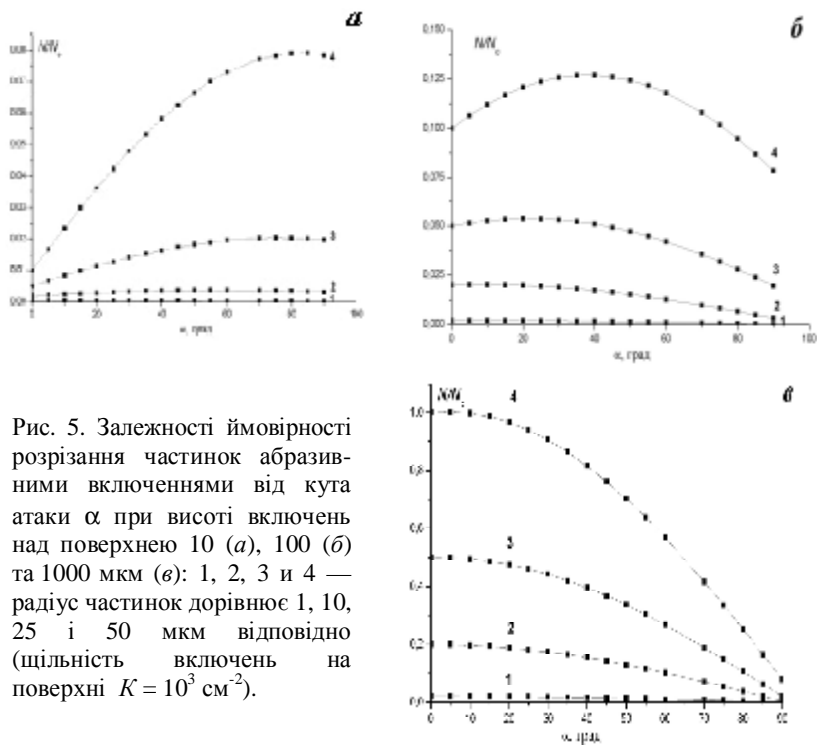


Рис. 5. Залежності ймовірності розрізання частинок абразивними включеннями від кута атаки α при висоті включень над поверхнею 10 (а), 100 (б) та 1000 мкм (в): 1, 2, 3 і 4 — радіус частинок дорівнює 1, 10, 25 і 50 мкм відповідно (щільність включень на поверхні $K = 10^3 \text{ см}^{-2}$).

ізолюваними абразивними включеннями при щільності їх розміщення $K \geq 10^4 \text{ см}^{-2}$ та висоті включень над поверхнею $H \geq 100\text{—}1000 \text{ мкм}$. Тому у подальшому моделювали процес диспергування порошку електролітичної міді з абразивним покриттям, що складається з ізолюваних включень, з наведеними топологічними характеристиками. У розрахунках порошок міді імітували системою полідисперсних сферичних частинок, що об'єднані за розмірами в k -фракції. В середині кожної фракції частинки приймали монодисперсними з радіусами, що дорівнюють середньому по фракції $\bar{R}_i = (R_i^{\text{max}} + R_i^{\text{min}}) / 2$.

Вважали, що ті частинки, енергії яких достатньо для їх руйнування при контакті з включенням, розрізаються навпіл після кожної взаємодії потоку з абразивною поверхнею. Розрахунки дозволили встановити зміни розподілу частинок за розмірами в залежності від кількості взаємодій з абразивом γ і визначити, що залежність середнього розміру частинок від цього параметра апроксимується функцією виду $D_f^{\text{розр}} = (2872 \pm 0,022)e^{-(0,51 \pm 0,0007)\gamma}$ з вірогідністю $r^2 = 1$ і коефіцієнтом Пірсона $\chi^2 = 0,00055$ (рис. 6, а).

За результатами моделювання проведено удосконалення робочої камери млина та досліджено ефективність розмелу порошку електролітичної міді в атмосфері аргону в залежності від кутової швидкості турбіни, яку змінювали в інтервалі 1200—4500 об/хв. Для вивчення морфологічних змін частинок порошку на першому етапі розмелу в першій серії експериментів порошок розмелювали 33—270 с при швидкостях руху турбіни 1200 та 1500 об/хв. В другій серії експериментів час розмелу доводили до 45 хв при швидкостях обертання турбіни 2200 та 3000 об/хв. З метою упередження перегріву робочої камери турбіну вимикали кожні 5—7 хв.

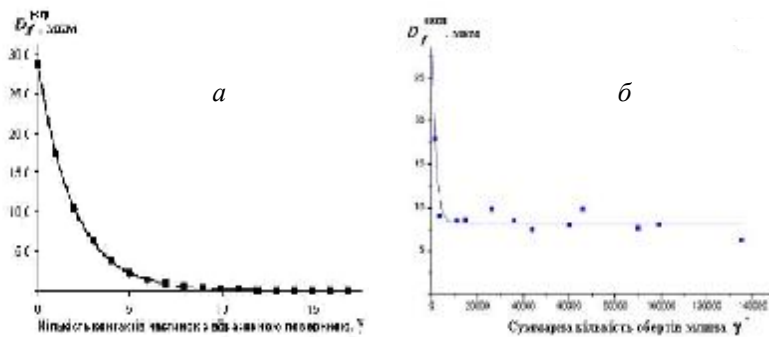


Рис. 6. Зміни середнього розміру частинок в залежності від кількості взаємодій γ потоку з поверхнею з абразивними включеннями, розраховані в рамках моделі (а) та за результатами експериментів розмелу у млині нового типу в залежності від кількості обертів млина γ' (б).

Вимірювання розмірів частинок та оцінки їх форми проводили за допомогою комп'ютерної програми аналізу зображень мікроструктур АМИС [3]. Лінійні розміри проєкцій всіх частинок в полі зору (в режимі на просвіт у світловому мікроскопі) заміряли в одному напрямку, який потім змінювали з шагом повороту 3 град в інтервалі кутів 0—360 град. Розраховували еквівалентний діаметр Фере D_f частинок як середнє значення довжин хорд по всім напрямкам. Для оцінки морфологічних змін частинок вибрано фактор K_f , який розраховується за методом Салтикова [4] по формулі $K_f = 4,51\sqrt{\bar{P}/\bar{N}}$ (\bar{P} і \bar{N} — периметр та площа частинки відповідно). Для ряду плоских фігур у роботі [4] наведено наступні значення параметра K_f : правильний трикутник — 0,777, квадрат — 0,886, правильний шестикутник — 0,953, круг — 1.

Середній розмір частинок вихідного порошку міді, встановлений за даними мікроскопічного аналізу після нормування на масові частки у наближенні, що усі частинки сферичні, становить 29 мкм. Це узгоджується з регламентованим розмірним інтервалом цієї характеристики 30—35 мкм порошку міді згідно з ГОСТ 4960-75 (виробництво ОАО "Урал-електромедь", РФ). Несиметрична форма частинок міді у вихідному стані кількісно характеризується близьким до нормального розподілом частинок за фактором форми із середнім значенням $K_f = 0,75$.

В процесі розмелу середнє значення параметра K_f зростає до 0,84—0,90, при цьому його модальне значення наближається до 1. Подібні зміни форми частинок вказують на поступове наближення частинок до компактних геометричних форм [4]. Проведено порівняння залежностей середнього розміру частинок від кількості зіткнень з абразивною поверхнею в рамках моделі (рис. 6, а) та результатів експериментальних досліджень розмелу порошку міді у млині нового типу (рис. 6, б). Встановлено однотипність функцій, апроксимуючих ці залежності ($D_f^{\text{розн}}$ і $D_f^{\text{експ}}$ відповідно), з наявністю етапу різких змін та асимптотичної стадії.

Більш інтенсивне зменшення середнього розміру частинок на першому етапі розмелу у порівнянні з розрахунком ймовірно викликано тим, що в

процесі розмелу у млині диспергування частинок відбувається не тільки за механізмом різання, а також за рахунок руйнівних ударів о робочі поверхні. Одночасно в процесі розмелу спостерігається тенденція до укрупнення середнього розміру частинок, що може пояснюватися розвитком агломерації частинок при розмелі міді у млинах з розмельними тілами після більш тривалого часу процесу. Розрахунки, проведені в роботі [7], показали що на початковій стадії розмелу, коли інтенсивність процесу найбільша, формування агломератів у млині нового типу не набуває ще такого інтенсивного розвитку, як при розмелах у млині планетарного типу та вібротлині.

Висновки

Аналіз змін гранулометричного складу та форми частинок порошку міді в умовах розмелу у млинах з розмельними тілами (вібраційного, атриторного та планетарного типів) показав немонотонну залежність розмірів частинок від тривалості процесу, що вказує на активний розвиток процесу агломерації частинок.

Запропоновано модель взаємодії частинок порошку у млині нового типу з турбіною, який розроблено в ІПМ НАН України, в залежності від типу абразивного покриття на робочих елементах млина. За результатами модельних досліджень удосконалено конструкцію камери та визначено оптимальні топологічні характеристики робочих поверхонь камери помолу. Експериментальні дослідження залежності середнього розміру частинок від часу розмелу електролітичної міді у млині удосконаленого типу показали якісну відповідність модельним розрахункам.

1. *Гнесин Г. Г.* Спеченные материалы для электротехники и электроники: (Справ.) / Г. Г. Гнесин, В. А. Дубок, Г. Н. Братерская. — М. : Металлургия, 1981. — 344 с.
2. *Пат. 94659 України.* Пристрій для механічного подрібнення порошкових матеріалів / [Ю. І. Найда, А. В. Рагуля, І. В. Уварова, А. Ю. Найда]. — Опубл. 25.05.2011. Бюл. № 10.
3. *Баглюк Г. А.* Апаратно-програмний комплекс для дослідження структурних змін деформованого матеріалу / Г. А. Баглюк, О. І. Хоменко, А. А. Гончарук // Наукові нотатки: Міжвуз. зб. (за напрямом "Інженерна механіка"). — 2009. — Вип. 25, ч. II. — С. 9—11.
4. *Салтыков С. А.* Стереометрическая металлография. — М. : Металлургия, 1970. — 371 с.
5. *Ловшенко Г. Ф.* Наноструктурные механически легированные материалы на основе металлов / Г. Ф. Ловшенко, Ф. Г. Ловшенко, Б. Б. Хина. — Могилев, 2004. — 676 с.
6. *Овчинников П. Ф.* Виброреология. — К. : Наук. думка, 1983. — 270 с.

Особенности размолла порошка электролитической меди в мельницах разных типов

А. А. Гончарук, Е. В. Хоменко, Ю. И. Найда

Изучены изменения размеров и формы частиц порошка меди при размолле в мельницах с размольными телами (вибрационного, атриторного и планетарного типов) и без них в мельнице нового типа, разработанной в ИПМ НАН Украины. Предложена модель диспергирования частиц в мельнице нового типа в

зависимости от профиля поверхности рабочих элементов камеры помола. По результатам моделирования определены оптимальные характеристики абразивной поверхности на рабочих элементах мельницы. Экспериментальные исследования размол электролитической меди в мельнице усовершенствованного типа согласуются с результатами моделирования.

Ключевые слова: медь, размол порошков, моделирование.

Features of electrolytic copper powder milling in different type mills

A. O. Goncharyuk, O. V. Khomenko, Y. I. Nayda

The size and shape of copper powder particles changes after milling in mills with grinding bodies (vibratory, planetary and attritor types) and without grinding bodies (new type mill, developed in IPMS NASU) are studied. Dispergation particle model in a new type mill with different abrasive profile on working surfaces in grinding chamber is proposed. Simulation results determined the optimum characteristics of abrasive surface are presented. Experimental studies of electrolytic copper milling in advanced type mill are consistent with the simulation results.

Keywords: copper, powder milling, simulation.