

**В. А. Дутка** (м. Київ)  
vadutka@yandex.ru

### **Чисельне моделювання просочування рідкої фази в процесі спікання керамічних композитів**

*Представлено чисельну модель просочування пористих зразків із керамічних матеріалів у процесі спікання. Математична модель процесу просочування базується на рівнянні Річардса і співвідношеннях Ван Генучтена, які описують властивості проникності пористої структури і рідини, яка просочується. Для дискретизації рівняння Річардса застосовано метод скінченних елементів і стійку неявну різницеву схему по часу. За результатами розв'язання тестових задач, порівняння отриманих чисельних результатів із результатами інших авторів та з результатами експерименту встановлено адекватність чисельної моделі. Наведено результати комп'ютерного моделювання просочування рідким кремнієм пористих зразків із карбіду кремнію різної геометричної форми та різних розмірів.*

**Ключові слова:** чисельне моделювання, просочування, спікання, керамічні композити.

#### **ВСТУП**

Одним зі способів виробництва композитних матеріалів різного функціонального призначення є просочування рідкої та/або газоподібної фази в пористі заготовки. Цей спосіб набуває в даний час дедалі ширшого застосування [1–3]. Можна виокремити чотири великих класи композитів, при виготовленні яких використовується процес просочування. Полімерні композити виготовляють шляхом просочення полімерами пористих заготовок (наприклад, просочення гумою пористих систем [3, 4]); металеві композити отримують в результаті просочення рідкими металами пористих металевих систем [1–7], зокрема, в результаті просочення рідким магнієм пористої  $MgB_2$ -зготовки отримують матеріали з надпровідними властивостями [7]; керамічні композити виробляють шляхом просоченням в пористу керамічну структуру рідкого компонента [8–11] (наприклад, в результаті просочення рідкого кремнію в пористу заготовку із SiC-каркасом отримують високоміцні вироби в умовах їх термомеханічного навантаження, котрі мають також високу абразивну стійкість в агресивних середовищах); алмазовмісні композитні та надтверді матеріали отримують в результаті просочення рідким інгредієнтом алмазовмісних порошкових композицій та металево-керамічних сумішей в умовах високих тисків і температур [12–16]. Отримання в описаних технологічних процесах якісних виробів залежить від того, в якій мірі відбулося заповнення пористого об'єму заготовки в результаті просочення. Тому для управління процесом просочування, вибору його оптимальних параметрів та економії матеріалів та енергоресурсів при виробництві композитних матеріалів є важливим моделювання процесу про-

сочування. Чисельне моделювання такого процесу є важливим особливо для випадків просочування заготовок складної геометричної форми, в яких воно відбувається не в одному напрямі, а в різних. В цих випадках використання спрощених одновимірних моделей дає значну похибку. Крім того, як зазначено в [17], моделювання процесу просочування є важливим для вивчення закономірностей капілярного транспорту при розробці різних пористих систем, в яких в робочому стані відбуваються процеси переносу рідкого робочого тіла.

Моделюванню процесу просочування рідких та газоподібних субстратів при виробництві композитних матеріалів присвячено багато робіт [3, 9, 18–28], в яких використано як аналітичні, так і чисельні моделі. У [18] представлено елементарну модель “щільно упакованих однакових сфер”, яка за результатами порівняння з експериментальними даними дає не гіршу точність, ніж відома модель Кармана при прогнозуванні глибини інфільтрації. В [9, 19] для моделювання процесу інфільтрації використано звичайне диференціальне нелінійне рівняння другого порядку відносно глибини просочення, яке отримано на базі закону балансу механічної енергії з використанням співвідношень Лапласа, Уошборна та Пуазейля. В [19] використано решітчастку модель пористої структури, а в [9] виконано моделювання руху фронту просочення пористої структури із синусоїдальними профілями капілярних каналів. В [20] виконано 1D-моделювання процесу інфільтрації рідкої фази (металу) в пористу заготовку з урахуванням процесу затвердіння інфільтрата. Для моделювання температурного поля в процесі інфільтрації з урахуванням руху фронту фазового переходу рідкий інфільтрат–тверде тіло використано метод ентальпії. В [21] представлено комп’ютерну модель просочування гумою волокнистого композиту. Для описання течії просочувача використано рівняння неперервності течії і закон Дарсі, для моделювання проникності пористої структури композиту – рівняння Кармана-Козені та емпіричну модель Гільгама. Чисельну реалізацію моделі виконано для одновимірного випадку з використанням методу скінченних елементів та простої неявної схеми дискретизації по часу.

В [22–24] розглянуто моделювання процесу інфільтрації газової фази в пористі композитні структури. В [22] виконано моделювання мікрохвильового нагрівання пористої карбідокремнієвої заготовки та процесу інфільтрації в неї газових компонентів. Математична модель складається з рівнянь Максвелла, теплопровідності та масопереносу з урахуванням хімічних реакцій між інфільтратами та пористою заготовкою. Для комп’ютерної реалізації моделі використано метод колокації у поєднанні з методом скінченних елементів. В [23] проведено моделювання процесів осадження та інфільтрації газових складових при виготовленні армованих вуглецевих композитів. Для моделювання температурного поля, газофазних реакцій в процесі осадження та інфільтрації застосовано пакети програм DETCHEM, HOMREA та COMSOL, де використано метод скінченних елементів. В [24] виконано моделювання еволюції мікроструктури в процесі хімічно-газової інфільтрації пористих зразків із SiC. В моделі враховано взаємовплив хімічних процесів, осадження, дифузії та течії рідкої фази. Чисельну реалізацію моделі виконано також методом скінченних елементів.

В [25–28] розглянуто моделювання просочування розплавленої рідкої фази у пористі заготовки з урахуванням явищ, що активують та супроводжують процес просочування – нагрівання та хімічні реакції. В [25] для описання просочування рідкого кремнію в пористий зразок із карбіду кремнію викори-

стано рівняння, отримане на основі рівняння течії рідини та закону Дарсі з урахуванням варіації діаметра капілярних каналів (від мінімального до максимального) та хімічної взаємодії між рідкою фазою і матеріалом стінок капілярів. При визначенні коефіцієнта проникності враховано утворення закритих пор при формуванні твердого шару із SiC на стінках капілярів. Для чисельної реалізації моделі використано метод скінченних елементів із застосуванням методу Гальоркіна. Проведено порівняння чисельних результатів із результатами лабораторних досліджень глибини просочення і тривалості процесу. При моделюванні процесу просочування рідким кремнієм пористої SiC-заготовки в [26] використано рівняння течії та рівняння Пуассона відносно тиску в області, просоченій рідкою фазою; враховано хімічну взаємодію між рідким кремнієм та вільним вуглецем і матеріалом пористого каркасу. Для чисельного розв'язання рівнянь використано метод скінченних об'ємів. Чисельно досліджено вплив різних факторів (початкової пористості, величини коефіцієнтів реакцій) на процес просочування. В [27] при моделюванні просочення рідким кремнієм пористих SiC-зразків враховано хімічну взаємодію між рідким кремнієм і вільним вуглецем в порах та матеріалом SiC-каркасу; також побудовано модель процесу затвердіння рідкої фази. Для описання течії рідкої фази в пористій структурі використано рівняння Річардса. Чисельну реалізацію моделі виконано за допомогою пакету COMSOL. Наведено порівняння з результатами експерименту по просочуванню пористих зразків різними рідкими фазами. В [28] із використанням методу скінченних елементів виконано моделювання процесу просочування рідкої металевої фази в пористий зразок. Для моделювання руху фронту рідкої фази використано метод рівня, для моделювання температурного поля з урахуванням течії та затвердіння – метод ентальпії. Адекватність чисельної моделі встановлено за результатами порівняння чисельних результатів із даними експерименту.

Слід зазначити, що серед доступних літературних джерел порівняно невелика їх частина стосується моделювання процесу просочування в тілах складної форми.

В даній роботі представлено математичну модель процесу просочування рідкої фази в пористе середовище та виконано чисельне дослідження процесу просочення рідкого кремнію в пористі карбідокремнієві заготовки в процесі спікання. Дослідження виконано для різних конфігурацій пористих зразків та їх комбінацій, а також для різних розмірів зони введення рідини, що просочується.

### МАТЕМАТИЧНА МОДЕЛЬ ПРОЦЕСУ ПРОСОЧУВАННЯ

Розглянуто процес просочування рідкого кремнію в пористі SiC-зразки в процесі їх спікання при температурі 2000–2200 °С без прикладання зовнішнього тиску. Просочування рідини в пористу структуру відбувається під дією капілярних сил та сили гравітації. Розглянуто випадок, коли між рідким кремнієм та стінками капілярів зразка немає хімічної взаємодії. Вважали, що дія сил гравітації направлена вздовж осі Oz. В цьому випадку розподіл тиску в капілярах, заповнених просочувачем (рідиною, яка просочується), та рух фронту просочування описується рівнянням Річардса [9, 25, 29]

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

де  $p = p(\mathbf{r}, t)$  – тиск;  $S$  – загальна стисливість середовища, яка залежить від пористості і стисливості рідини, що просочується, та від стисливості матеріалу каркасу;  $S_e$  – ефективна насиченість пористого матеріалу;  $C$  – капілярна вологоємність;  $k_s$  – коефіцієнт проникності пористого середовища при насиченні;  $k_r$  – відносна проникність пористого середовища;  $\mu$  і  $\rho$  – динамічна в'язкість і густина рідини, яка просочується;  $g$  – прискорення земного тяжіння;  $\mathbf{r}$  – радіус-вектор досліджуваної точки простору;  $t$  – час. Для обчислення  $S$  використовують лінійний відносно вологості  $\theta$  (відносного вмісту просочувача) вираз

$$S = \theta \chi_f + (1 - \theta) \chi_p, \quad (2)$$

де  $\chi_f$  і  $\chi_p$  – коефіцієнти стисливості рідини і матеріалу каркасу пористої структури відповідно. Значення та залежність від тиску відносної проникності  $k_r$ , ефективної насиченості  $S_e$  та капілярної вологоємності  $C$  визначають за результатами експерименту просочування рідиною пористого середовища. Для описання цих залежностей часто використовують відомі моделі – Ван Генучтена [30] та Брукса і Корі [31]. При використанні моделі Ван Генучтена вирази для  $k_r$ ,  $S_e$  і  $C$  мають вигляд

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

$$C = \begin{cases} \frac{\alpha m}{1 - m} (\theta_s - \theta_r) S_e^{\frac{1}{m}} \left(1 - S_e^{\frac{1}{m}}\right)^m, & p < 0; \\ 0, & p \geq 0; \end{cases} \quad (3)$$

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

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

де  $H = \frac{p}{\rho g}$  – гідравлічний потенціал;  $m = 1 - \frac{1}{n}$ ; коефіцієнти  $\alpha$  і  $n$  обчислюють за характерними точками та конфігурацією  $S$ -подібної кривої  $H = H(\theta)$ , яка апроксимує в площині  $H$ – $\theta$  експериментальні дані;  $\theta_r$  – залишкова пористість;  $\theta_s$  – загальна пористість заготовки.

Для розв'язання рівняння (1) задають такі початкові та граничні умови [25, 32]:

$$p(\mathbf{r}, 0) = -P_k, \quad \mathbf{r} \in V; \quad (4)$$

$$p(\mathbf{r}, t) = 0, \quad \mathbf{r} \in \Sigma_{\text{вх}}; \quad (5)$$

$$\mathbf{u} \cdot \mathbf{n} = 0, \mathbf{r} \in \Sigma \setminus \Sigma_{\text{вх}}, \quad (6)$$

де  $P_k$  – капілярний тиск;  $V$  – розрахункова область пористого середовища, яке просочується рідиною;  $\Sigma$  – зовнішня поверхня області  $V$ ;  $\Sigma_{\text{вх}}$  – та частина поверхні  $\Sigma$ , через яку просочувач потрапляє в область  $V$ .

### ЧИСЕЛЬНА МЕТОДИКА РОЗВ'ЯЗАННЯ ЗАДАЧІ ПРО ПРОСОЧУВАННЯ

Рівняння (1) із коефіцієнтами (3) є нелінійним рівнянням параболічного типу. Для чисельного розв'язання задачі (1)–(6) використано метод скінченних елементів у поєднанні з методом Бубнова-Гальоркіна. Для дискретизації по часу застосовано стійку неявну різницеву схему [33]. На кожному кроці по часі чисельний розв'язок отримано методом ітерацій. Умовою закінчення ітераційного процесу є виконання нерівності

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

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

Комп'ютерну реалізацію задачі просочування (1)–(6) виконано в середовищі Visual Fortran 6.5 для двохвимірних плоских та осесиметричних задач.

### РОЗВ'ЯЗАННЯ ТЕСТОВИХ ЗАДАЧ

Апробацію розробленого комп'ютерного забезпечення було виконано шляхом розв'язання ряду нелінійних тестових задач.

#### Поширення температурних хвиль

В [33] наведено аналітичний розв'язок такої одновимірної нестационарної нелінійної задачі теплопровідності: функція  $u(x, t)$  задовольняє рівняння

$$\frac{\partial u}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left( a u^b \frac{\partial u}{\partial x} \right), \quad (a > 0, b > 0) \text{ при } x > 0, \quad (7)$$

початкову

$$u(x, 0) = 0, \quad x > 0 \quad (8)$$

і граничну

$$u(0, t) = u_0 t^n, \quad t \geq 0 \quad (9)$$

умови. Розв'язок задачі (7)–(9) має вигляд

$$u(x, t) = \begin{cases} \frac{u_0}{D^{1/b}} (Dt - x)^{1/b}, & 0 \leq x \leq Dt, \\ 0, & x > Dt, \end{cases} \quad (10)$$

де  $n = \frac{1}{b}$ ,  $D = \sqrt{\frac{au_0^b}{b}}$ , і описує рухому теплову хвилю, фронт якої переміщу-

ється в додатному напрямі осі  $Ox$  зі швидкістю  $v = \frac{dx}{dt} = D$ . При тестуванні

розробленого комп'ютерного забезпечення вираз в дужках лівої частини рівняння (1) покладено рівним одиниці, в правій частині цього рівняння другий член не враховували, а  $k_s = 1$ ,  $\mu = 1$ ,  $k_r = au^b$ . На рис. 1 наведено порівняння чисельного та аналітичного (10) розв'язків при  $a = 0,5$ ,  $b = 2$ ,  $D = 5$ ,  $x \in [0; 2]$  і рівномірній дискретизації цього відрізка з кроком  $\Delta x = 0,02$ . Як видно на рис. 1, чисельний розв'язок добре узгоджується з аналітичним.

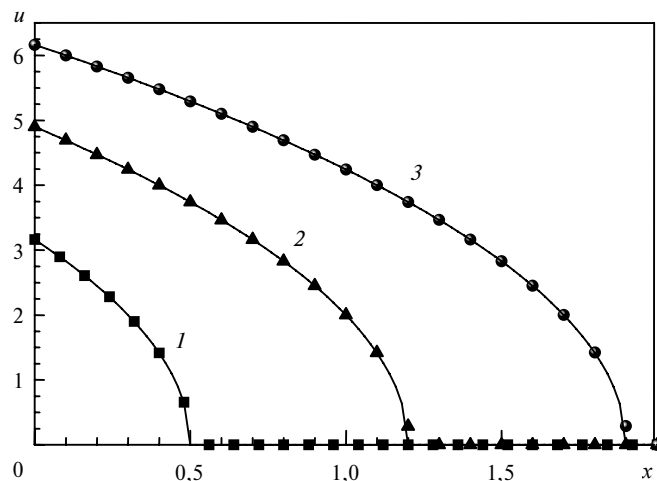


Рис. 1. Чисельний (■, ▲, ●) і аналітичний (—) розв'язок задачі про температурні хвилі в різні моменти часу:  $t = 0,10$  (1),  $0,24$  (2),  $0,38$  (3).

### Просочування води в ґрунт

Розглянуто задачу про просочування води в шар ґрунту [34] товщиною  $L = 40$  см. В початковий момент часу значення гідравлічного потенціалу  $H$  в шарі дорівнює  $-61,5$  см. На верхній ( $z = 0$ ) стороні шару значення потенціалу дорівнює  $-20,7$  см, на нижній ( $z = L$ ) становить  $61,5$  см. Процес просочування описується рівнянням Річардса:

$$C(H) \frac{\partial H}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left[ K(H) \left( \frac{\partial H}{\partial z} - 1 \right) \right], z \in [0; L], t > 0, \quad (11)$$

де питома вологоємність  $C(H)$  та гідропровідність  $K(H)$  описуються рівняннями

$$\theta(H) = \theta_r + \frac{\alpha(\theta_s - \theta_r)}{\alpha + |H|^\beta}, K(H) = k_s \frac{A}{A + |H|^\gamma}, C(H) = \frac{\partial \theta}{\partial H}, \quad (12)$$

де  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $A$  і  $\gamma$  – параметри, які визначаються за результатами лабораторного експерименту. Початкова та граничні умови мають вигляд

$$H(z, 0) = -61,5, H(0, t) = -20,7, H(L, t) = 61,5 \text{ см.} \quad (13)$$

В [34] наведено графічно чисельний розв'язок задачі (11)–(13), отриманий при таких параметрах:  $\theta_r = 0,075$ ,  $\theta_s = 0,287$ ,  $\alpha = 1,611 \cdot 10^6$ ,  $\beta = 3,96$ ,  $k_s = 0,00944$  см/с,  $A = 1,175 \cdot 10^6$ ,  $\gamma = 4,74$ ,  $L = 40$  см. На рис. 2 наведено криві чисельного розв'язку, отриманого в [34] з використанням розробленого комп'ютерного забезпечення. Відрізок  $[0; 40]$  зміни просторової координати  $z$  розбивали на 100 однакових елементів. На рис. 2 видно, що отриманий чисельний розв'язок добре узгоджується з розв'язком, наведеним в [34].

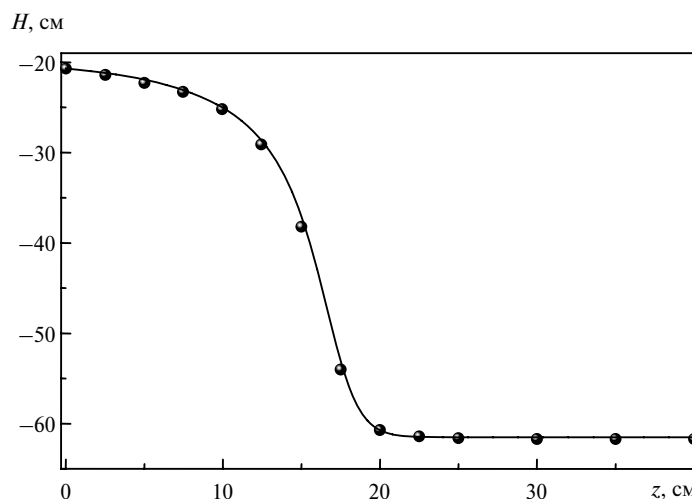


Рис. 2. Чисельний розв'язок автора (—) і [34] (•) в момент часу  $t = 360$  с.

### Просочування рідким кремнієм пористого SiC-брикета

В [25, 27] наведено результати лабораторних досліджень та чисельного моделювання просочування рідкого кремнію в пористі зразки з карбїду кремнію.

В даній роботі з метою тестування розробленого пакету програм виконано комп'ютерне моделювання процесу просочування рідкого кремнію в пористий SiC-зразок із використанням математичної моделі (1)–(6). Висота зразка – 60 мм, початкова пористість  $\theta_{\text{поч}} = 0,50$ , закрита пористість спеченого виробу  $\theta_{\text{закр}} = 0,05$ , середній діаметр зерна структури каркасу  $d_{\text{зер}} = 40$  мкм. Для визначення коефіцієнта проникності  $k_s$  використано формулу [35]

$$k_s = \frac{\theta_{\text{пр}} d_{\text{еф}}^2}{32},$$

де  $\theta_{\text{пр}} = \theta_{\text{заг}} - \theta_{\text{закр}}$ ;  $d_{\text{еф}}$  – ефективний діаметр пор, який обчислюють за формулою [1]

$$d_{\text{еф}} = d_{\text{зер}} \left( \sqrt{\frac{\pi}{2\sqrt{3}(1-\theta_{\text{пр}})}} - 1 \right),$$

де  $d_{\text{зер}}$  – діаметр зерна пористої заготовки. Для  $d_{\text{зер}} = 45$  мкм значення  $d_{\text{еф}}$  і  $k_s$  відповідно дорівнюють 12,8 мкм і  $0,23 \cdot 10^{-11}$  м<sup>2</sup>. Слід зазначити, що в [25, 27] наведено результати досліджень процесу просочування пористих зразків із діаметром пор 12,7 мкм, тобто з пористою структурою, яка є близькою до структури SiC-брикета, процес просочування якої моделюється в даній роботі.

Капілярний тиск  $P_k$  визначали за формулою [1]

$$P_k = \frac{2k_\phi \sigma \cos \phi}{d_{\text{еф}}},$$

де  $k_\phi$  – коефіцієнт форми пористої структури (для сферичних пор  $k_\phi = 2$ );  $\sigma$  – поверхневий натяг рідини, яка просочується;  $\phi$  – кут змочування рідиною стінок капілярів. Кут змочування рідким кремнієм SiC-каркасу при температурах 1415–1700 °С змінюється в межах від 31° до 27° [8]. Температурні залежності густини і в'язкості рідкого кремнію було взято з [36], а поверхневий натяг ( $\sigma = 0,86$  Н/м) – з [37]. При наведених вище величинах та при  $\phi = 30^\circ$  значення  $P_k$  дорівнює  $2,33 \cdot 10^5$  Па.

Чисельне розв'язання задачі просочування рідкого кремнію в пористий SiC-зразок було виконано для таких значень параметрів: густина рідкого кремнію  $\rho = 2370$  кг/м<sup>3</sup>, в'язкість  $\mu = 0,52 \cdot 10^{-3}$  Па·с,  $\chi_f = 4,24 \cdot 10^{-10}$  Па<sup>-1</sup>,  $\chi_p = 4,0 \cdot 10^{-12}$  Па<sup>-1</sup>,  $\theta_r = 0,05$ ,  $\theta_s = 0,50$ ,  $\alpha = 1,345$ ,  $n = 1,264$ . Параметри  $\alpha$  і  $n$  для виразів (3) визначали за відповідними формулами з [30] при умові узгодження отриманих результатів обчислень із чисельними та експериментальними результатами [25, 27]. Потрібно зауважити, що параметри  $\alpha$ ,  $n$ ,  $\theta_r$ ,  $\theta_s$ , капілярний тиск  $P_k$  і конфігурація S-подібної кривої  $H = H(\theta)$  взаємопов'язані між собою. Тому для визначення параметрів  $\alpha$  і  $n$  було проведено серію комп'ютерних експериментів.

На рис. 3 наведено порівняння отриманих чисельних результатів із результатами [27] (слід зазначити, що результати [25, 27] із моделювання та експериментального дослідження процесу просочування рідкого кремнію в пористі карбідокремнієві зразки досить близькі між собою). Видно, що отримані результати добре узгоджуються з результатами [27], що свідчить про адекватність розробленої комп'ютерної моделі процесу просочування.

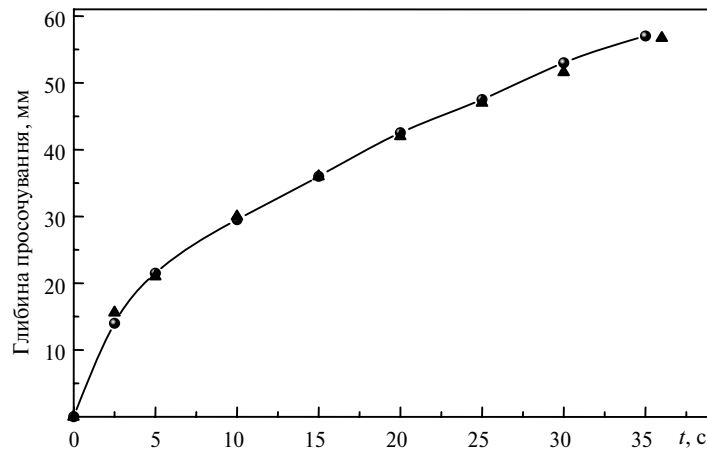


Рис. 3. Зміна в часі глибини просочування рідкого кремнію в пористий SiC-зразок: чисельний розв'язок автора (—, ●) і дані [27] (▲).

### ПРОГНОЗУВАННЯ ПРОСОЧЕННЯ РІДКИМ КРЕМНІЄМ ПОРИСТИХ SiC-ЗАГОТОВОК

При здійсненні технологічного процесу просочування є важливою інформація про тривалість повного просочування заготовок. Знаючи цю



інформацію, можна оптимізувати весь процес реакційного спікання з метою отримання якісних виробів та економії енергоресурсів і матеріалів.

З використанням розробленого програмного забезпечення було проведено моделювання явища просочення рідким кремнієм пористих заготовок із карбиду кремнію, яке протікає в процесі реакційного спікання при виробництві високощільних деталей на основі карбиду кремнію різного функціонального призначення. Процес просочування кремнієм SiC-заготовок здійснюється в графітовому тиглі після досягнення в ньому робочої температури, вищої від температури плавлення кремнію. Заготовки розміщують на підставці з пористого графіту, крізь яку в них потрапляє рідкий кремній із дна тигля. На рис. 4 зображено різні схеми просочування заготовок. В тиглі намагаються розташувати заготовки так, щоб вони мали якомога меншу площу контакту зі стінками тигля та іншими заготовками. Оскільки параметри пористої структури SiC-заготовок, які просочуються, близькі до наведених вище, то для визначення згідно виразу (2) загальної стисливості середовища  $S$  було використано дані з цього пункту (слід зазначити, що в [27], де виконано моделювання процесу просочування рідким кремнієм пористих карбідокремнієвих зразків, значення вказаних вище властивостей не наведено). Проведено чисельне моделювання процесу просочування заготовок різної форми при різному їх розташуванні та для різних розмірів зони введення просочувача в заготовки. Розрахункові області (див. рис. 4) є симетричними відносно площини, що проходить через вісь симетрії заготовки і середину зони введення просочувача, тому в обчисленнях було використано лише половину об'єму заготовки. Визначення тривалості просочення зразків на певну глибину (відстань) виконували за графіками розташування профілів тиску в об'ємі зразка у відповідні моменти часу.

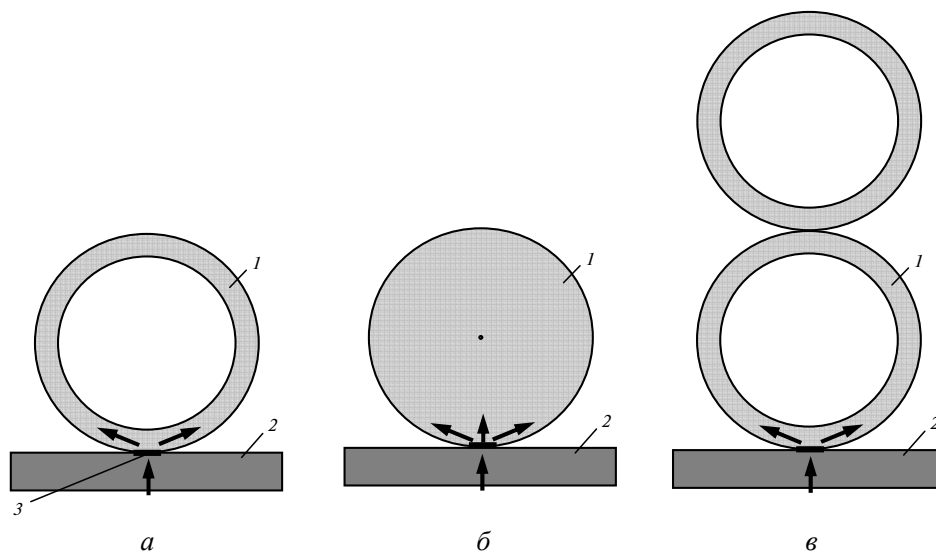


Рис. 4. Схеми просочування кругових пористих SiC-заготовок (поперечний переріз) у вигляді кільця (а), диска (б), двох кілець (в) рідким кремнієм в процесі спікання: заготовка (1), пориста графітова підставка (2), зона протікання просочувача в заготовку (3); стрілками позначено напрям руху рідкого кремнію.

При моделюванні процесу просочування рідкого кремнію в кругові заготовки потрібно вибрати ширину зони протікання просочувача в заготовку (див. рис. 4). Можливі значення ширини цієї зони було визначено на основі

закономірностей протікання капілярних явищ та з експерименту. За результатами розрахунків та експерименту ширина зони при просочуванні кремнієм круглих деталей радіуса 8 см може змінюватись в межах від 1 до 5 см.

Як впливає з результатів обчислень (рис. 5–11), тривалість повного просочення деталей суттєво залежить від розмірів і в меншій мірі залежить від конфігурації заготовок та розмірів зони протікання просочувача в заготовку (зони контакту заготовки з підставкою (див. рис. 4)). На рис. 5–7 наведено картини розташування фронту просочування кремнію в пористі SiC-заготовки в один і той же момент часу в кільця зовнішнього діаметру 16 см при ширині зони введення рідкого кремнію в заготовку  $l_z = 1$  і 5 см та в диск діаметром 16 см при  $l_z = 2$  см. На рис. 5, 6 і 8 видно, що при збільшенні вдвічі (від 1 до 2 см)  $l_z$  тривалість просочування кільця зменшується незначно – менше ніж на 10 %; при збільшенні ж ширини зони в 5 разів тривалість просочування зменшується більш суттєво – на 25 %.

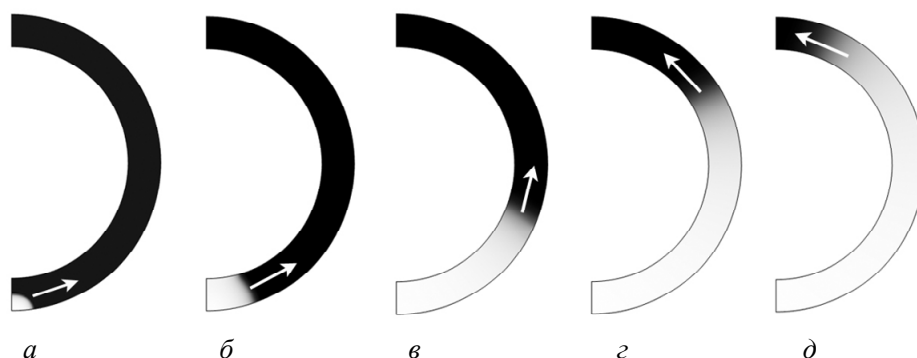


Рис. 5. Моделювання руху фронту просочування рідким кремнієм кільця діаметра 16 см із карбідокремнієвим каркасом протягом 1 (а), 10 (б), 100 (в), 300 (г), 500 (д) с;  $l_z = 1$  см.

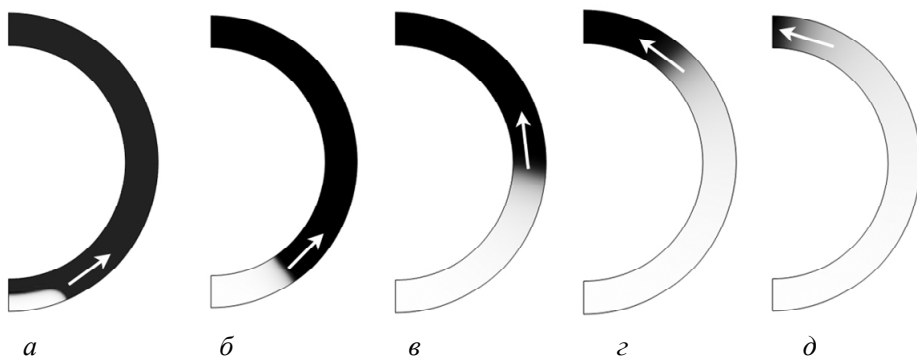


Рис. 6. Моделювання руху фронту просочування рідким кремнієм кільця діаметра 16 см із карбідокремнієвим каркасом протягом 1 (а), 10 (б), 100 (в), 300 (г), 500 (д) с;  $l_z = 5$  см.

Просочування диску відбувається трохи скоріше (тривалість просочування менша на 7 %), ніж кільця такого ж діаметру (див. рис. 8, крива 2 та рис. 9). Але як бачимо на рис. 7 і 9, процес просочування в різних напрямках об'єму диску вздовж діаметра довжиною  $2r_c$  ( $r_c = 8$  см – зовнішній радіус кільця) та по периферії диска (на віддаль  $\pi r_c$ ) відбувається з різною швидкістю. Процес просочування в діаметральному напрямі йде швидше, ніж по периферії диска; швидкість фронту просочування вздовж діаметра гасить-

ся завдяки взаємодії фронту просочування в діаметральному напрямі з фронтом просочування на периферії.

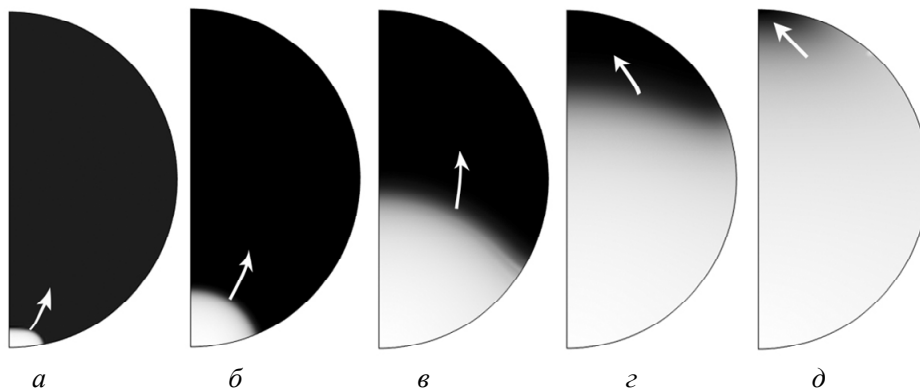


Рис. 7. Моделювання руху фронту просочування рідким кремнієм диску діаметра 16 см із карбідокремнієвим каркасом протягом 1 (а), 10 (б), 100 (в), 300 (г), 500 (д) с;  $l_2 = 2$  см.

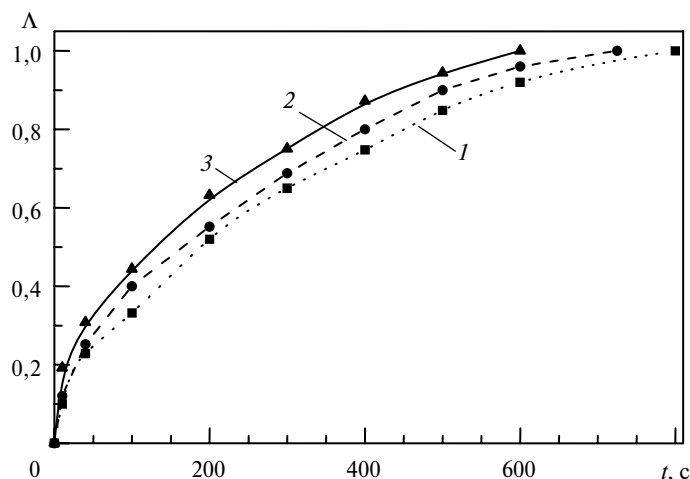


Рис. 8. Зміна в часі безрозмірної віддалі  $\Lambda$ , на яку відбулося просочення рідкого кремнію в пористі кільцеві заготовки радіуса 8 см (див. рис. 4, а), для різних розмірів зони введення просочувача:  $l_2 = 1$  (1), 2 (2), 5 (3) см.

Результати моделювання просочування рідким кремнієм пористих карбідокремнієвих кілець, розташованих в тиглі в два ряди (див. рис. 4, в), показують, що другий (верхній) ряд просочується втричі довше, ніж перший ряд (див. рис. 10 і 11): для просочування двох рядів кілець потрібно витратити майже годину часу, тоді як на просочування першого ряду – лише 12,5 хв. На рис. 11 видно, що залежність відстані просочування  $L$  від часу  $t$  є степеневою функцією [1, 35, 38]:

$$L = Kt^{1/\psi},$$

де  $\psi \in [2; 4]$ ;  $K$  – коефіцієнт пропорційності. Якщо при моделюванні процесу просочування враховувати протікання хімічних реакцій, то прогнозна тривалість процесу просочування збільшується. Отримана інформація може бути корисною при розробці технологій просочування, зокрема, при створенні градієнтних структур в процесі спікання та просочування. Таким

чином, розроблена комп'ютерна модель дає змогу прогнозувати процес просочування в технологіях спікання керамічних композитів.

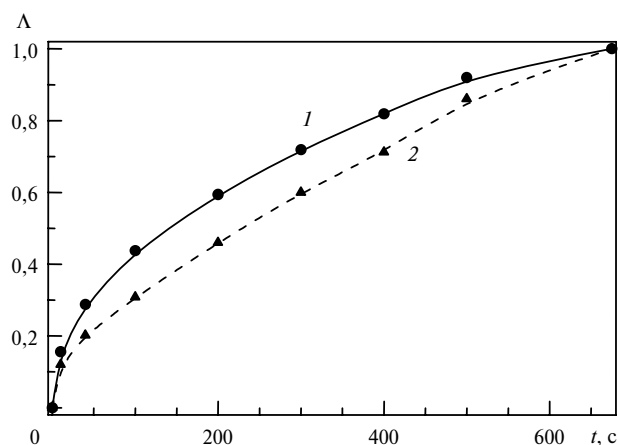


Рис. 9. Зміна в часі безрозмірної віддалі  $\Lambda$ , на яку відбулося просочення рідкого кремнію вздовж діаметральної лінії (1) та вздовж зовнішньої дуги диска (2) (див. рис. 7).

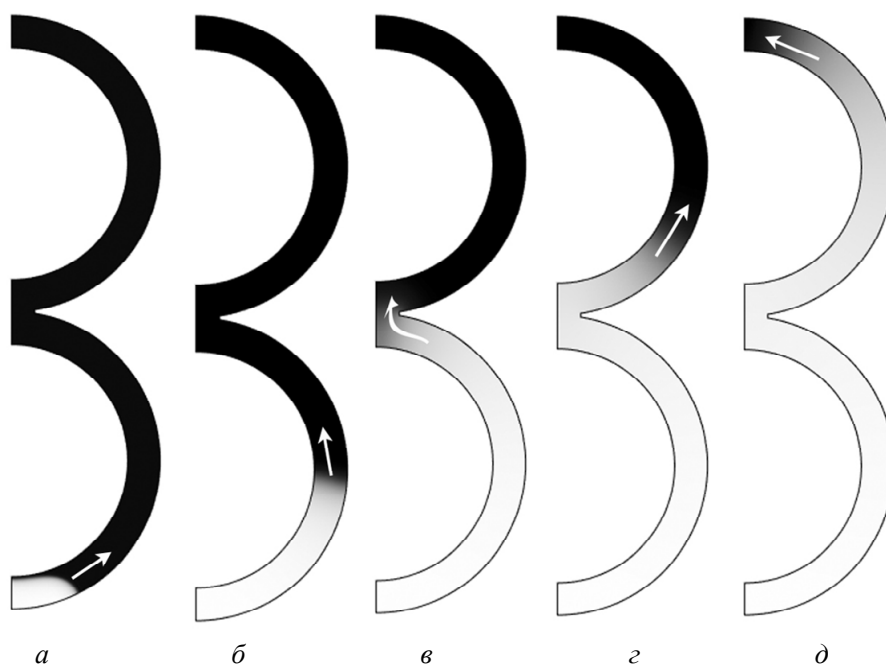


Рис. 10. Моделювання руху фронту просочування рідким кремнієм двох кілець діаметра 16 см із карбідокремнієвим каркасом ( $l_z = 2,5$  см) протягом 3 (а), 100 (б), 550 (в), 1000 (г), 2400 (д) с.

### ОБГОВОРЕННЯ РЕЗУЛЬТАТІВ

Як впливає з вище наведеного, для отримання в результаті моделювання процесу просочення достовірних результатів необхідно попередньо визначити параметри пористої структури заготовки (пористості, звивистості капілярної будови) та її інфільтраційних властивостей (коефіцієнта проникності, питомої вологоємності). Для їх коректного визначення потрібно

мати інформацію про результати лабораторних досліджень процесу просочування в зразках простої форми.

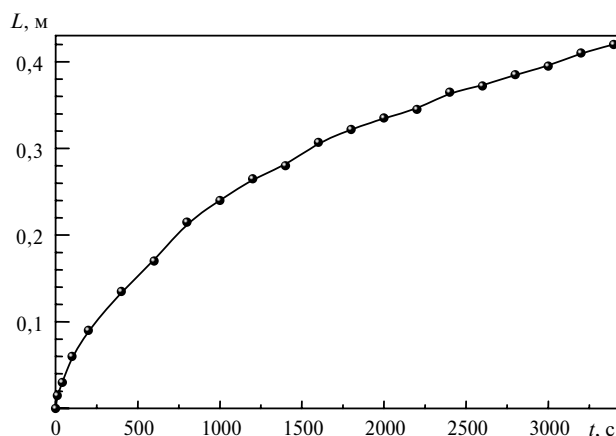


Рис. 11. Зміна в часі віддалі  $L$ , на яку просочився рідкий кремній в накладені одну на одну пористі кільцеві заготовки (див. рис. 4, в).

Представлена в даній роботі комп'ютерна модель процесу просочування не враховує ряд інших явищ, що відбуваються в реальних технологічних процесах спікання керамічних композитів, наприклад, таких як хімічна взаємодія просочувача зі стінками капілярів пористої будови заготовки, затвердіння рідкого просочувача, деформування структури композиту в процесі просочування і в результаті затвердіння просоченого матеріалу та ін. Але дана модель дає змогу коректно оцінити нижню межу тривалості процесу просочування пористих керамічних зразків, а особливо зразків складної геометричної форми та їх комбінацій. Це може бути використано при оптимізації процесу просочування.

Врахування вказаних вище явищ ускладнює модель, але дає можливість отримати більш повну картину реального процесу просочування, дослідити вплив параметрів процесу спікання та пористої структури на якість отриманого виробу. Наприклад, за даними [2], для значення початкової пористості зразків із  $V_4C$  існує таке межове значення  $\theta_*$ , що при початковій пористості заготовок  $\theta_{\text{поч}} < \theta_*$  неможливо отримати спечені вироби без тріщин, а при  $\theta_{\text{поч}} > \theta_*$  отримують високощільні вироби без тріщин.

## ВИСНОВКИ

Розроблена комп'ютерна модель просочування є адекватною, що встановлено за результатами розв'язання тестових задач та їх порівняння з експериментальними даними.

Комп'ютерне модулювання процесу просочування карбідокремнієвих пористих зразків рідким кремнієм та використання результатів експериментальних досліджень дає можливість визначити параметри моделі Ван Генутчена, яка характеризує властивості проникності пористої структури цих зразків. Показано, що тривалість процесу просочування суттєво залежить від довжини шляху просочування пористих зразків і, в меншій мірі, від форми зразків та розмірів зони введення просочувача в зразок.

Розроблена комп'ютерна модель може бути використана для моделювання та чисельного дослідження процесу просочування при спіканні керамічних композитів.

Представлено численную модель пропитки пористых образцов из керамических материалов в процессе спекания. Математическая модель процесса пропитки базируется на уравнении Ричардса и соотношениях Ван Генучтена, описывающих свойства проницаемости пористой структуры образца. Для дискретизации уравнения Ричардса использованы метод конечных элементов и устойчивая неявная разностная схема по времени. На основании результатов решения тестовых задач, сравнения полученных численных результатов с результатами других авторов, а также и с результатами эксперимента установлена адекватность численной модели. Приведены результаты компьютерного моделирования пропитки жидким кремнием пористых образцов из карбида кремния различной геометрической формы и различных размеров.

**Ключевые слова:** численное моделирование, пропитка, спекание, керамические композиты.

*The numerical model of infiltration of porous ceramic specimens is presented. Mathematical model of infiltration based on Richards' equation and on formulas of Van Genuchten describing of permeability properties of porous structure of specimens. For discretization of Richards' equation the finite element method and stable implicit finite difference time scheme are used. On ground of the results of solving tests and of comparison of the obtained numerical results with results of other authors the adequacy of numerical model is establish. The results of computer simulation of infiltration of liquid silicon into porous silicon-carbide specimens of various configurations and sizes are presented.*

**Keywords:** numerical simulation, infiltration, sintering, ceramic composites.

1. Тучинский Л. И. Композиционные материалы, получаемые методом пропитки. – М.: Металлургия, 1986. – 208 с.
2. Кислый П. С., Кузенкова М. А., Боднарук Н. И., Грабчук Б. Л. Карбид бора. – К.: Наук. думка, 1988. – 216 с.
3. Michaud V., Mortensen A. Infiltration processing of fibre reinforced composites: governing phenomena // Composites: Part A. – 2001. – **32**. – P. 983–996.
4. Wang Y., Grove S. M. Unsaturated modelling of dual scale flow in liquid composite moulding processes // 8th Int. Conf. on Flow Processes in Composite Materials (FPCM8), Douai, France, 11–13 July, 2006. – P. 123–130.
5. Cantarel A., Lacoste E., Mantaux O. et al. Metal matrix composite processing: experimental and numerical study of infiltration of fibrous performs by a binary alloy // J. Mater. Sci. Technol. – 2004. – **20**, N 1. – P. 52–54.
6. Patro D., Jayaram V. Kinetics of pressureless infiltration of Al-Mg melts into porous alumina preforms // Chem. Mater. Sci. Metall. Mater. Trans. B. – 2008. – **39**, N 1. – P. 108–115.
7. Dunand D. C. Synthesis of superconducting MgO–MgB<sub>2</sub> composites // Appl. Phys. Letters. – 2001. – **79**, N 25. – P. 4186–4188.
8. Гнесин Г. Г. Карбидокремниевые материалы. – М.: Металлургия, 1977. – 216 с.
9. 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.
10. Скачков В. А., Воденников С. А., Бережная О. Р., Иванов В. И. Методические основы пропитки пористых углерод-углеродных композиционных материалов жидким кремнием // Металлургия: Тр. Запорожской гос. инженерной акад. – Запорожье, 2011. – Вып. 15. – С. 256–260.
11. Hong S., Park Z., Jang U. et al. Factors in forming a junction by glass infiltration between different materials for a LTCC application // J. Ceram. Proc. Res. – 2010. – **11**, N 5. – P. 566–569.
12. Косинский В. В. Математическое обоснование влияния основных технологических факторов на процессы пропитки недеформируемых пористых оснований вязкими средами под высоким давлением // Порошк. металлургия. – 2009. – № 1/2. – С. 18–28.
13. Шульженко А. А., Божко С. А., Соколов А. Н. и др. Синтез, спекание и свойства кубического нитрида бора. – К.: Наук. думка, 1993. – 256 с.
14. Бочечка А. А. Миграция жидкой фазы при спекании алмазных порошков методом пропитки в условиях высоких давлений и температур // Сверхтв. материалы. – 1999. – № 2. – С. 17–23.
15. Glaser A., Rosiwal S. M., Freels B., Singer R. F. Chemical vapor infiltration (CVI)–Part I: a new technique to achieve diamond composites // Diamond Relat. Mater.: 14th Eur. Conf. on

- Diamond, Diamond-Like Materials, Carbon Nanotubes, Nitrides and Silicon Carbide. – 2004. – **13**, Is. 4–8. – P. 834–838.
16. *Петруша И. А., Осипов А. С., Смирнова Т. И. и др.* О некоторых особенностях пропитки кремнием двухслойных структур на основе алмаза и кубического нитрида бора при высоком давлении // Породоразрушающий и металлообрабатывающий инструмент – техника и технология его изготовления и применения: Сб. науч. тр. – Вып. 12. – Киев: ИСМ им. В. Н. Бакуля НАН Украины, 2009. – С. 270–273.
  17. *Косторнов А. Г.* Капиллярный транспорт маловязких жидкостей в пористых металлических материалах в условиях действия сил гравитации // Порошк. металлургия. – 2003. – № 9/10. – С. 13–26.
  18. *Barczy T., Kaptay G.* Modeling the infiltration of liquid metals into porous ceramics // Materials Science Forum. – 2005. – **473/474**. – P. 297–302.
  19. *Ridgway C. J., Gane P. A. C., Schoelkopf J.* Effect of capillary element aspect ratio on the dynamic imbibition within porous networks // J. Colloid Int. Sci. – 2002. – **252**. – P. 373–382.
  20. *Biswas D. K., Gatica J. E., Tewari S. N.* Dynamic analysis of unidirectional pressure infiltration of porous preforms by pure metals // Metall. Mater. Trans. A. – 1998. – **29**, N 1. – P. 377–385.
  21. *Wang Y., Moatamedi M., Grove S. M.* Continuum dual-scale modeling of liquid composite molding processes // J. Reinforced Plastics Comp. – 2009. – **28**, N 12. – P. 1469–1484.
  22. *Morell J. I., Economou D. J., Amundson N. R.* Chemical vapor infiltration of SiC with microwave heating // J. Mater. Res. – **8**, N 5. – P. 1057–1067.
  23. *Li A., Norinaga K., Zhang W., Deutschmann O.* Modeling and simulation of material synthesis: chemical vapor deposition and infiltration of pyrolytic carbon // Comp. Sci. Techn. – 2008. – **68**. – P. 1097–1104.
  24. *Zhu Y., Schnack E.* Numerical modelling chemical vapor infiltration of SiC composites // J. Chem. – Proc. Appl. Math. Mech. – 2011. – **11**. – P. 453–454.
  25. *Einsel E.* Analysis of reactive melt infiltration in the processing of ceramics and ceramic composites // Chem. Eng. Sci. – 1998. – **53**, N 5. – P. 1027–1038.
  26. *Nelson E. S., Colella P.* Parametric study of reactive melt infiltration // Proc. IMECE'99. 1999 ASME Int. Mech. Eng. Congress and Exposition, Nashville, Tennessee, USA, 14–19 Nov., 1999. – P. 1–11.
  27. *Yushmanov S. P., Crompton J. S., Koppenhoefer K. C.* Simulation of manufacturing process of ceramic matrix composites // Excerpt from the Proc. COMSOL Conf. – Boston, 2008. – P. 1–6.
  28. *Jung C. K., Jang J. H., Han K. S.* Numerical simulation of infiltration and solidification processes for squeeze cast Al composites with parametric study // Chem. Mater. Sci. Metall. Mater. Trans. A. – 2008. – **39**, N 11. – P. 2736–2748.
  29. *Jardani A., Revil A., Boleve A. et al.* Tomography of the Darcy velocity from self-potential measurements // Geophys. Res. Letters. – 2007. – **34**, N 24. – P. 1–6.
  30. *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.
  31. *Brooks R. H., Corey A. T.* Properties of porous media affecting fluid flow // J. Irrigation Drainage Division: Proc. ASCE. – 1966. – **2**, June. – P. 61–88.
  32. *Баренблатт Г. И., Ентов В. М., Рыжик В. М.* Теория нестационарной фильтрации жидкости и газа. – М.: Недра, 1972. – 288 с.
  33. *Самарский А. А.* Теория разностных схем. – М.: Наука, 1989. – 616 с.
  34. *Shahraiyuni H. T., Ashtiani B. A.* Comparison of finite difference schemes for water flow in unsaturated soils // Int. J. Aerospace Mech. Eng. – 2009. – **3**, N 1. – P. 1–5.
  35. *Коллинз Р.* Течение жидкостей через пористые среды. – М.: Мир, 1964. – 350 с.
  36. *Глазов В. М., Чижевская С. Н.* Жидкие полупроводники. – М.: Наука, 1968. – 244 с.
  37. *Таблицы физических величин: Справ. / Под ред. И. К. Киойна.* – М.: Атомиздат, 1976. – 1008 с.
  38. *Еременко В. Н., Лесник Н. Д.* Исследование кинетики пропитки пористых тел жидкими металлами // Поверхностные явления в металлах и сплавах и их роль в процессах порошковой металлургии. – К.: Изд-во АН УССР, 1961. – С. 155–177.

Ин-т надтвердих матеріалів  
ім. В. М. Бакуля НАН України

Надійшла 20.05.13