

АГЛОМЕРАЦИЯ ЧАСТИЦ АЛЮМИНИЯ В УСЛОВИЯХ НЕСТАЦИОНАРНОГО НАГРЕВА

А. А. Раздобреев, А. И. Скорик, Ю. В. Фролов, В. А. Ермаков

(Томск)

Исследование агломерации металлических частиц стимулируется необходимостью решения ряда задач, связанных с горением высокометаллизированных систем. Выявление основных закономерностей этого явления даст возможность более полно вскрыть механизм отдельных стадий процессов, характерных для СВС, пиротехники, порошковой металлургии, и на этой основе разработать методы регулирования и пути повышения эффективности их исследования.

В работах [1, 2] на основании анализа экспериментальных данных по взаимодействию контактирующих частиц при высокотемпературном нагреве показано, что слияние частиц таких металлов, как алюминий, магний, и их сплавов — процесс многостадийный и не может быть описан законами, установленными в физике спекания. Цель настоящей работы — дальнейшее изучение закономерностей слияния частиц алюминия в условиях нестационарного нагрева.

В работе использовали сферические частицы алюминия диаметром от 200 до 480 мкм. Содержание примесей в металле не превышало 0,01%. В опытах две частицы 4 помещались на верхний торец кварцевой нити 3 диаметром до 800 мкм (рис. 1). Частицы нагревались лучом оптического квантового генератора (ОКГ) на углекислом газе 8, сфокусированного линзой 10 в пятно диаметром 500—1500 мкм. Интенсивность излучения в месте расположения частиц можно регулировать в интервале от 100 до 10 000 Вт/см². Для регистрации процесса слияния применялась скоростная кинокамера СКС-1 1. Съемка проводилась со скоростью до 4500 кадр/с через оптическую систему микроскопа МБС-2 2 при 2—10-кратном увеличении. Одновременно с киносъемкой через второй тубус микроскопа можно было вести визуальные наблюдения за процессом. Эти наблюдения особенно полезны при низких плотностях потока. Оптическая ось микроскопа и кинокамеры располагались перпендикулярно к вертикальной плоскости, в которой размещались нагреваемые частицы. Оптическая ось ОКГ составляла с ней угол 85°. Такая геометрия опыта обеспечивала достаточно равномерный нагрев обеих частиц и проведение киносъемки процессов, протекающих в месте контакта частиц, в оптимальном ракурсе. Для того чтобы за процессом можно было следить с самого начала нагрева, частицы подсвечивались лампой накаливания 6. Более подробно использованная в работе установка описана в [3].

Общую картину слияния частиц алюминия удобно рассмотреть на примере агломерации частиц диаметром 480 мкм, нагреваемых потоком с интенсивностью 1000 Вт/см². Экспериментальные данные приведены на рис. 2, 5 в координатах: время — относительный диаметр контактного перешейка $\delta = d_{\text{п}}/d_0$, где $d_{\text{п}}$ — диаметр перешейка, d_0 — диаметр исходных частиц, и на кинограмме (рис. 3, а).

На начальных стадиях нагрева, так же как и в [4], наблюдается увеличение диаметра частиц, появление на их поверхности яркосветящихся участков, изменение отражательной способности поверхности. В определенный момент времени τ_0 между частицами образуется начальный контактный перешеек диаметром d_0 . Значения τ_0 и d_0 достаточно хорошо воспроизводятся в параллельных опытах и в рассматриваемом случае составляют $42 \cdot 10^{-3}$ с и 0,12 соответственно. Дальнейший нагрев ведет к медленному, практически линейному росту перешейка со ско-

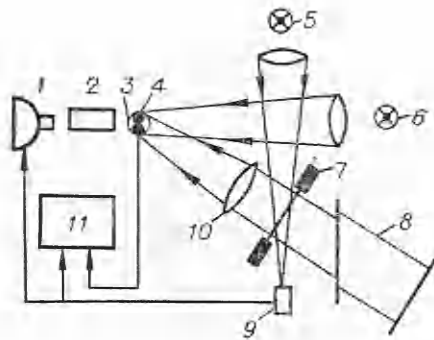


Рис. 1. Схема экспериментальной установки.

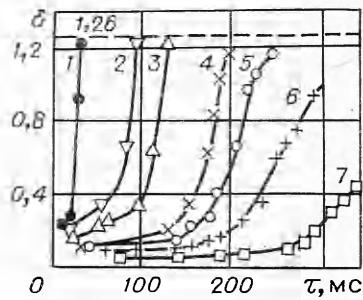


Рис. 2. Кинетика агломерации частиц алюминия диаметром 480 мкм при потоках 200 (7), 400 (6), 1000 (5), 2000 (4), 4500 (3), 7800 (2) и 10000 Вт/см² (1).

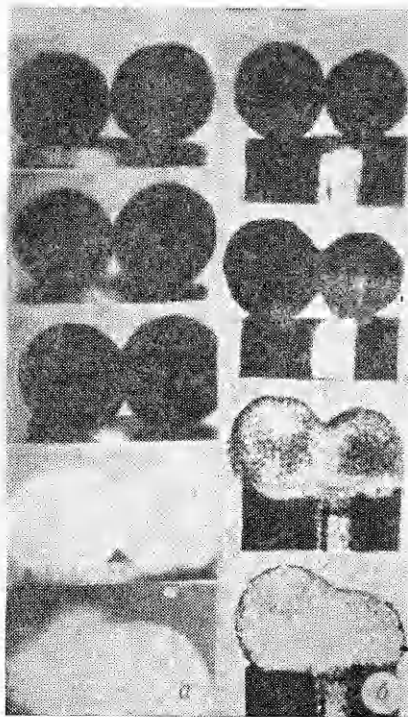


Рис. 3. Кинограмма слияния частиц алюминия, нагреваемых потоком 1000 Вт/см².

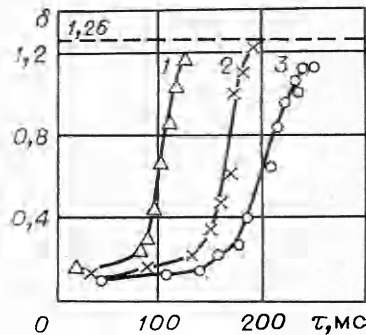


Рис. 4. Кинетика агломерации частиц алюминия диаметром 200 (1), 370 (2) и 480 (3) мкм при потоке 1000 Вт/см².

ростью $v_n = 3 \cdot 10^{-4}$ отн. ед./с. После достижения контактным перешейком относительного диаметра 0,15—0,20 наблюдается увеличение скорости его роста, которая достигает максимального значения $v_{max} = 200 \cdot 10^{-4}$ отн. ед./с при $\delta = 0,81 \div 1,00$, затем скорость его роста снижается. Завершается процесс образованием единой сферической частицы с диаметром, близким к 1,26 d_0 , и ее воспламенением. Картина воспламенения и горения образовавшейся частицы аналогична описанной ранее [4]. На стадии медленного роста перешейка характерно образование на поверхности частиц вблизи него кольцевых зон с повышенной яркостью свечения.

Изменение интенсивности потока и диаметра частиц, не меняя общего характера процесса агломерации, влияет на его количественные характеристики (см. рис. 2, 4).

d , мкм	q , Вт/см ²	τ_0 , мс	δ_0 , отн. ед.	$v_n \cdot 10^3$, отн. ед./с	$v_{max} \cdot 10^3$, отн. ед./с	d , мкм	q , Вт/см ²	τ_0 , мс	δ_0 , отн. ед.	$v_n \cdot 10^3$, отн. ед./с	$v_{max} \cdot 10^3$, отн. ед./с
200	200	30	0,15	1,5	15	370	400	50	0,13	0,4	22
	400	23	0,15	2,8	17		1 000	36	0,13	0,6	31
	1 000	16	0,13	1,9	26		3 100	8	0,18	1,1	120
	2 000	9	0,15	1,4	40		7 800	8	0,21	2,7	72
	4 500	6	0,18	4,5	88						
	7 800	4	0,20	5,9	88						
	10 000	3	0,34		172						
260	200	37	0,11	1,0	18	480	200	74	0,05	0,2	8
	400	30	0,13	0,9	24		400	57	0,09	0,4	12
	1 000	22	0,12	1,0	30		1 000	42	0,12	0,3	20
	2 000	16	0,13	2,0	30		2 000	34	0,13	0,8	20
	4 500	10	0,15	—	—		4 500	22	0,15	2,2	24
	7 800	7	0,19	—	80		7 800	17	0,20	2,6	59
						10 000	13	0,21	5,0	77	

Повышение мощности потока до 7800 Вт/см² приводит к сокращению τ_0 , увеличению δ_0 , v_n и v_{max} . При этом переход от v_n к v_{max} происходит более резко при меньших τ и больших δ (см. рис. 2 и таблицу). Частицы, нагреваемые потоком в 10 000 Вт/см², сливаются практически в одну стадию настолько быстро, что образовавшаяся частица в начальный момент имеет эллипсообразную форму и ее вертикальный размер превышает d_0 в 1,4—1,6 раза. В дальнейшем она приобретает сферическую форму. Зажигание, как правило, происходит после полного слияния частиц. Однако при потоках 7800 и 10 000 Вт/см² появление факела пламени наблюдается до завершения агломерации при $\delta = 0,85 \div 0,90$. При снижении мощности потока τ_0 растет, а δ_0 и скорости роста контактного перешейка на всех стадиях уменьшаются. Изменение скорости роста перешейка в процессе нагрева происходит более плавно.

В целом в исследованном интервале потоков δ_0 , v_n и v_{max} растут с увеличением мощности потока по законам, близким к линейным, а изменение τ_0 описывается выражением: $\tau_0 = a/q^n$, где n зависит от диаметра частиц и меняется от 0,42 для частиц с $d = 480$ мкм до 0,58 для частиц с $d = 200$ мкм, а a слабо зависит от диаметра.

Уменьшение диаметра частиц слабо влияет на величину δ_0 , увеличивает v_n и v_{max} и приводит к сокращению τ_0 по закону, близкому к линейному (см. рис. 4 и таблицу).

Для понимания механизма агломерации большой интерес представляет знание температуры частиц на разных стадиях слияния. В связи с этим проведены опыты, в которых одновременно с киносъемкой нагреваемых частиц измерялись их температуры 50-микронной вольфрам-револьверной термопарой. Для удобства работы в этих экспериментах использовались частицы в форме цилиндров диаметром 680 и длиной 700 мкм. Одна (или две) частица разрезалась до половины диаметра, в разрез вводился спай микротермопары и она плотно сжималась. Сигнал от термопары регистрировался шлейфовым осциллографом Н-700 11. Схема опытов соответствовала рис. 1. При этом частицы контактировали друг с другом по образующей цилиндра, а съемка проводилась со стороны торцов. Для отметки времени начала нагрева частиц использовались два фото диода 9, освещавшиеся специальной лампой накаливания 4 при раскрытии фотозатвора 7. Сигнал от одного из них включал отметчик времени камеры СКС-1, другой соединен с одним из шлейфов Н-700. Это позволяло сопоставлять зависимости $T(\tau)$ и $\delta(\tau)$ по времени с точностью до 5 мс.

Типичные зависимости температуры и δ от времени, полученные при нагревании частиц потоком 930 Вт/см^2 , приведены на рис. 5. Следует отметить, что условия контакта цилиндрических частиц, их теплообмена с окружающей средой отличаются от условий, которые реализуются в опытах со сферическими частицами. В связи с этим отметим лишь наиболее общие закономерности, которые следуют из приведенных данных и, по-нашему мнению, не зависят от формы частиц. Образование начального контактного перешейка происходит при температуре около 900°C после завершения плавления агломерирующих частиц. Увеличение скорости роста контактного перешейка наблюдается в области температур $1200\text{--}1350^\circ\text{C}$, завершается агломерация частиц при $1700\text{--}1800^\circ\text{C}$. Последний вывод подтверждается результатами измерения температуры поверхности частиц T_n в момент слияния и появления пламени, полученными с применением оптических методов измерения температуры. В этих опытах $T_n = 1740 \div 1920^\circ\text{C}$ в различных точках поверхности¹.

Увеличение плотности потока до 8000 Вт/см^2 приводит к повышению скорости роста температуры частиц, но не оказывает заметного влияния на температуру образования начального изменения скорости роста контактного перешейка и завершения слияния частиц. Таким образом, результаты температурных измерений показывают, что частицы алюминия агломерируют в жидком состоянии в области температур, более низких, чем температура плавления окисной пленки. С учетом этого наблюдаемые в работе закономерности процесса агломерации могут быть объяснены исходя из следующих представлений.

При нагревании частиц алюминия в результате различия коэффициентов расширения металла и окисной пленки происходит периодическое разрушение последней. После достижения $T_{пл} \text{ Al}$ разрушение окисной пленки сопровождается выходом жидкого металла на поверхность частицы, окислением мелких капель при контакте с воздухом и «залечиванием» окисной пленки [5]. При выходе вблизи места контакта двух частиц на поверхность одной из них достаточно большой капли металла наряду с окислением возможно ее взаимодействие с поверхностью контактирующей частицы. Поскольку жидкий алюминий смачивает окисел [6], первичным результатом этого взаимодействия будет образование начального контактного перешейка. В результате дальнейшего высокотемпературного реагирования жидкого алюминия со своим окислом воз-

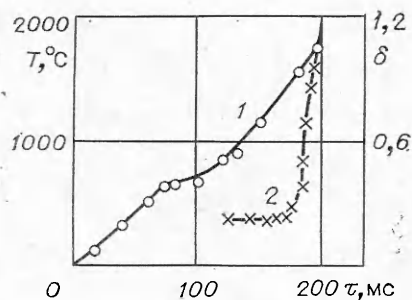


Рис. 5. Изменение температуры (1) и относительного диаметра контактного перешейка (2) в процессе агломерации частиц алюминия.

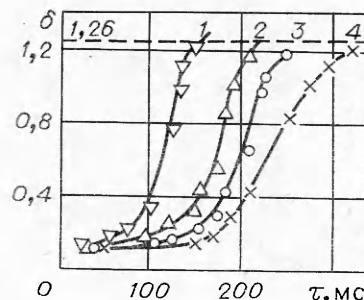


Рис. 6. Кинетика агломерации исходных (3) и доокисленных (4) частиц алюминия в атмосфере воздуха и гелия (1 и 2 соответственно). Диаметр частиц 480 мкм , плотность потока 1000 Вт/см^2 .

¹ Измерения температуры поверхности оптическим методом выполнены при участии сотрудников Сибирского физико-технического института С. С. Смолякова и В. В. Поздеева.

можно разрушение окисной пленки и образование контакта между жидкими металлическими ядрами взаимодействующих частиц.

В дальнейшем агломерация происходит по законам слияния жидких капель. Подтверждением этому может, в частности, быть наблюдаемое «поглощение» мелкой частицы более крупной, обнаруженное в опытах с частицами различного диаметра (см. рис. 3, б). Наличие на поверхности жидких частиц металла твердой окисной пленки существенно затрудняет их слияние и приводит к тому, что времена агломерации частиц алюминия значительно превышают времена слияния жидких капель близкого размера [7]. По мере роста температуры частиц имеет место разрушение окисной пленки [8], с чем и связано наблюдаемое в опытах увеличение скорости роста контактного перешейка. Повышение температуры нагрева частиц приводит к сокращению времени их нагрева до температуры, при которой происходит образование перешейка, усиливает механические напряжения в окисной пленке и интенсифицирует ее разрушение. Результатом этого является отмеченное выше сокращение τ_0 , увеличение δ_0 и ν при повышении интенсивности теплового потока и уменьшении размера взаимодействующих частиц.

Для прямой проверки роли окисной пленки в процессе агломерации алюминия проведены опыты с частицами, предварительно прогретыми при температуре 600°C в атмосфере воздуха в течение 50 ч. Согласно [9—11], толщина окисной пленки после такой обработки может достигать 0,2 мкм. Как видно из результатов, приведенных на рис. 6, 3, 4, увеличение толщины пленки окисла существенно снизило скорость роста перешейка. Здесь приведены также данные по агломерации исходных и доокисных частиц в атмосфере гелия, т. е. в условиях, исключающих возможность образования и рост толщины окисной пленки в процессе опыта. Сравнение кривых 1 и 2 с кривыми 3 и 4 показывает, что скорость роста перешейка в этих условиях значительно выше, чем в окислительной атмосфере.

Таким образом, в работе изучена агломерация частиц алюминия в условиях нестационарного нагрева. Установлено влияние размера частиц, толщины окисной пленки, условий окисления в процессе нагрева и интенсивности теплового потока на кинетику процесса. Проведено измерение температуры взаимодействующих частиц на различных стадиях агломерации. Полученные результаты обсуждены, исходя из представлений об агломерации частиц алюминия как о результате взаимодействия их металлических ядер, находящихся в расплавленном состоянии. Показано тормозящее влияние твердой окисной пленки, покрывающей частицы до полного слияния.

*Поступила в редакцию
26/V 1980*

ЛИТЕРАТУРА

1. В. Д. Гладун, Ю. В. Фролов, Л. Я. Кашпоров. ФГВ, 1977, 13, 5, 705.
2. А. А. Раздобреев, А. И. Скорик, Ю. В. Фролов. Матер. XII Всесоюз. конф. по вопросам испарения, горения и газовой динамики дисперсных систем. Тез. докл., Одесса, 1976, 33.
3. А. А. Раздобреев, И. И. Букастый. Изв. вузов. Физика, 1973, 4, 155.
4. А. А. Раздобреев, А. И. Скорик, Ю. В. Фролов. ФГВ, 1976, 12, 2, 203.
5. П. Кофстад. Высокотемпературное окисление металлов. М.: Мир, 1969.
6. Физико-химические свойства окислов. Справочник/Под ред. Г. В. Самсонова. М.: Металлургия, 1978.
7. W. D. Kingery. J. Appl. Phys., 1955, 26, 1205.
8. P. Harper, C. Shepard, A. Dorn. Acta Met., 1958, 6, 509.
9. Окисление металлов. Сборник/Под ред. Ж. Бенара, т. 2. М.: Металлургия, 1969.
10. N. Pilling, J. Bedworth. J. Inst. Metals., 1923, 29, 429.
11. J. Herenguel, J. Boghen. Rev. Met., 1954, 51, 265.