

Д. т. н. **В. В. Кузин** (✉), д. т. н. **С. Н. Григорьев**, к. т. н. **С. Ю. Фёдоров**,
к. т. н. **М. А. Волосова**, к. т. н. **Н. В. Солис** Пинарготе

ФГБОУ ВО «Московский государственный технологический университет «Станкин», Москва, Россия

УДК 666.3:546.623-31]:621.039.542.33

ИСКРОВОЕ ПЛАЗМЕННОЕ СПЕКАНИЕ ЗАГОТОВОК Al_2O_3 -КЕРАМИКИ ДЛЯ МЕЛКОРАЗМЕРНЫХ КОНЦЕВЫХ ФРЕЗ

Определены закономерности влияния температуры спекания, давления и длительности изотермической выдержки при искровом плазменном спекании на структуру Al_2O_3 -керамики, не содержащей активирующих добавок. Выявленные взаимосвязи позволили определить направление поиска оптимальных параметров режима спекания и сформулировать базовые положения технологических рекомендаций по спеканию заготовок для мелкогабаритных концевых фрез.

Ключевые слова: *искровое плазменное спекание (ИПС), Al_2O_3 -керамика, концевая фреза.*

ВВЕДЕНИЕ

Конструктивные особенности и экстремальные условия эксплуатации мелкогабаритных концевых фрез устанавливают специфические требования к структуре и свойствам инструментальной керамики [1]. Только мелкозернистая и беспористая структура керамики способна обеспечить высокую прочность этих уникальных инструментов и отсутствие выкрашиваний на лезвии зубьев фрез после заточки и во время эксплуатации [2–5]. Для изготовления заготовок мелкогабаритных концевых фрез из керамики с требуемой структурой целесообразно ориентироваться на технологию искрового плазменного спекания (ИПС) [6–9]. Разные технологические аспекты ИПС в настоящее время интенсивно разрабатываются во многих научных центрах, а их результаты приводятся в публикациях отечественных и зарубежных ученых [10–18]. Выявленные преимущества ИПС над традиционными методами спекания обеспечивают процесс консолидации порошка при одновременном действии механической нагрузки и пульсирующего направленного электрического тока, создающего разрядную плазму между соседними частицами [19]. Этот физический эффект стимулирует диффузионный механизм спекания, позволяющий снизить температуру и длительность выдержки. В совокупности с высокой скоростью нагрева и охлаждения ИПС предоставляет возможность получения высокоплотной керамики с улучшенными свойствами, с размером зерен,

практически равным размеру частиц исходного порошка [20].

Однако специфика физических явлений при ИПС и их существенное отличие от хорошо изученных процессов, сопровождающих традиционные методы спекания (обычное спекание, горячее прессование и горячее изостатическое прессование), затрудняют назначение рациональных параметров режимов этого процесса. Для успешного практического применения ИПС и получения наибольшей отдачи от этой перспективной технологии необходимо правильно сформировать полную технологическую цепочку изготовления высококачественных заготовок, учитывающую особенности спекания разных керамических материалов. В наибольшей степени этот вопрос проработан для ИПС заготовок из Al_2O_3 [21–26]. Однако некоторая противоречивость результатов этих исследований, в том числе о влиянии активаторов в ИПС на формирование структуры Al_2O_3 -керамики, определила цель настоящей работы.

Цель экспериментального исследования — выявить закономерности влияния параметров режима ИПС на структуру Al_2O_3 -керамики, не содержащей активирующих добавок, для создания базовых положений технологических рекомендаций по спеканию заготовок для мелкогабаритных концевых фрез.

МЕТОДИКА ИССЛЕДОВАНИЯ

Объектом исследования являлись образцы Al_2O_3 -керамики диаметром 20 и высотой 3 мм, изготовленные на оборудовании Лаборатории искрового плазменного спекания — LECAS (http://lecast.ru) МГТУ «Станкин». Использовали высокочистый порошок $\alpha-Al_2O_3$, характеризую-



В. В. Кузин
E-mail: kyzena@post.ru

щийся истинной плотностью 3,95 г/см³, с размерами частиц от 5 (20 % объема) до 10 мкм (80 % объема). Активаторы спекания не использовали. Технология изготовления керамических заготовок включала измельчение исходного порошка с последующими сушкой и деагломерацией, прессование и спекание.

Истинную плотность порошка α -Al₂O₃ измеряли с использованием гелиевого пикнометра Ассу Рус 1340, размер зерна и его соотношение в общей массе порошка — на оптическом грануло-морфометре ОССНЮ 500 nano. Порошок измельчали в дистиллированной воде на атриторе 01-ND с применением шариков из высокочистой керамики Al₂O₃ диаметром 3 мм в течение 12 ч. Сушку измельченного порошка проводили в два этапа. Предварительное выпаривание полученной при измельчении суспензии выполняли на магнитной мешалке с подогревом MR Hei-Tec, а окончательное высушивание — в вакуумном сушильном шкафу VO 400. Измельченный порошок деагломерировали протиранием через сито с размером ячейки 63 мкм. В результате этих операций размер частиц уменьшился в 2 раза по сравнению с исходным порошком — размер частиц в подготовленном порошке 2 (20 % объема) и 5 мкм (80 % объема).

Образцы прессовали в графитовой пресс-форме на гидравлическом прессе CARVER под давлением 10 МПа, причем порошок отделяли от внутренней поверхности пресс-формы графитовой фольгой. Образцы спекали в установке КСЕ Н-НР D 25-SD в вакууме 10⁻³ мбар. Параметры режимов ИПС изменяли в следующем диапазоне: температуру спекания T 1440–1700 °С, давление P 80–120 МПа, длительность изотермической выдержки τ 1–3 мин; скорость нагрева V для всех режимов ИПС оставалась постоянной — 100 град/мин.

Структуру спеченной керамики изучали на изломах, полученных методом однократного ударного воздействия на образцы, с использованием сканирующего электронного микроскопа VEGA 3 LMN. Исследовали центральную область этих изломов; анализировали размер, форму и распределение зерен, а также характер контакта соседних зерен.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Результаты экспериментальных исследований показаны на рис. 1–3. Микрофотографии структуры керамики, спеченной при разных режимах ИПС, свидетельствуют о сильном влиянии па-

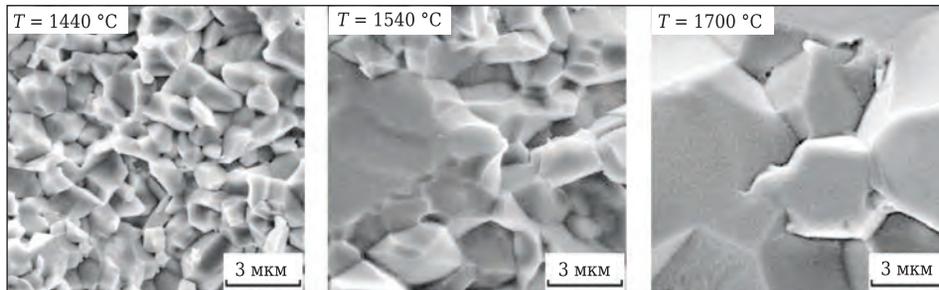


Рис. 1. Влияние T на структуру Al₂O₃-керамики после ИПС ($P = 80$ МПа, $\tau = 1$ мин и $V = 100$ град/мин)

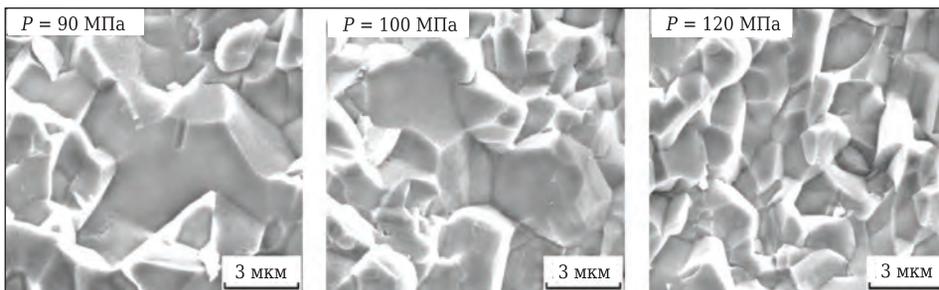


Рис. 2. Влияние P на структуру Al₂O₃-керамики при ИПС ($T = 1540$ °С, $\tau = 1$ мин и $V = 100$ град/мин)

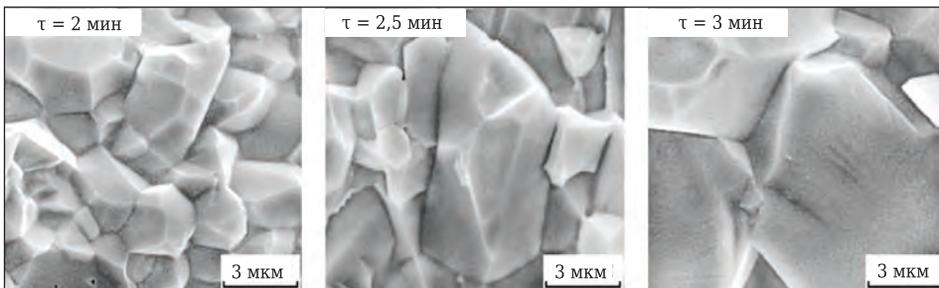


Рис. 3. Влияние τ на структуру Al₂O₃-керамики при ИПС ($T = 1540$ °С, $P = 80$ МПа и $V = 100$ град/мин)

раметров T , P и τ на структуру спеченной Al_2O_3 -керамики. Последовательно проанализируем взаимосвязь каждого из этих параметров со структурой Al_2O_3 -керамики.

Установлено, что влияние T на структуру Al_2O_3 -керамики является наиболее значимым — с повышением T увеличивается размер зерен, изменяется их форма, уменьшается пористость керамики. Степень этого влияния зависит от P и τ , при которых реализуется ИПС. Видно, что структуру Al_2O_3 -керамики, спеченной при $T = 1440$ °С (см. рис. 1), формируют зерна размерами до 3 мкм, имеющие несколько вытянутую и сглаженную форму. Между зернами образуются поры размерами до 0,5 мкм на стыках трех зерен, а также у выступов более крупных зерен. Контакт между соседними зернами имеет хаотичный вид; зерна соприкасаются с образованием перемычек, средняя длина которых не превышает 1 мкм. Качественная оценка показала, что объем порового пространства в структуре керамики, спеченной при этой температуре, составляет 12–15 %.

С повышением T до 1540 °С заметно увеличивается до 8 мкм размер зерен, которые по размеру можно классифицировать на две группы. Более мелкие зерна (3–5 мкм) сохраняют округлую форму и контактируют по перемычкам длиной до 2 мкм. Более крупные зерна (6–8 мкм) приобретают форму хорошо ограненных многогранников, находящихся в окружении зерен меньшей фракции. Контакт крупных зерен с соседними мелкими реализуется по перемычкам средней длиной 2 мкм. Размеры пор и их число в керамике уменьшаются, в результате чего объем порового пространства становится меньше в 2 раза, чем в предыдущем случае.

Крупнозернистую структуру Al_2O_3 -керамики, спеченной при $T = 1700$ °С, формируют плотноупакованные многогранные зерна, которые по размерам можно разделить на три группы. К первой группе отнесены зерна размерами до 8 мкм, ко второй — до 15 мкм, к третьей — более 15 мкм. Структура керамики имеет достаточно упорядоченный вид — вокруг крупных зерен располагаются зерна среднего размера, между которыми размещаются мелкие зерна. Грани крупных и средних зерен создают бездефектные межзеренные границы, а мелкие зерна контактируют с более крупными по перемычке длиной до 3 мкм. На межзеренных границах выявлены немногочисленные поры диаметром до 0,5 мкм, что позволило оценить объем порового пространства в структуре керамики, спеченной при $T = 1700$ °С, в 2–3 %.

Влияние температуры на структуру Al_2O_3 -керамики, спеченной при высоких значениях P и τ ($P = 120$ МПа и $\tau = 2,5$ мин), проявляется в меньшей степени — главным образом, в некотором увеличении среднего размера зерен, умень-

шении числа мелких зерен и сокращении объема порового пространства. При спекании керамики при наиболее интенсивном режиме ($T = 1700$ °С, $P = 120$ МПа, $V = 100$ град/мин и $\tau = 3$ мин) формируется высокоплотная структура, состоящая из зерен размерами более 20 мкм. Выявленная взаимосвязь T со структурой Al_2O_3 -керамики позволяет определить диапазон от 1400 до 1540 °С для дальнейшего поиска оптимальной температуры при ИПС.

Из рис. 2 видно, что с увеличением P структура образцов Al_2O_3 -керамики становится более равномерной за счет уменьшения числа крупных зерен и пор. Структуру керамики, спеченной при $P = 90$ МПа, формируют зерна размерами до 3 мкм (60 % объема), которые окружают более крупные зерна размерами до 10 мкм (40 % объема). Большинство мелких зерен имеет вытянутую и скругленную форму, а крупных зерен — форму неправильных многогранников. Зерна плотно упакованы, средняя длина перемычек между мелкими зернами составляет 2 мкм. При $P = 100$ МПа неравномерность в размерах зерен проявляется в меньшей степени. Основную долю (70 %) в структуре образца занимают зерна размерами до 4 мкм, которые дополняются зернами в форме многогранника размерами до 7 мкм (30 %). При этом контакт между соседними зернами происходит как по их граням, так и по перемычкам длиной до 4 мкм. Увеличение P до 120 МПа при спекании приводит к формированию стабильной плотной структуры керамики, сформированной преимущественно зернами размерами 2–5 мкм. На межзеренных границах имеются единичные поры размерами до 0,3 мкм. Результаты этой серии экспериментов позволяют рекомендовать снижение T Al_2O_3 -керамики при увеличении P при ИПС.

Из рис. 3 видно, что увеличение τ приводит к многократному росту зерен Al_2O_3 -керамики. При спекании с $\tau = 2$ мин структура керамики образована совокупностью многогранных несколько сглаженных зерен размерами до 5 мкм и более округлых зерен размерами до 2 мкм. Эти зерна плотно прилегают друг к другу по граням, формируя бездефектные межзеренные границы. С повышением τ до 2,5 мин большое число зерен приобретают вытянутую форму размерами до 5 мкм в поперечном и до 10 мкм в продольном направлении. На межзеренных границах и гранях крупных зерен имеются единичные поры размерами 0,1–1,0 мкм. При спекании с $\tau = 3$ мин размер зерен значительно увеличивается; их средний размер превышает 20 мкм. На гранях этих зерен, имеющих форму неправильного многогранника, имеются многочисленные группы внутриверенных пор. Большинство близлежащих зерен имеют плотные бездефектные межзеренные границы (поры отсутствуют). Выявленная взаимосвязь τ со структурой Al_2O_3 -

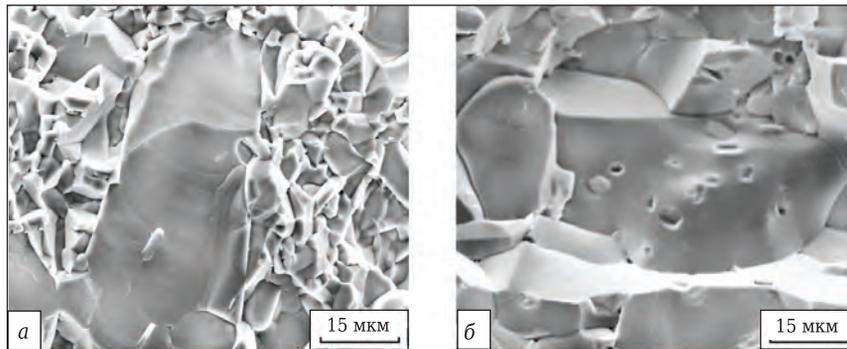


Рис. 4. Характерные особенности структуры Al_2O_3 -керамики после ИПС в виде anomalно крупного зерна (а) и группы внутризеренных пор (б)

керамики позволяет рекомендовать диапазон τ от 1 до 2,5 мин для дальнейшего поиска оптимального τ при ИПС заготовок для мелкокоразмерных концевых фрез.

В структуре Al_2O_3 -керамики (рис. 4) выявлены две характерные особенности, наблюдающиеся практически при всех режимах ИПС, — anomalно крупные зерна и внутризеренные поры. Anomalно крупные зерна, растущие при спекании значительно быстрее остальных до размера, в несколько раз превышающего средний размер зерен, имеют, как правило, форму вытянутого многогранника и хаотично располагаются среди зерен меньшего размера. В качестве примера на рис. 4, а показана структура керамики, спеченной при $T = 1700\text{ }^\circ\text{C}$, $P = 80\text{ МПа}$, $V = 100\text{ град/мин}$ и $\tau = 1\text{ мин}$. Видно, что зерно размерами более 60 мкм в продольном направлении и 20 мкм в поперечном направлении плотно упаковано зернами размерами 8–15 мкм, причем на межзеренных границах крупное зерно – мелкие зерна имеют щелеобразные полости и большое число мелких вытянутых зерен размерами в поперечном сечении до 1 мкм. Число и размеры anomalно крупных зерен зависят от режима ИПС.

Группа внутризеренных пор, образовавшихся при ИПС при $T = 1700\text{ }^\circ\text{C}$, $P = 80\text{ МПа}$, $V = 100\text{ град/мин}$ и $\tau = 3\text{ мин}$, показана на рис. 4, б. Эта совокупность замкнутых пор округлой формы, образовавшихся во внутреннем объеме крупного зерна при росте, становится видной на изломах

образцов. Эти поры, первоначально расположенные на межзеренных границах, не успевают выйти на поверхность интенсивно растущих зерен при ИПС. В этом случае поры остаются в зерне и их удаление существенно затрудняется.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В результате экспериментальных исследований выявлены закономерности влияния параметров режима ИПС на структуру Al_2O_3 -керамики, не содержащей активирующих добавок. Установлено, что с повышением T от 1400 до 1700 $^\circ\text{C}$ увеличивается размер зерен, изменяется их форма и уменьшается пористость керамики, причем степень этого влияния зависит от P и τ , при которых реализуется ИПС. С увеличением P в диапазоне 90–120 МПа структура образцов Al_2O_3 -керамики становится более равномерной за счет уменьшения числа крупных зерен и пор. Увеличение τ от 1 до 3 мин приводит к многократному росту зерен. Выявленные взаимосвязи T , P и τ со структурой Al_2O_3 -керамики позволили определить направление дальнейшего поиска оптимальных параметров режима ИПС и являются базой при создании технологических рекомендаций по спеканию заготовок для мелкокоразмерных концевых фрез.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект № 18-19-00599).

Библиографический список

1. Кузин, В. В. Исследование процесса высокоскоростного резания керамическими инструментами / В. В. Кузин // Вестник машиностроения. — 2004. — № 3. — С. 47–51.
Kuzin V. V. Study of high-speed cutting with ceramic tools / V. V. Kuzin // Russian Engineering Research. — 2004. — Vol. 24, № 3. — P. 40–46.
2. Волосова, М. А. Закономерности изнашивания режущих пластин из оксидной и нитридной керамики / М. А. Волосова, В. В. Кузин // Металловедение и термическая обработка. — 2012. — № 1. — С. 40–46.
Volosova, M. A. Regular features of wear of cutting plates from oxide and nitride ceramics / M. A. Volosova,

- V. V. Kuzin // Metal Sci. Heat Treat. — 2012. — Vol. 54, № 1/2. — P. 41–46.
3. Кузин, В. В. Повышение эксплуатационной стабильности режущих инструментов из нитридной керамики за счет оптимизации условий их заточки / В. В. Кузин // Вестник машиностроения. — 2003. — № 12. — С. 41–45.
Kuzin, V. V. Increasing the operational stability of nitride-ceramic cutters by optimizing their grinding conditions / V. V. Kuzin // Russian Engineering Research. — 2003. — Vol. 23, № 12. — P. 32–36.
4. Григорьев, С. Н. Влияние силовых нагрузок на напряженно-деформированное состояние режущих

пластин из оксидной керамики / С. Н. Григорьев, В. В. Кузин, Д. Буртон [и др.] // Вестник машиностроения. — 2012. — № 1. — С. 67–71.

Grigor'ev, S. N. Influence of loads on the stress-strain state of aluminum-oxide ceramic cutting plates / S. N. Grigor'ev, V. V. Kuzin, M. N. Morgan, A. D. Batako // Russian Engineering Research. — 2012. — Vol. 32, № 1. — P. 61–67.

5. **Григорьев, С. Н.** Влияние тепловых нагрузок на напряженно-деформированное состояние режущих пластин из керамики на основе оксида алюминия / С. Н. Григорьев, В. В. Кузин, Д. Буртон [и др.] // Вестник машиностроения. — 2012. — № 5. — С. 68–71.

Grigor'ev, S. N. Influence of thermal loads on the stress-strain state of aluminum-oxide ceramic cutting plates / S. N. Grigor'ev, V. V. Kuzin, M. N. Morgan, A. D. Batako // Russian Engineering Research. — 2012. — Vol. 32, № 5. — P. 473–477.

6. **Tokita, M.** Development of advanced spark plasma sintering (SPS) systems and its applications / M. Tokita // Ceram. Trans. — 2006. — Vol. 194. — P. 51–60.

7. **Папынов, Е. К.** Технология искрового плазменного спекания как перспективное решение для создания функциональных наноструктурированных керамик / Е. К. Папынов, О. О. Шичалин, В. Ю. Майоров [и др.] // Вестник ДВО РАН. Перспективные материалы и методы. — 2016. — № 6. — С. 15–30.

8. **Munir, Z. A.** Electric current activation of sintering: a review of the pulsed electric current sintering process / Z. A. Munir, D. V. Quach, M. Ohyanagi // J. Am. Ceram. Soc. — 2011. — Vol. 94. — P. 1–19.

9. **Болдин, М. С.** Композиционные керамики на основе оксида алюминия, полученные методом электроимпульсного плазменного спекания для трибологических применений / М. С. Болдин, Н. В. Сахаров, С. В. Шотин [и др.] // Вестник Нижегородского университета им. Н. И. Лобачевского. — 2012. — № 6. — С. 32–37.

10. **Munir, Z. A.** The effect of electric plasma sintering method / Z. A. Munir, U. Anselmi-Tamburini, M. Ohyanagi // J. Mater. Sci. — 2006. — Vol. 41. — P. 763–777.

11. **Tokita, M.** The potential of spark plasma sintering (SPS) method for the fabrication on an industrial scale of functionally graded materials / M. Tokita // Adv. Sci. Technol. — 2010. — Vol. 63. — P. 322–331.

12. **Сорокин, О. Ю.** Метод гибридного искрового плазменного спекания: принцип, возможности, перспективы применения / О. Ю. Сорокин, С. С. Солнцев, С. А. Евдокимов [и др.] // Авиационные материалы и технологии. — 2014. — № S6. — С. 11–16.

13. **Shen, Zhijian.** Spark plasma sintering of alumina / Zhijian Shen, Mats Johnsson, Zhe Zhao [et al.] // J. Am. Ceram. Soc. — 2002. — Vol. 85. — P. 1921–1927.

14. **Анусимов, А. Г.** Исследование возможности электроимпульсного спекания наноструктурных порошковых материалов / А. Г. Анусимов, В. И. Мали // Физика горения и взрыва. — 2010. — № 2. — С. 135–139.

15. **Álvarez, I.** Microstructural design of Al₂O₃-SiC nanocomposites by spark plasma sintering / I. Álvarez, R.

Torrecillas, W. Solisand [et al.] // Ceram. Int. — 2016. — Vol. 42. — P. 17248–17253.

16. **Chae, Jae Hong.** Microstructural evolution of Al₂O₃-SiC nanocomposites during spark plasma sintering / Jae Hong Chae, Kyung Hun Kim, Yong Ho Choa [et al.] // J. Alloys Compd. — 2006. — Vol. 413. — P. 259–264.

17. **Gutiérrez-González, C.** Effect of TiC addition on the mechanical behaviour of Al₂O₃-SiC whiskers composites obtained by SPS / C. F. Gutiérrez-González, M. Suarez, S. Pozhidaev [et al.] // J. Eur. Ceram. Soc. — 2016. — Vol. 36. — P. 2149–2152.

18. **Алварез, Э.** Свойства нанокompозитных материалов на основе оксидной керамики, полученных искроплазменным методом / Э. Алварез, К. Гутьеррес, Р. Торресильяс [и др.] // Перспективные материалы. — 2014. — № 4. — С. 43–50.

19. **Чувильдеев, В. Н.** Сравнительное исследование горячего прессования и искрового плазменного спекания порошков Al₂O₃-ZrO₂-Ti (C, N) / В. Н. Чувильдеев, М. С. Болдин, Я. Г. Дятлова [и др.] // Неорганические материалы. — 2015. — № 10. — С. 1128–1134.

20. **Tamura, Yoshihiro.** Grain-boundary diffusion coefficient in α -Al₂O₃ from spark plasma sintering tests / Yoshihiro Tamura, Eugenio Zapata-Solvas, Bibi Malmal Moshtaghioun [et al.] // Ceram. Int. — 2018. — Vol. 44. — P. 19044–19048.

21. **Wang, C.** Microstructure homogeneity control in spark plasma sintering of Al₂O₃ ceramics / Cao Wang, Xin Wang, Zhe Zhao // J. Eur. Ceram. Soc. — 2011. — Vol. 31. — P. 231–235.

22. **Петрова, Е. В.** Синтез наноструктурированного материала на основе оксида алюминия с помощью искрового плазменного спекания / Е. В. Петрова, А. Ф. Дресвянников, В. Н. Доронин // Вестник Казанского технологического университета. — 2011. — № 11. — С. 256–259.

23. **Shapiro, I. P.** Effects of Y₂O₃ additives and powder purity on the densification and grain boundary composition of Al₂O₃/SiC nanocomposites / I. P. Shapiro, R. I. Todd, J. M. Titchmarsh [et al.] // J. Eur. Ceram. Soc. — 2009. — Vol. 29. — P. 1613–1624.

24. **Töldsepp, E.** Spark plasma sintering of ultra-porous γ -Al₂O₃ / E. Töldsepp, F. Schoenstein, M. Amara [et al.] // Ceram. Int. — 2016. — Vol. 42. — P. 11709–11715.

25. **Liu, Jinling.** Grain refining in spark plasma sintering Al₂O₃ ceramics / Jinling Liu, Yiguang Wang, Fuqian Yang [et al.] // J. Alloys Compd. — 2015. — Vol. 622. — P. 596–600.

26. **Wang, S. W.** Formation of Al₂O₃ grains with different sizes and morphologies during the pulse electric current sintering process / S. W. Wang, L. D. Chen, T. Hirai [et al.] // Mater. Res. — 2001. — Vol. 16. — P. 3514–3517. ■

Получено 07.10.18

© В. В. Кузин, С. Н. Григорьев, С. Ю. Фёдоров, М. А. Волосова, Н. В. Солис Пинарготе, 2018 г.