УДК 621.922.079

Р. С. Шмегера, Я. О. Подоба, В. І. Кущ*, А. С. Бєляєв (м. Київ) *vkushch@bigmir.net

Вплив контактної теплопровідності міжфазної границі алмаз–металічна зв'язка на теплопровідність алмазовмісних композитів

Досліджено вплив контактної теплопровідності міжфазної границі алмаз-металічна зв'язка на теплопровідність алмазовмісних композитів з дво- і трикомпонентною металічними зв'язками на основі нікелю. Розроблено установку та методику вимірювання залежності коефіцієнта теплопровідності зв'язок та композитів на їх основі від складу (зокрема, наявності карбідоутворюючих добавок) і структури, проведено дослідження такої залежності. Запропоновано теоретичну модель теплопровідності композита, яка забезпечує врахування реальної форми кристала алмазу та контактної теплопровідності його граней. Одержана шляхом розв'язання оберненої задачі оцінка контактної теплопровідності міжфазної границі задовільно узгоджується з відомими в літературі даними прямих фізичних досліджень та аналогічними оцінками для композитів на алюмінієвій та мідній зв'язках. Результати моделювання свідчать про значний вплив контактного опору на температурний режим роботи алмазного інструменту.

Ключові слова: алмаз, металічна зв'язка, композиційний алмазовмісний матеріал, міжфазна границя, тепловий опір, модель, ефективна теплопровідність.

вступ

Теплопровідність належить до основних фізико-механічних властивостей твердих тіл. Для матеріалів, практичне застосування яких пов'язане з теплопереносом (чи навпаки, теплозахистом), ця величина є також важливою експлуатаційною характеристикою. До таких належать і матеріали інструментального призначення, від їх здатності відводити тепло з робочої зони значною мірою залежить ефективність роботи інструменту. Характерним представником цих матеріалів є композиційний алмазовмісний матеріал (КАМ) на металічній зв'язці для бурового та каменеобробного інструменту, який працює в екстремальних умовах термосилового навантаження. Алмаз, що входить до складу композита, має найвищу (до 2000 Вт/(м·К)) серед відомих матеріалів теплопровідність і забезпечує, за умови належного теплового контакту з матеріалом зв'язки, кратне підвищення теплопровідності КАМ у порівнянні зі зв'язкою. Це підтверджують публікації останнього часу (наприклад, [1-4]) присвячені проблемі створення і використання алмазовмісних композитів у якості теплостоків. Наприклад, КАМ на основі міді за відсутності адгезійного і хімічного зв'язку фаз має теплопровідність 170-200 Вт/(м·К) [3], що вдвічі менше теплопровідності чистої міді. Іншими сло-

© Р. С. ШМЕГЕРА, Я. О. ПОДОБА, В. І. КУЩ, А. С. БЄЛЯЄВ, 2015

ISSN 0203-3119. Сверхтвердые материалы, 2015, № 4

вами, у такому разі високопровідний наповнювач – алмаз мало відрізняється від непровідної пори. Коли ж вдається забезпечити надійний контакт фаз шляхом формування перехідної карбідної зони, ефективна теплопровідність композита мідь–алмаз сягає 700 Вт/(м·К) і вище [3], тобто алмаз бере активну участь у теплопередачі. Ґрунтовний огляд робіт по теплопровідності алмазовмісних композитів виконано в [5].

Відомо, що тепловий опір контакту різнорідних матеріалів, незалежно від його природи (механічної, адгезійної чи хімічної), завжди є скінченим. Детальний огляд основних теоретичних і дослідних робіт по контактному теплообміну за останні 40 років подано в [6], де зазначено що максимальний контактний опір має місце у випадку суто механічного контакту, а мінімальний (втім, ненульовий) – при зварюванні, пайці чи напиленні шару одного матеріалу на інший. Загальновживаною мірою теплового опору є контактна теплопровідність h_{κ} , визначена співвідношенням $q_n = -h_{\kappa}\Delta T$, де q_n – нормальна до поверхні розділу фаз складова теплового потоку, а ΔT – перепад температури в контакті. Розмірність h_{κ} [Вт/(м²·K)] зумовлює залежність теплопровідності композита від розміру включень. Вказаний розмірний ефект має дослідне підтвердження, зокрема для КАМ (наприклад, [7, 8]).

Дослідження контактної теплопровідності метал–діелектрик (в тому числі з ізотопічно чистим алмазом 99,95 (за масою) % C^{12}) проведено в [9, 10]. Для цього на ретельно очищену поверхню кристалів напиленням у вакуумі наносили металічну плівку. Одержані [9] з використанням високоточної оптичної методики значення h_{κ} (з похибкою 10 %) для ряду металів при кімнатній температурі наведено в таблиці. В дужках для кожного матеріалу наведено температуру Дебая. Згідно акустичної моделі (наприклад, [11]) їх різниця є основним чинником контактного теплового опору.

Кристал	Метал			
	Pb (102 K)	AU (165 K)	AI (423 K)	Ti (426 K)
BaFq (287 K)	6.2 10 ⁷	4,0 10 ⁷	1,0 108	-
Сапфір (1024 К)	5.5 10 ⁷	4,5 10 ⁷	$1,1 \ 10^8$	$1,1 \ 10^8$
Алмаз (2240 К)	3.1 10 ⁷	4,0 10 ⁷	4,6 10 ⁷	$1,0\ 10^8$

Дослідні значення контактної теплопровідності метал-діелектрик [9]

Значення h_{κ} такого ж порядку – як правило, в межах 5·10⁶–2·10⁸ Вт/(м²·К) – наведено в [1, 12, 13] та ряді інших публікацій щодо впливу адгезійноактивних та карбідоутворюючих добавок до матеріалу зв'язки на ефективну теплопровідність КАМ. У разі механічного контакту h_{κ} значно нижча, порядку 10⁴–10⁵ Вт/(м²·К) [6]. На теплопровідність КАМ впливає і ряд інших факторів, зокрема уже згаданий вище розмір включень [7, 8], різна адгезійна здатність окремих граней алмазу [3], спосіб їх попередньої обробки [14] і, безумовно, технологія виготовлення композита [1, 5].

Для КАМ інструментального призначення надійний адгезійний/хімічний зв'язок алмазу з матрицею має особливо важливе значення з огляду на те, що саме він визначає надійність алмазоутримання при роботі інструмента, а отже, його працездатність. Відсутність такого зв'язку не тільки погіршує температурний режим роботи алмазного зерна, але і призводить до його передчасної втрати внаслідок випадання з поверхневого (робочого) шару композита. Має місце пряма взаємозалежність ступеню теплового і механічного контакту фаз [8, 15], оскільки обидва визначаються одними і тими ж фізикохімічними процесами на міжфазній границі. Ця обставина є ключовою у використанні теплопровідності як критерію якості в запропонованій в [16, 17] методиці неруйнівної експрес-діагностики спечених зразків КАМ. Дана робота, крім іншого, є наступним кроком до практичної реалізації згаданої методики.

ПРИСТРІЙ І МЕТОДИКА ВИМІРЮВАННЯ ТЕПЛОПРОВІДНОСТІ

Для вимірювання коефіцієнта теплопровідності зразків КАМ розроблено комп'ютеризовану установку, загальний вигляд та схема якої показані на рис. 1. Для вимірювань використано метод еталону, в процесі вимірювання застосовано два еталони – холодний та гарячий. В якості еталона використано армко залізо, коефіцієнт теплопровідності якого складає 60 Вт/(м·К). Холодний еталон контактує з охолоджувачем, яким є масивний мідний циліндр. Гарячий еталон знаходиться в контакті з джерелом тепла потужністю 30 Вт. Для мінімізації контактного опору на всі поверхні еталонів та зразка нанесено спеціальний термоінтерфейс (металевий сплав), який при нормальних умовах знаходиться у рідкому стані і змочує контактні поверхні. Коефіцієнт теплопровідності термоінтерфейсу складає 80 Вт/(м·К).



Рис. 1. Загальний вигляд пристрою та схема вимірювання: *1* – нагрівач; *2* – гарячий еталон; *3* – зразок; *4* – холодний еталон; *5* – холодильник.

Системою комп'ютерного моніторингу в режимі реального часу фіксуються покази чотирьох термопар. Перша термопара розташована в тонкому пазі на верхній поверхні гарячого еталона безпосередньо під нагрівачем, друга – в тонкому пазі на нижній поверхні гарячого еталону. Середнє арифметичне значення показів першої та другої термопари є температура гарячого еталона. Третя та четверта термопари розташовані відповідно в пазах на верхній та нижній поверхнях холодного еталона. Як і у попередньому випадку, середнє арифметичне їх показів є температурою холодного еталону. Середнє значення показів другої та третьої термопари визначає температуру зразка. Таким чином, для визначення коефіцієнта теплопровідності використано чотири термопари та два еталони. При визначенні теплопровідності зразків температура нагрівача не перевищувала 30 °C, різниця середніх температур на еталонах та зразку складала близько 6 °C.

Формула для коефіцієнта теплопровідності K_x зразка висотою h_x і площею поперечного перерізу S_x враховує наявність обох еталонів і покази термопар T_i :

$$K_{x} = \frac{K_{\text{er}}S_{\text{er}}h_{x}}{2S_{x}(T_{2}-T_{3})} \left(\frac{T_{1}-T_{2}}{h_{\text{rap}}} - \frac{T_{3}-T_{4}}{h_{\text{xon}}}\right),$$
(1)

де h_{rap} і h_{xon} – висота відповідно гарячого і холодного еталонів; S_{er} – площа їх поперечного перерізу; K_{er} – коефіцієнт теплопровідності матеріалу еталона. Вимірювання відбувається після виходу вимірювальної системи на стаціонарний режим, значення коефіцієнта теплопровідності зразка усереднюється за чотирма дослідами. При тестуванні установки та методики на еталонних зразках з відомим коефіцієнтом теплопровідності відносна похибка вимірювань не перевищувала 5 %.

ДОСЛІДНІ ДАНІ ПО ТЕПЛОПРОВІДНОСТІ МЕТАЛІЧНИХ ЗВ'ЯЗОК І КАМ НА ЇХ ОСНОВІ

Склад, спосіб одержання та структура зразків

В даному дослідженні методом інтенсивного електроспікання [18, 19] виготовлено зразки КАМ циліндричної форми (діаметром 9 мм і висотою 10 мм) з багатокомпонентною металічною зв'язкою на основі нікелю. Детально досліджено дві зв'язки, а саме Ni-Sn і Ni-Cu-Sn. У першому випадку вміст олова варіювався від 2 до 16 % (за масою), у другому при фіксованому вмісті олова 10 % (за масою) зміст міді зростав від 10 до 40 % (за масою). Для виготовлення зразків використано порошки нікелю ПНЕ-1, олова ПО-1, міді ПМС-1 та синтетичні алмази типу Іb АСТ200 400/315. Вихідні металеві порошки змішували в барабанному млині у присутності куль з твердого сплаву ВК6 в режимі сухого розмелювання протягом 8 годин. Брикети суміші вагою 4 г формували методом двобічного холодного пресування в закритій сталевий прес-формі під тиском 300 МПа. Пористість брикетів становила 40 %. Інтенсивне електроспікання зразків здійснювали шляхом прямого пропускання струму промислової частоти щільністю до 25 А/мм² через зразок при одночасному прикладанні до нього тиску 150 МПа. Тривалість спікання зразків складала 12-15 с, при цьому температура спікання не перевищувала 850 °С, що забезпечує збереження вихідної якості алмазів у складі КАМ.

Дослідження структури зв'язки методом скануючої електронної мікроскопії, виконане в центрі колективного користування НАН України, показало [19], що її структура є однорідною і практично безпористою. Згідно фазової діаграми двокомпонентної системи Ni–Sn [20], в ході електроспікання слід очікувати послідовного утворення інтерметалідів у такому порядку (наприклад, [21]):

$$Ni + Sn \rightarrow Ni_3Sn_4 \rightarrow Ni_3Sn_2 \rightarrow Ni_3Sn.$$
⁽²⁾

Аналіз елементного складу показав, що армуюча фаза практично повністю складається з інтерметаліду Ni₃Sn. Це вказує на завершеність, попри короткий час електроспікання, хімічної реакції (2). Структура зв'язки, одержаної інтенсивним електроспіканням трикомпонентної системи Ni–Sn–Cu, є більш складною. Крім нікелю, вона містить ряд потрійних інтерметалідів (переважно Ni_{3-x}Cu_xSn) та незначну долю твердого розчину Ni–Cu. Для дослідження впливу карбідоутворюючих добавок на теплопровідність КАМ було також виготовлено ряд зразків з попередньо нанесеним на поверхню алмазів порошком хрому. Аналіз поверхні злому охолодженого до температури рідкого азоту зразка КАМ вказує на ймовірне утворення в результаті спікання на поверхні алмазних часток (переважно на гранях {100}) карбідної фази, наявність якої забезпечує кращий тепловий контакт на міжфазній границі алмаз– зв'язка. Аналогічні дані щодо взаємодії різних граней алмазу з металічними зв'язками наведено в [1–3, 12–15].

Теплопровідність зв'язок

На рис. 2 світлими кружками показано виміряні за описаною вище методикою значення коефіцієнта теплопровідності $K_{\rm M}$ двокомпонентної зв'язки, яка складається з нікелю та інтерметаліду Ni₃Sn. Об'ємний вміст останнього в матеріалі зв'язки в 2,5 рази перевищує вміст олова у вихідній суміші: так, 40 % (за масою) олова відповідає чистому інтерметаліду. Слід зазначити, що дані по теплопровідності Ni₃Sn в літературі відсутні. Апроксимація дослідних даних формулою Максвела (суцільна крива) прогнозує теплопровідність Ni₃Sn ~ 10 Вт/(м·К). Для порівняння, теплопровідність інтерметаліду Ni₃Sn₄ складає 19,6 Вт/(м·К) [22].



Рис. 2. Залежність теплопровідності двокомпонентної зв'язки Ni–Sn від вмісту олова: дослідні дані (О), апроксимація формулою Максвела (—).

Трикомпонентна зв'язка складається з нікелю, його інтерметалідів з оловом, міддю, потрійних інтерметілідів та незначної кількості твердого розчину Ni–Cu. Дослідні значення її коефіцієнта теплопровідності показано на рис. 3 світлими кружками, суцільна лінія – їх лінійна апроксимація. Як і у попередньому випадку, збільшення вмісту міді в порошковій суміші (а отже, інтерметалідів у зв'язці) зменшує її теплопровідність, попри високу теплопровідність чистої міді.

Теплопровідність КАМ

На рис. 4 подано дослідні значення нормалізованої теплопровідності $K_{e\phi}/K_{M}$ КАМ на основі двокомпонентної зв'язки Ni + 15 % (за об'ємом) Ni₃Sn (композит A) та тієї ж зв'язки з нанесенням порошку хрому на поверхню алмазних кристалів (композит B). Попри певний розкид даних, зумовлений технологічними чинниками та похибкою вимірювання, має місце систематичне перевищення (від 15 до 25 %) теплопровідності композита B над A. Оскільки єдиною відмінністю композита B від A є модифікація міжфазної повер-

хні, то цей факт свідчить про покращення теплового контакту фаз за рахунок ймовірного карбідоутворення на міжфазній границі алмаз–звя'зка, цілком узгоджуючись з відомими в літературі даними [1–4, 9, 10].



Рис. 3. Залежність теплопровідності трикомпонентної зв'язки Ni–Cu–Sn від вмісту міді: дослідні дані (O), апроксимація формулою Максвела (—).



Рис. 4. Залежність теплопровідності КАМ від вмісту алмазів: композит A (Ni + Sn + алмаз) (\ominus), композит B (Ni + Sn + Cr + алмаз) (\ddagger); апроксимація формулою Максвела для композита A (I) і B (2).

ТЕОРЕТИЧНА МОДЕЛЬ ТЕПЛОПРОВІДНОСТІ КАМ З НЕДОСКОНАЛИМ КОНТАКТОМ ФАЗ

Модель Хасельмана-Джонсона

В [23] одержано оцінку ефективної теплопровідності $K_{e\phi}$ композита, який складається з неперервної зв'язки теплопровідністю K_{M} і сферичних включень радіусом R і теплопровідністю K_{a} . Для об'ємного вмісту включень с і контактної теплопровідності h_{κ}

www.ism.kiev.ua/stm

$$K_{e\phi} = K_{M} \frac{2c(K_{r} - K_{b} - 1) + K_{r} + 2K_{b} + 2}{c(1 - K_{r} + K_{b}) + K_{r} + 2K_{b} + 2},$$
(3)

де $K_r = K_a / K_M$ і $K_b = K_a / (h_k R)$. Ця формула використовується у більшості згаданих вище публікацій по теплопровідності алмазовмісних композитів. Що важливо, дана модель прогнозує залежність теплопровідності композита від розміру часток дискретної фази. Цей розмірний ефект є наслідком того, що зі зменшенням розміру включень зростає питома площа міжфазної поверхні, а отже, і її вклад в сумарний опір тепловому потоку через композит. Формула (3) дає кількісну оцінку такого впливу.

На рис. 5 показано типові залежності нормованої ефективної теплопровідності $K_{e\phi}/K_{M}$ КАМ з об'ємним вмістом алмазів c = 0,3 для різних значень контактної теплопровідності. Прийнята в подальших розрахунках теплопровідність алмазів $K_a = 1200$ Вт/(м·К) є типовою для синтетичних алмазів типу *Ib* [24], теплопровідність зв'язки Ni + 15 % (за об'ємом) Ni₃Sn $K_{M} = 50$ Вт/(м·К) (див. рис. 3, апроксимаційна крива). Цілком очікувано, для двох крайніх випадків, $h_{\kappa} = \infty$ (досконалий контакт, лінія 3) і $h_{\kappa} = 0$ (непровідний контакт, лінія 4) теплопровідність композита не залежить від розміру включення. В той же час, для типових в КАМ значень $h_{\kappa} = 5 \cdot 10^{6}$ Вт/(м²·K) і $h_{\kappa} = 5 \cdot 10^{7}$ Вт/(м²·K) розмірний ефект є суттєвим, причому саме для тих зернистостей алмазного порошку, які широко використовуються в алмазному інструменті.



Рис. 5. Залежність ефективної теплопровідності КАМ від розміру включень (модель Хасельмана-Джонсона): $h_{\kappa} = 5 \cdot 10^7 (I)$, $5 \cdot 10^6 (2)$ Вт/(м²·K); $h_{\kappa} = \infty$ (ідеальний контакт) (3), $h_{\kappa} = 0$ (відсутність контакту) (4).

Як показують розрахунки, вплив контактного опору є незначним для композита, армованого алмазними кристалами розміром 400 мм і більше. Навпаки, алмазні частки розміром порядку 1 мкм і менше роблять композит менш теплопровідним, ніж зв'язка. В діапазоні 1 < R < 400 мкм вплив розміру часток і контактної теплопровідності є суттєвим і має враховуватись при прогнозуванні ефективної теплопровідності КАМ.

Формулу (3) можна використати для оцінки контактної теплопровідності h_{κ} КАМ шляхом апроксимації поданих на рис. 4 дослідних даних за критері-

ISSN 0203-3119. Сверхтвердые материалы, 2015, № 4

єм найменшого середньоквадратичного відхилення. Еквівалентний радіус R кристалів алмазного порошку зернистістю 400/315 складає 180 мкм, $K_r = 1200/50 = 40$. Визначений з умови найкращого наближення формулою Хассельмана-Джонсона параметр $h_{\rm K} = 4,3\cdot10^6$ Bt/(${\rm M}^2\cdot{\rm K}$) для композита A зі зв'язкою Ni–Sn і $h_{\rm K} = 1,6\cdot10^7$ Bt/(${\rm M}^2\cdot{\rm K}$) при нанесенні хрому на поверхню кристалів алмазу (композит B) (див. рис. 4). Одержані значення за абсолютною величиною близькі до відомих в літературі аналогічних даних для інших систем. В контексті даного дослідження важливим є факт чотирикратного підвищення контактної теплопровідності міжфазної границі за наявності там хрому.

Чисельна модель

Використання формули Хасельмана-Джонсона (3) для оцінки теплопровідності композитів з недосконалим контактом фаз є зручним з огляду на її простоту, і у ряді випадків цей вибір є виправданим. В той же час, формула (3) має ряд недоліків. Будучи модифікацією формули Максвела, вона не враховує взаємодію включень, тому сфера її застосування обмежена композитами з малим об'ємним вмістом дисперсної фази. Її використання в контексті даної роботи не є цілком коректним також з огляду на те, що форма алмазних частинок відрізняється від сферичної і, що найбільш важливо, контактний опір на гранях {100} і {111} алмазного кристалу є суттєво різним. Для врахування цих факторів запропоновано ряд моделей, які базуються на кубооктаедричній моделі алмазного включення (наприклад, [2, 7]), однак використання у вказаних роботах наближених методів аналізу зводить нанівець уточнену постановку модельної задачі і не дозволяє говорити про їх адекватність.

В даній роботі кубооктаедричну модель алмазного включення використано в рамках методу регуляризації [25]. Конкретно, реальний КАМ моделюється періодичною структурою, елементарна комірка якої містить одне включення кубооктаедричної форми (рис. 6). Співвідношення розмірів комірки і включення визначаються об'ємним вмістом *с* алмазів, а геометрія включень – переважною формою (габітусом) алмазного порошку, використаного при виготовленні даного композита. На протилежних гранях комірки, як зазвичай, задаються умови періодичності теплового потоку [25], а на міжфазних границях алмаз–зв'язка – умови недосконалого теплового контакту

$$\mathbf{q}_{\mathrm{M}}\mathbf{n} = \mathbf{q}_{\mathrm{a}}\mathbf{n} = h_{\mathrm{K}}(T_{\mathrm{a}} - T_{\mathrm{M}}), \qquad (4)$$

де T_a і T_m – граничні температури в алмазі і матриці відповідно, а h_κ приймає різні значення на гранях {100} і {111}. Вибір теплопровідності зв'язки K_m і включень K_a завершує постановку задачі. Ефективна теплопровідність композита визначається співвідношенням $\langle \mathbf{q} \rangle = -K_{e\phi} \langle \nabla T \rangle$, де $\langle \nabla T \rangle$ – середній градієнт температури, а $\langle \mathbf{q} \rangle$ – середній тепловий потік. Останні визначаються формулами [26]

$$\langle \nabla T \rangle^{def} = \frac{1}{V} \int_{S} T \mathbf{n} \, \mathrm{d}s, \quad \langle \mathbf{q} \rangle^{def} = \frac{1}{V} \int_{S} (\mathbf{q} \mathbf{n}) \mathbf{x} \, \mathrm{d}s,$$
 (5)

де V – об'єм структурної комірки; S – її зовнішня поверхня; $\mathbf{x} = x_j \mathbf{i}_j$ – радіусвектор; $\mathbf{n} = n_j \mathbf{i}_j$ – вектор зовнішньої нормалі до S. Важливо зазначити, що формули (5), на відміну від загальновживаного об'ємного усереднення, є справедливими для композитів з недосконалим тепловим контактом фаз, які ми розглядаємо.

www.ism.kiev.ua/stm



Рис. 6. Елементарна структурна комірка КАМ.

Складність, з огляду на геометрію та контактні умови (4), модельної задачі зумовлює використання для її аналізу чисельного методу скінчених елементів. Вибір форми включень, яка може змінюватись від октаедра до куба, в моделі фіксується параметром $0 \le \alpha \le 1$ [2]. Для практичних розрахунків значення α треба вибирати як статистичне середнє по вибірці часток алмазного порошку, використаного для виготовлення композита. Ще одна проблема статистичного характеру пов'язана з вибором орієнтації включення по відношенню до граней комірки (в тому числі, взаємної орієнтації включень в кубічній гратці). Втім, як показує практика обчислень, навіть у випадку різної контактної теплопровідності граней {100} і {111} орієнтація включень практично не впливає на ефективну теплопровідність композита. Вказана орієнтаційна інваріантність, як і макроскопічна ізотропія теплопровідності модельного композита, зумовлені високою (кубічною) симетрією включення. В той же час, форма і розмір включень є суттєвими факторами.

Для ілюстрації впливу габітусу включень розглянемо композит з об'ємним вмістом алмазів c = 0,3 октаедричної ($\alpha = 0$), кубооктаедричної ($\alpha = 0,3$) та кубічної ($\alpha = 1$) форми, припускаючи що їх розмір визначається радіусом кулі еквівалентного об'єму. Для узгодженості з дослідними даними і попереднім аналізом приймаємо $K_r = K_a / K_m = 24$. Як уже вказували, в реальному композиті контактні теплопровідності граней {100} і {111} відрізняються на порядок: $h_{\kappa\{100\}} = 5,0\cdot10^7 \text{ Вт/(m}^2 \cdot \text{K}), h_{\kappa\{111\}} = 5,0\cdot10^6 \text{ Вт/(m}^2 \cdot \text{K}). Значення нормованої ефективної теплопровідності <math>K_{e\phi}/K_m$ для $h_{\kappa} = 5,0\cdot10^7 \text{ Вт/m}^2 \cdot \text{K}$ показано на рис. 7.

На рис. 7 видно, що теплопровідність композита є значно більшою для кубічних включень (крива 1), ніж октаедричних (крива 3). Як показують розрахунки, діапазон зміни є досить широким, що говорить про значний вплив габітусу алмазних кристалів і необхідність його врахування при прогнозуванні ефективної теплопровідності КАМ.

Дослідні значення нормованої теплопровідності $K_{e\phi}/K_{M}$ КАМ з об'ємним вмістом c = 0,3 алмазного порошку зернистістю 400/315 (рис. 4) дорівнюють 1,70 за відсутності і 1,95 – при наявності хрому. Поклавши R = 180 мкм, шляхом розв'язання оберненої задачі знаходимо, що вказані значення ефективної теплопровідності композита будуть досягнуті за умови, що контактна тепло-

ISSN 0203-3119. Сверхтвердые материалы, 2015, № 4

провідність міжфазної границі $h_{\kappa\{100\}} = h_{\kappa\{111\}} = 2,1\cdot10^6 \text{ Br/(m}^2 \cdot \text{K})$ у разі відсутності хімічної взаємодії алмазу зі зв'язкою. Розрахунок показує, що утворення карбідного прошарку на гранях {100} підвищує значення $h_{\kappa\{100\}}$ до 2,3·10⁷ Br/(m² \cdot \text{K}), тоді як $h_{\kappa\{111\}}$ залишається незмінним. Що характерно, це значення є вельми близьким до наведених в таблиці та публікаціях [1, 9, 10, 12, 13].



Рис. 7. Залежність ефективної теплопровідності КАМ від розміру і форми включень: $1 - кубічна (\alpha = 1); 2 - кубооктаедрична (\alpha = 0,3); 3 - октаедрична (\alpha = 0).$

ВПЛИВ КОНТАКТНОГО ТЕРМІЧНОГО ОПОРУ НА РЕЖИМ РОБОТИ АЛМАЗНОГО ЗЕРНА

Одержані в даній роботі результати мають певне практичне значення. Як одне з можливих застосувань вкажемо на запропоновану в [16, 17] експресметодику оцінки якості КАМ за тепло- та електропровідністю. Теплопровідність є вельми структурно-чутливою величиною, і відношення дослідного значення до розрахункового для бездефектного композита може слугувати показником якості композита. Розроблені комп'ютеризована система та спосіб вимірювання теплопровідності є вкладом в практичну реалізацію вказаної експрес-методики.

Як уже зазначалося, теплопровідність є також важливою експлуатаційною характеристикою КАМ, оскільки від здатності матеріалу відводити тепло з робочої зони значною мірою залежить ефективність інструменту. Зрозуміло, що на розсіяння теплової енергії, яка виділяється на "робочому" алмазному зерні, впливають як тепловий опір контакту алмаз–зв'язка, так і зумовлена ним ефективна теплопровідність композита. Для кількісної оцінки такого впливу розглянемо модельну задачу з геометрією, поданою на рис. 8. Для спрощення розглянуто осесиметричну задачу, де робоче алмазне зерно моделюється зрізаною сферою, а КАМ – однорідним матеріалом з теплопровідністю композита. На верхній (плоскій) поверхні алмазної частки задано постійний тепловий потік, на інших поверхнях робочого шару – теплообмін. Величина теплового потоку $q_n = pv$, де взято характерні для каменеобробки значення тиску p = 12 МПа і лінійної швидкості v = 2 м/с.



Рис. 8. Геометрія модельної задачі про нагрів робочого алмазного зерна.

Для розрахунків взято такі значення структурних параметрів: розмір (діаметр) алмазної частки 200 мкм, їх об'ємний вміст в КАМ c = 0,25, теплопровідність $K_a = 1600$ Вт/(м·К), питома густина (щільність) 3500 кг/м³, теплоємність 400 кДж/(кг·К). Теплопровідність зв'язки $K_{\rm M} = 50$ Вт/(м·К), її питома густина (щільність) складає 8800 кг/м³, а теплоємність – 500 кДж/(кг·К). Ефективну теплопровідність композита визначали з формули (3), питому вагу і теплоємність – за правилом суміші. Задачу розглядали в нестаціонарній постановці, в початковий момент часу t = 0 температура у всьому об'ємі однорідна і дорівнює 20 °С. Для t > 0 чисельний розв'язок задачі одержано методом скінчених елементів.

На рис. 9 наведено зміну з часом температури на робочій поверхні алмазного зерна для різних значень контактної теплопровідності h_{κ} . Як і в моделі Хасельмана-Джонсона, цей параметр взято постійним по всій поверхні контакту. Розрахункові дані свідчать, що для значень $h_{\kappa} = 5 \cdot 10^6 - 5 \cdot 10^7$ Вт/(м²·K), характерних для адгезійного/хімічного зв'язку, температура зерна є найнижчою і мало залежить від h_{κ} . Збільшення ж контактного опору до значень, характерних для механічного контакту ($5 \cdot 10^4 - 5 \cdot 10^5$ Вт/(м²·K)) призводить до значного росту температури, що негативним чином впливає на працездатність та стійкість алмазного інструменту.

ВИСНОВКИ

Результати дослідження впливу теплового опору міжфазної границі алмаз-металічна зв'язка теплопровідність на КАМ з дво- і трикомпонентною металічними зв'язками на основі нікелю дозволяють зробити наступні висновки.

Розроблена авторами установка та методика вимірювання забезпечують належну точність вимірювання коефіцієнта теплопровідності металічних зв'язок та КАМ на їх основі.



Рис. 9. Залежність температури робочої поверхні алмазного зерна від контактної теплопровідності: $h_{\kappa} = 5 \cdot 10^7 (1), 5 \cdot 10^6 (2), 5 \cdot 10^5 (3), 5 \cdot 10^4 (4)$ Вт/(м²·K).

Одержані дослідні дані демонструють вплив складу і структури зв'язки на її теплопровідність. Зі збільшенням об'ємного вмісту інтерметалідної фази теплопровідність зв'язок суттєво зменшується. Шляхом екстраполяції дослідних даних одержано оцінку коефіцієнта теплопровідності інтерметаліду Ni₃Sn.

Ймовірним чинником підвищення теплопровідності КАМ на 15–25 % при нанесенні на поверхню алмазних кристалів хрому є утворення в процесі спікання тонкого прошарку карбіду хрому, який покращує контакт алмазу зі зв'язкою.

Запропонована теоретична модель теплопровідності КАМ забезпечує врахування реальної форми кристала алмазу та різного контактного опору його граней внаслідок вибіркового карбідоутворення. Одержана шляхом розв'язання оберненої задачі оцінка контактної теплопровідності міжфазної границі алмаз-метал задовільно узгоджується з наведеними в літературних джерелах результатами прямого вимірювання фізичними методами.

Дані моделювання свідчать про суттєвий вплив контактного опору на температурний режим роботи алмазного зерна. Як показують розрахунки, наявність хімічного чи адгезійного зв'язку суттєво знижує його температуру у порівнянні з випадком суто механічного контакту.

Исследовано влияние контактной теплопроводности межфазной границы алмаз-металлическая связка на теплопроводность алмазосодержащих композитов с двух- и трехкомпонентной металлическими связями на основе никеля. Разработана установка и методика измерения зависимости коэффициента теплопроводности связок и композитов на их основе от состава (в частности, наличия карбидообразующих добавок) и структуры, проведено исследование такой зависимости. Предложена теоретическая модель теплопроводности композита, которая обеспечивает учет реальной формы кристалла алмаза и контактной теплопроводности его граней. Полученная путем решения обратной задачи оценка контактной теплопроводности межфазной границы удовлетворительно согласуется с известными в литературе данными прямых физических исследований и аналогичными оценками для композитов на алюминиевой и медной связках. Результаты моделирования свидетельствуют о значительном влиянии контактного сопротивления на температурный режим работы алмазного инструмента. **Ключевые слова:** алмаз, металлическая связка, композиционный алмазосодержащий материал, межфазная граница, тепловое сопротивление, модель, эффективная теплопроводность.

We study an effect of the contact conductance of the diamond-metal bond interface on the thermal conductivity of diamond composites with two- and three-component metallic, nickel -based bonds. The correlations between the composition (in particular, carbideforming additives) and structure of the bonds and composites and their thermal conductivity have been established with aid of the authors' setup and measurement technique. A theoretical model has been developed for the thermal conductivity of composite. The model takes an actual shape of the diamond crystal and contact conductivity value agrees well with the results of direct physical studies as well as similar estimates for the composites with aluminum and copper bonds. The simulation results show that contact resistance greatly affects the temperature regime of a diamond tool.

Keywords: diamond, metal bond, composite, interface, thermal resistance, model, effective thermal conductivity.

- Ruch P. W., Beffort O., Kleiner S. et al. Selective interfacial bonding in Al(Si)-diamond composites and its effect on thermal conductivity // Compos. Sci. Technol. – 2006. – 66. – P. 2677–2685.
- Flaquer J., Rios A., Martin-Meizoso A. et al. Effect of diamond shapes and associated thermal boundary resistance on thermal conductivity of diamond-based composites // Comp. Mater. Sci. – 2007. – 41. – P. 156–163.
- Schubert T., Ciupiński Ł., Zieliński W. et al. Interfacial characterization of Cu/diamond composites prepared by powder metallurgy for heat sink applications // Scr. Mater. – 2008. – 58. – P. 263–266.
- Xia Y., Song Y., Lin C. et al. Effect of carbide formers on microstructure and thermal conductivity of diamond-Cu composites for heat sink materials Trans // Nonferrous Met. Soc, China. - 2009. - 19. - P. 1161–1166.
- Kidalov S. V., Shakhov F. M. Thermal conductivity of diamond composites // Materials. 2009. – 2. – P. 2467–2495.
- 6. Меснянкин С. Ю., Викулов А. Г., Викулов Д. Г. Современный взгляд на проблемы теплового контактирования твердых тел // Успехи физических наук. – 2009. – **179**, № 9. – С. 945–970.
- Chu K., Jia C.-C., Liang X. et al. Modeling the thermal conductivity of diamond reinforced aluminium matrix composites with inhomogeneous interfacial conductance // Materials & Design. – 2009. – 30. – P. 4311–4316.
- Ekimov E.A., Suetin N. V., Popovich A. F., Ralchenko V. G. Thermal conductivity of diamond composites sintered under high pressures // Diamond Relat. Mater. – 2008. – 17. – P. 838– 843.
- Stoner R. J., Maris H. J. Kapitza conductance and heat flow between solids at temperatures from 50 to 300 K // Phys. Rev. B. – 1993. – 48, N 22. – P. 16373–16387.
- Stoner R. J., Maris H. J., Anthony T. R., Banholzer W. F. Measurements of the Kapitza conductance between diamond and several metals // Phys. Rev. Lett. – 1992. – 68. – P. 1563– 1566.
- 11. *Cahill D. G., Ford W. K., Goodson K. E. et al.* Nanoscale thermal transport // J. Appl. Phys. 2003. **93**, N 2. P. 793–818.
- 12. Chen H., Jia C. C., Li S. J. Effect of Cr addition and processing conditions on interface microstructure and thermal conductivity of diamond/Cu composite // The 18 th International Conference on Composite Materials (ICCM18) August 21–26, 2011, ICC Jeju, Korea.
- Weber L., Tavangar R. On the influence of active element content on the thermal conductivity and thermal expansion of Cu–X (X=Cr, B) diamond composites // Scr. Mater. – 2007. – 57. – P. 988–991.
- Monachon C., Weber L. Effect of diamond surface orientation on the thermal boundary conductance between diamond and aluminum // Diamond Relat. Mater. – 2013. – 39. – P. 8– 13.

- Monachon C., Schusteritsch G., Kaxiras E., Weber L. Qualitative link between work of adhesion and thermal conductance of metal/diamond interfaces // J. Appl. Phys. – 2014. – 115, N 12, art. 123509.
- Новіков М. В., Майстренко А. Л., Кущ В. І., Іванов С. А. Оцінка якості композиційних алмазовмісних матеріалів за електро- і теплопровідністю // Фізико-хімічна механіка матеріалів. – 2006. – № 1. – С.105–112.
- 17. Новиков Н. В., Майстренко А. Л., Кущ В. И., Иванов С. А. Оценка качества металлоалмазных композитов по их теплопроводности и электросопротивлению // Механика композитных материалов. – 2006. – **42**, № 3. – С. 361–374.
- 18. Майстренко А. Л., Иванов С. А., Переяслов В. П., Волошин М. Н. Интенсивное электроспекание алмазосодержащих композиционных материалов // Сверхт. материалы. – 2000. – № 5. – С. 39–45.
- 19. Шмегера Р. С. Интенсивное электроспекание металлических матриц алмазосодержащих композитов в присутствии жидкой фазы // Породоразрушающий и металлообрабатывающий инструмент техника и технология его изготовления и применения. К.: ИСМ им. В. Н. Бакуля НАН Украины, ИПЦ АЛКОН НАНУ, 2012. Вып. 15. С. 507–510.
- Nash P., Choo H., Schwarz R. B. Thermodynamic calculation of phase equilibria in the Ti– Co and Ni–Sn systems // J. Mater. Sci. – 1998. – 33. – P. 4929–4936.
- Schmetterer C., Flandorfer H., Richter K. W. et al. A new investigation of the system Ni–Sn/C // Intermetallics. – 2007. – 15. – P. 869–884.
- 22. Klepser C. A. Growth of intermetallic phases at low temperature: PhD Thesis, MIT. 1996.
- Hasselman D. P. H., Johnson. L. F. Effective thermal conductivity of composites with interfacial thermal barrier resistance // J. Comput. Mater. – 1987. – 21. – P. 508–515.
- 24. *Yamamoto Y., Imai T., Tanabe K. et al.* The measurement of thermal properties of diamond // Diamond Relat. Mater. 1997. **6**. P. 1057–1061.
- 25. Kushch V. I. Micromechanics of composites: multipole expansion approach. Elsevier, 2013. 489 p.
- Zuzovsky M., Brenner H. Effective conductivities of composite materials composed of cubic arrangements of spherical particles embedded in an isotropic matrix // Z. Agnew. Math. Phys. (ZAMP). – 1977. – 28. – P. 979–992.

Ін-т надтвердих матеріалів

ім. В. М. Бакуля НАН України

Надійшла 01.07.14