

А.М. Ніколенко, М.В. Кіндрачук, Є.А. Сисун, А.О. Корнієнко

## Аналіз технології подрібнення крихких матеріалів

*Інститут радіофізики та електроніки ім. О.Я. Усикова НАН України  
вул. академіка Проскури, 12, Харків, 61085, Україна*

Досліджено можливості застосування методів математичного планування експериментів до розв'язання задач аналізу технологій подрібнення крихких матеріалів. Репрезентовано рекомендації з визначення множин факторів та функцій відгуку а також методи їх задання. Розглянену методику застосовано до досліджень процесу подрібнення свинцево-боро-силікатного скла.

**Ключові слова:** крихкі матеріали, подрібнення, оптимізація технології, математичне планування експерименту.

*Стаття постуила до редакції 10.10.2003; прийнята до друку 23.01.2004.*

1. Проблема керування експлуатаційними параметрами керамічних виробів пов'язана з задачею реалізації можливостей чіткого контролю характеристик компонентів порошкових композицій, що одержуються, як правило, в результаті подрібнення вихідних матеріалів на виробництві. Це зауваження стосується передусім питомої поверхні порошоків, форми частинок та розподілу їх за розмірами [1]. Між можливих шляхів розв'язання цієї задачі слід виділити два основних: 1) класифікація готового продукту подрібнення; 2) керування процесом подрібнення вихідного матеріалу з метою одержання порошоків із заданими характеристиками. Зазначені методи не слід розглядати як альтернативні, більш природним було б вимагати від них, щоб вони доповнювали одне одного при розв'язанні практичних задач, що виникають перед технологами, тим більше, що аналіз тенденцій розвитку сучасних технологій виробництва керамік дозволяє зробити висновок про те, що оптимізація виробничих процесів передусім повинна базуватись на застосуванні порошоків програмованого складу, як за морфологією, так і за дисперсністю.

Шляхи удосконалення методів класифікації дисперсних систем асоціюються, як правило, з розв'язанням проблеми підвищення роздільної здатності відповідного обладнання. Що ж стосується питань керування процесами подрібнення, то тут виникає задача одержання адекватної моделі процесу, а одна з можливостей розв'язання її полягає в застосуванні математичних методів планування експериментів [2].

На жаль, останнім часом спостерігається тенденція поглиблення розриву між академічними дослідженнями процесів подрібнення матеріалів та конкретним застосуваннями результатів цих

досліджень в практичній діяльності інженерів-технологів. Передусім це зауваження стосується питань застосування методів математичного планування експериментів. Причин тому є декілька. Передусім слід зазначити, що формальна теорія математичного планування експериментів є часто недосяжною для технологів-практиків в тому вигляді, в якому вона звичайно викладається в монографіях та посібниках навчального характеру. Окрім того, широко розповсюдженою серед дослідників є думка щодо недоцільності застосування формальних математичних моделей, як таких, що не репрезентують реальний зміст відповідних фізичних процесів. Це зауваження є певною мірою справедливим, проте слід мати на увазі і те, що базується воно передусім на непорозуміннях, пов'язаних з прорахунками в підготовці експериментів, а саме – застосуванням неадекватних параметрів та способів їх визначення і методів контролю, вибором невідповідних видів плану та способів статистичної обробки одержаних результатів. Інакше кажучи, саме прорахунки методологічного характеру часто стають причиною недосконалості одержаної математичної моделі.

Дана праця репрезентує результати експериментальних досліджень із застосування математичних методів планування експериментів в технології диспергування крихких матеріалів, зокрема скла. При цьому запропоновано обґрунтовані рекомендації з визначення факторів та функцій відгуку, способів їх завдання і вибору плану експерименту, проведено аналіз результатів експерименту реалізованого з урахуванням зазначених міркувань та рекомендацій. Одержані результати переконливо свідчать про те, що навіть лінійна регресійна модель процесу диспергування

має значне практичне значення.

2. Проведена авторами серія планованих експериментів з вивчення та оптимізації процесів подрібнення крихких матеріалів (нітридів, форстериту, скла) дозволяє обґрунтувати вибір планів подібних експериментів. Зокрема, найбільш доцільним вбачається планування експериментів на основі дробових планів з недубльованими окремими дослідями; при цьому розрахунок дисперсії окремого дослідження можна здійснювати по четвірці дублів в центрі плану. Окрім того, як виявилось, слід уникати змішування факторів, що репрезентують кінематичні характеристики устаткування та факторів, пов'язаних з об'ємами завантаження вихідного матеріалу, куль млина, поверхнево-активних речовин (ПАР).

У науковій літературі та технологічній документації об'єми подрібнюваного матеріалу  $v_m$ , куль  $v_k$  та рідини (ПАР)  $v_p$ , як правило визначаються співвідношеннями виду

$$v_v : v_k : v_p = a : b : c, \quad (1)$$

де  $a, b, c$  – деякі числа. Насправді подібні співвідношення не є загальними, окрім того вони наче природно зазначають несуттєвість об'єму  $v$  камери млина. Як виявилось, слід реалізувати визначення зазначених факторів у вигляді зведених величин:

$$\{x_i\}_{i=1}^3 = \left( \frac{v_m}{v}, \frac{v_k}{v}, \frac{v_p}{v} \right); \quad (2a)$$

у вигляді відношень до характерного розміру  $L$  камери млина слід визначати також фактори, що відображають розміри  $l_j$  куль:

$$\{x_j\} = \left\{ \frac{l_j}{L} \right\}. \quad (2b)$$

Множину кінематичних параметрів передусім репрезентує швидкість обертання барабана  $\omega$  та час диспергування  $t$ :

$$\{x_i\}_{i=4}^5 = (t; \omega). \quad (2в)$$

Множина функцій відгуку  $\{y\}$ , що підлягають вивченню та оптимізації в процесі реалізації планованого експерименту, повинна передусім містити середнє значення питомої поверхні продукту диспергування  $\langle A \rangle$ , коефіцієнт подрібнення  $\langle \mu \rangle$  (що визначається, як відношення маси, або об'єму продукту подрібнення, який характеризується середнім значенням питомої поверхні  $\langle A \rangle$ , до відповідно повної маси або об'єму матеріалу, що підлягає диспергуванню) та низку параметрів  $\{\delta_j\}$ , які характеризують відносну масу окремих фракцій, одержаних після диспергування методами класифікації. Безумовно, набором функцій відгуку

$$\{y_i\} = (\langle A \rangle; \langle \mu \rangle; \{\delta_j\}), \quad (3)$$

та факторів (2) не можна вичерпати множину можливих практичних задач, але застосування цих параметрів завжди забезпечить основну інформацію про процеси в досліджуваній системі.

3. Зазначені міркування склали основу досліджень технології процесу подрібнення свинцево-боро-силікатного скла (густина скла

$\rho = 4,2 \text{ г/см}^3$ ). При цьому базовою розглядалася лінійна регресійна модель виду

$$y_k = y_{k0} + a_{kj} x_j, \quad (4)$$

де  $\{y_k\}$  – множина лінійних функцій відгуку моделі,  $\{y_{k0}\}$  – значення відгуків в центрі плану експерименту,  $a_{kj}$  – діагональна матриця коефіцієнтів лінійної регресії,  $\{x_j\}$  – множина факторів (в цій праці використовується угода про суму по “німому” індексу).

Подрібнення скла здійснювалося на планетарному млині “Пульверизетте  $\frac{5}{4}$ ” фірми “Фріч”, матеріал барабана та куль млина – агат, об'єм барабана  $500 \text{ см}^3$ , діаметр куль – 10 мм. Факторами, що підлягали варіюванню, було визначено:

- $x_1$  – відношення об'єму скла до об'єму барабана;
- $x_2$  – відношення об'єму куль до об'єму барабана;
- $x_3$  – відношення об'єму ПАР (води) до об'єму барабана;
- $x_4$  – час подрібнення, хв.;
- $x_5$  – швидкість обертання барабана, ум.од.

Центр плану експерименту в п'ятивимірному факторному просторі визначається точкою  $x_0$  з координатами

$$\{x_{ok}\}_{k=1}^5 = (0,031; 0,06; 0,07; 60; 5) \quad (5)$$

(вибір координат (5) центра плану мотивується вимогою, за якою центр плану не повинен міститися в околі екстремуму моделі і обґрунтований результатами попередніх досліджень з застосуванням цього ж самого обладнання).

3 метою побудови моделі (4) в п'ятивимірному гіперкубі з центром в точці (5) було реалізовано дробовий факторний експеримент з планом виду  $2^{5-2}$ . Інтервали варіювання репрезентують вирази

$$\begin{aligned} x_1 &\in [0,024; 0,038]; \\ x_2 &\in [0,03; 0,09]; \\ x_3 &\in [0,05; 0,09]; \\ x_4 &\in [40; 80]; \\ x_5 &\in [4; 6]. \end{aligned} \quad (6)$$

Генеруюче співвідношення, що визначає систему змішування факторів має вигляд

$$\begin{aligned} x_4 &= x_1 x_2 x_3 \\ x_5 &= x_1 x_2 \end{aligned}$$

при цьому узагальнений визначальний контраст має вигляд:

$$I \equiv x_1 x_2 x_3 x_4 \equiv x_1 x_2 x_5 \equiv x_3 x_4 x_5,$$

функціями відгуку в експерименті було визначено середнє значення питомої поверхні продукту подрібнення  $\langle A \rangle$

$$y_1 = \langle A \rangle \quad (7a)$$

та коефіцієнт подрібнення  $\langle \mu \rangle$

$$y_2 = \langle \mu \rangle. \quad (7b)$$

4. Експеримент відповідно до описаного плану було реалізовано в рандомізованій послідовності недубльованих основних дослідів з чотирикратним дублюванням дослідів центра плану. Результати

експерименту репрезентують табл. 1 та табл. 2, де  $u$  – номер основного дослідження ( $u = 1; 2; \dots; 8$ ),  $g$  – номер дубля центра плану ( $g = 1; 2; 3; 4$ ),  $\{x_i\}$  – множина факторів відповідно (2а) та (2в),  $y_1$  – відгук (7а),  $y_2$  – відгук (7б).

Статистичну обробку результатів експерименту було проведено за стандартною методикою [2]. При цьому коефіцієнти лінійної моделі (4) визначаються виразами

$$y_{oi} = \frac{\sum_{u=1}^N x_{ou} Y_u}{\sum_{u=1}^N x_{ou}^2} \quad (8a)$$

та

$$A_i = \frac{\sum_{u=1}^N x_{iu} Y_u}{\sum_{u=1}^N x_{iu}^2} \quad (8б)$$

де  $u$  – номер дослідження ( $u = 1; 2; \dots; N$ );  $x_{iu} = \pm 1$  відповідно до плану (табл. 1)  $\{x_{ou} = 1\}_{u=1}^N$ ;  $N$  – число основних досліджень плану (в даному випадкові  $N = 8$ );  $i$  – індекс фактора. Дисперсія окремого дослідження (у випадку чотирикратного дублювання дослідів у центрі плану) визначається виразом

$$S_y^2 = \frac{\sum_{g=1}^4 (y_{go} - \bar{y}_o)^2}{3} \quad (9)$$

де  $g$  – індекс дубля;  $y_{go}$  – значення відгуку в центрі плану;  $\bar{y}_o$  – середнє значення відгуку в центрі плану.

Оскільки основні дослідження плану не дублюються, оцінка коефіцієнтів (8) моделі (4) здійснюється за

формулою

$$S_{a_i}^2 = \frac{S_y^2}{N} \quad (10)$$

Очевидно, на рівні значущості  $\alpha = 0,05$  значення критерія Стьюдента в цьому випадку дорівнює

$$t_{0,05;3} = 3,18 \quad (11)$$

отже, коефіцієнт  $a_i$  є статистично значущим, якщо виконується умова

$$|a_i| \geq \Delta_{ai} \quad (12)$$

де  $\Delta_{ai}$  – довірчий інтервал цього коефіцієнта:

$$\Delta_{ai} \equiv 3,18 S_{a_i} \quad (13)$$

Моніторинг моделі на предмет адекватності також є достатнім на основі застосування критерія Стьюдента. Для цього слід утворити різницю  $\Delta$

$$\Delta = |y_{o \text{ розр}} - y_{o \text{ експ}}|,$$

де  $y_{o \text{ розр}}$  – розрахункове значення відгуку в центрі плану,  $y_{o \text{ експ}}$  – експериментальне значення відгуку. При цьому розрахункове значення критерію Стьюдента  $t_{\text{розр}}$  дорівнює

$$t_{\text{розр}} = \frac{\Delta \sqrt{N}}{S_y}$$

Гіпотеза про адекватність є прийнятною на заданому рівні значущості  $\alpha$ , якщо

$$t_{\text{розр}} \leq t_{\text{табл}}$$

(в даному разі  $t_{\text{табл}} = 3,18$ )

Коефіцієнти моделі (4), розраховані для функції відгуку  $\langle A \rangle$  відповідно до (8), такі:

$$y_{oi} = 5,0,$$

$$\{y_{1i}\}_{i=1}^5 = (0,175; -0,1; 0,375; -0,15; -0,525), \quad (14)$$

**Таблиця 1**

1/4 - репліка плану  $2^5$  експерименту з дослідження технології подрібнення скла ( $u$  – номер дослідження;  $y_1$  – питома поверхня продукту подрібнення,  $[y_1] = \text{см}^2/\text{г}$ ;  $y_2$  – коефіцієнт подрібнення,  $[y_2] = 1$ )

u	x <sub>1</sub>	x <sub>2</sub>	x <sub>3</sub>	x <sub>4</sub>	x <sub>5</sub>	y <sub>1</sub> (10 <sup>3</sup> )	y <sub>2</sub>
1	+	+	+	+	-	5,1	0,84
2	-	+	+	-	-	5,8	0,50
3	+	-	+	-	-	6,3	0,14
4	-	-	+	+	+	4,3	0,44
5	+	+	-	-	+	4,0	0,20
6	-	+	-	+	-	4,7	0,72
7	+	-	-	+	-	5,3	0,19
8	-	-	-	-	+	4,5	0,10

**Таблиця 2**

Результати дублювання дослідів експерименту в центрі плану ( $g$  – номер дубля;  $y_1$  – питома поверхня продукту подрібнення,  $[y_1] = \text{см}^2/\text{г}$ ;  $y_2$  – коефіцієнт подрібнення,  $[y_2] = 1$ )

g	y <sub>1</sub>	y <sub>2</sub>
1	4,6	0,43
2	5,0	0,40
3	4,9	0,43
4	4,8	0,40

а довірчий інтервал для окремого коефіцієнта відповідно до (13) становить

$$\Delta_{a_i} = 0,191.$$

При цьому коефіцієнти  $\{a_{1j}\}_{j=1,2,4}$  є статистично незначущими, тому реалістичний вираз для лінійної моделі (4) має вигляд:

$$y_1 \equiv \langle A \rangle = 5 + 0,375 x_3 - 0,525 x_5. \quad (15a)$$

Здійснивши відповідні розрахунки, одержуємо вираз для  $y_2$ :

$$y_2 \equiv \langle \mu \rangle = 0,391 - 0,049 x_1 - 0,174 x_2 + 0,089 x_3 + 0,154 x_4 \quad (15b).$$

Статистична незначущість окремих коефіцієнтів лінійних моделей (15), що проявляється в їх відсутності у відповідних виразах, є подвійною за своєю природою і, з одного боку, може означати той факт, що відповідні фактори є за своїми значеннями близькими до оптимальних, з іншого боку, може свідчити на користь принципової незалежності функцій відгуку від відповідних факторів.

**5.** Проаналізуємо загальний вигляд співвідношень (15). Очевидно, з метою досягнення більш високих значень питомої поверхні продукту подрібнення (у порівнянні з її значеннями в центрі плану) необхідно збільшити кількість ПАР (води) в барабані млина з одночасним зменшенням швидкості обертання барабана. Цей, з першого погляду парадоксальний, висновок можна легко пояснити. Суть в тому, що існує, взагалі кажучи, фізична межа подрібнення, зумовлена процесами агрегації в системі [3], при цьому конкуренція між процесами подрібнення та агрегації зростає зі збільшенням питомої поверхні продукту подрібнення і в результаті спричиняє динамічну рівновагу, за якої параметр  $\langle A \rangle$  не змінюється. Легко зрозуміти, отже, що стан динамічної рівноваги конкурентних процесів "подрібнення – агрегація" можна зсунути в той чи інший бік, варіюючи швидкість обертання барабана млина (тобто, змінюючи кінетичну енергію частинок, що стикаються в барабані). Отже, вимога щодо зменшення швидкості обертання барабана млина з метою збільшення функції відгуку  $y_1 \equiv \langle A \rangle$  означає лише, що збільшення кінетичної енергії частинок поглиблює процеси їх агрегації. Інакше кажучи, критичне значення питомої поверхні продукту подрібнення, що характеризує межу агрегації, не є

характеристикою матеріалу, а являє собою динамічний параметр, що залежить від технологічних особливостей процесу диспергування.

Поведінка параметра  $\langle \mu \rangle$  прогнозується на основі аналізу моделі (15b) без особливих ускладнень. Зазначимо лише ту обставину, що коефіцієнт кореляції між функціями відгуку  $\langle A \rangle$  та  $\langle \mu \rangle$  всередині гіперкуба, обмеженого відповідно до (6) виявився несуттєвим:

$$\Gamma_{\langle A \rangle; \langle \mu \rangle} = -0,125.$$

Відповідно до загальної методики [2] досягнення оптимальних значень функцій відгуку для технології, що аналізується в цій праці, можна здійснити покроковим проведенням дослідів від центра плану в напрямках градієнтів моделей (15) з одночасною зміною значень факторів на величину крока, що становить  $\text{sign } a_{ik} |a_{ik}| \Delta x_k$ , де  $\Delta x_k$  – інтервал варіювання окремого k-го фактора.

Насамкінець звернемо увагу на ту обставину, що іноді в процесі розробки технологічних режимів подрібнення скла вводиться до розгляду технологічна операція термоудару, яка полягає в нагріванні вихідного гранульованого матеріалу з подальшим швидким охолодженням його, що полегшує подальшу операцію диспергування. В рамках експерименту, що обговорюється, було проведено досліди з подрібнення скла, яке попередньо підлягало термоудару. При цьому середнє значення коефіцієнта подрібнення в центрі плану становило 0,45 (для скла, що не підлягало попередньому термоудару, це значення відповідно до табл. 2 дорівнювало 0,415). Отже, якщо врахувати, що сама операція термоудару може призвести до хімічних змін в структурі скла [4], вираш від її застосування вбачається проблематичним.

**А.М. Ніколенко** – д.ф.-м.н., професор кафедри фізики, провідний науковий співробітник ІРЕ НАНУ;  
**М.В. Кіндрачук** – д.т.н., професор кафедри матеріалознавства;  
**Е.А. Сисун** – студент;  
**А.О. Корнієнко** – аспірант.

- [1] У.Д. Кингери. *Введение в керамику*. Стройиздат, М. 499с. (1967).  
 [2] Ф.С. Новик, Я.Б. Арсов. *Оптимизация процессов технологии металлов методами планирования экспериментов*. Машиностроение, М.; Техника, София 304с. (1980).  
 [3] Г.С. Ходаков. *Физика измельчения*. Наука, М. 307с. (1972).  
 [4] В.В. Скороход, І.В. Уварова, А.В. Рагуля. *Фізико-хімічна кінетика в наноструктурних системах*. Академперіодика, К. 180с. (2001).

А.М. Ніколенко, М.В. Кіндрачук, Є.А. Сисун, А.О. Корнієнко

A.M. Nikolenko, M.V. Kindrachuk, E.A. Sysun, A.O. Kornienko

## **Analysis of Technology of Growing Shallow of Fragile Materials**

*Institute of Radiophysics and Electronics, named by O.Y. Usikov NAS of Ukraine  
12, Acad. Proskura Str., Kharkov, 61085, Ukraine*

Possibilities of application of methods of the mathematical planning of experiments to the decision of tasks of analyzes of growing shallow of fragile materials technologies are explored. The recommendations from determination of great numbers of factors and review functions and also methods of their appropriate are presented. The present method is applied to researches of process of growing shallow of Pb-B-Si glass.