

(12) **CERERE DE BREVET DE INVENȚIE**

(21) Nr. cerere: **a 2019 00373**

(22) Data de depozit: **21/06/2019**

(41) Data publicării cererii:
30/12/2020 BOPI nr. **12/2020**

(71) Solicitant:
• **INSTITUTUL NAȚIONAL DE
CERCETARE-DEZVOLTARE PENTRU
FIZICĂ TEHNICĂ - IFT IAȘI.**
*BD.PROF.DR.DOC.DIMITRIE MANGERON
NR.47, OP IS 3, CP 833, IAȘI, IS, RO*

(72) Inventatori:
• **MURGULESCU IULIAN-IOAN,**
*STR.PROF.AGRICOLA CARDAȘ NR.11,
IAȘI, IS, RO;*
• **CHIRIAC HORIA,**
*STR.ALEXANDRU VLAHUȚĂ NR.7 B,
BL. ACADEMIE, SC.A, ET.2, AP.9, IAȘI, IS,
RO;*
• **LUPU NICOLETA,** ȘOS.NAȚIONALĂ
*NR.42B, BL.A1, SC.D, ET.4, AP.3, IAȘI, IS,
RO*

(54) **PROCEDEU ȘI DISPOZITIV DE ATOMIZARE
PENTRU OBTINEREA MATERIALELOR MAGNETICE
AMORFE SUB FORMĂ DE PULBERI MICRONICE**

(57) Rezumat:

Invenția se referă la un procedeu și la un dispozitiv de atomizare pentru obținerea materialelor magnetice moi, amorfe, sub formă de pulberi cu particule sferice cu dimensiuni medii mai mici de 50 μm. Procedeu conform invenției pentru obținerea pulberilor magnetice amorfe constă în fragmentarea succesivă a jetului de aliaj topit prin forfecare datorită interacțiunii acestuia cu două jeturi de gaz și un jet de lichid, orientate geometric sub diferite unghiuri, în funcție de direcția jetului de aliaj topit. Dispozitivul de atomizare conform invenției este constituit din trei duze cu orificii de ieșire sub formă de fante dreptunghiulare cu dimensiunile cuprinse între 3...5 mm lungime și 0,2...0,5 mm lățime, favorabile obținerii de jeturi și lichid, poziționate astfel încât să permită controlul optim al interacțiunilor succesive cu jetul de aliaj topit într-un spațiu restrâns, având distanța de maximum 2 mm pe direcția de curgere a jetului de aliaj topit, obținându-se astfel un volum mare de fază amorfă în componența pulberilor, acestea având o dimensiune medie rezultată < 50 μm, un procent semnificativ de pulberi 20...30% au dimensiuni sub 20 μm și un mic volum de particule submicronice.

Revendicări: 2
Figuri: 6

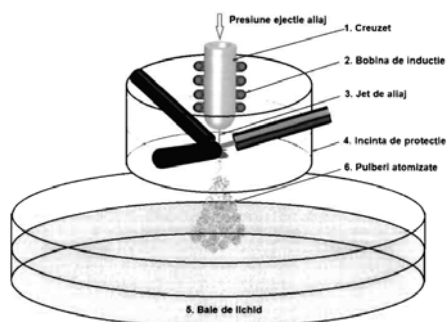


Fig. 2

Cu începere de la data publicării cererii de brevet, cererea asigură, în mod provizoriu, solicitantului, protecția conferită potrivit dispozițiilor art.32 din Legea nr.64/1991, cu excepția cazurilor în care cererea de brevet de invenție a fost respinsă, retrasă sau considerată ca fiind retrasă. Întinderea protecției conferite de cererea de brevet de invenție este determinată de revendicările conținute în cererea publicată în conformitate cu art.23 alin.(1) - (3).



PROCEDEU ȘI DISPOZITIV DE ATOMIZARE PENTRU OBTINEREA MATERIALELOR MAGNETICE AMORFE SUB FORMĂ DE PULBERI MICRONICE

Autori: Iulian-Ioan Murgulescu, Horia Chiriac, Nicoleta Lupu

DESCRIEREA INVENȚIEI

Invenția se referă la un procedeu de atomizare bazat pe interacțiunea succesivă a două jeturi de gaz și a unui jet de lichid cu un jet de aliaj topit care este fragmentat în particule și la un dispozitiv de atomizare care constă din trei duze pentru jeturile de gaz și de lichid, astfel dispuse încât se pot obține materiale magnetice moi, amorfe, sub formă de pulberi cu particule sferice și dimensiuni medii mai mici de 50 micrometri.

Sunt cunoscute procedee de obținere a pulberilor metalice din topitură prin atomizare cu jeturi de gaz-lichid [1]. Este cunoscut de asemenea și un dispozitiv de atomizare pentru producerea unui material magnetic amorf sub formă de pulberi [2] (brevet OSIM nr.113913 B). Procedeele cunoscute utilizate pentru obținerea de pulberi prin atomizare presupun trecerea jetului de aliaj topit printr-o zonă turbulentă produsă de jeturile de gaz și lichid. Jetul de aliaj este spart în picături și împrăștiat de către jetul de gaz, iar picăturile de aliaj sunt solidificate în urma interacțiunii cu jetul de lichid. Pulberile preparate prin aceste procedee de atomizare sunt sortate dimensional prin sitare, obținându-se particule cu dimensiuni sub 50 μm sau chiar sub 10 μm - procentul acestora fiind foarte mic [3].

Dezavantajele majore al acestor procedee de atomizare sunt: **dimensiunea medie mare** a particulelor obținute, care este în jurul valorii diametrului duzei de ejecție a aliajului topit (90-200 μm) și dificultatea de a obține **pulberi în stare amorfă** atunci când dimensiunile particulelor sunt mari (peste 20 μm) pentru aliaje magnetice moi pe bază de fier și cobalt.

Problema tehnică pe care o rezolvă invenția constă în optimizarea procedurii de atomizare pentru obținerea pulberilor magnetice amorfe prin utilizarea a două jeturi de gaz pentru pulverizare și a unui jet de lichid pentru răcirea produșilor obținuți și reglarea adecvată a parametrilor de pulverizare astfel încât să se obțină pulberi magnetice amorfe având particule cu forme sferice și diametrul mediu sub 50 micrometri, pentru aliaje magnetice moi pe baza de fier și cobalt în procente atomice de 60÷80%, și metaloid (B, Si) în procente atomice de 10÷20%.

Procedeul de atomizare conform invenției, înlătură dezavantajele menționate prin aceea că este bazat pe un model de interacțiune succesivă a jetului de aliaj topit cu 2 jeturi de gaz și un jet de lichid, poziționate geometric în plan orizontal și vertical, sub unghiuri diferite. Acest model de interacțiune presupune înlocuirea zonei de turbulență, ca element activ în transformarea jetului de aliaj topit în picături/particule (conform abordării clasice), cu o **zonă de fragmentări succesive prin forfecare** datorată interacțiunii jetului de aliaj topit cu jetul de gaz 1, apoi a picăturilor de aliaj rezultate cu jetul de gaz 2 și ulterior cu jetul de lichid, într-un spațiu de dimensiuni mici (distanța pe verticală între primul jet de gaz și ultimul jet de lichid este de maximum 2 mm) (fig. 1). Ciocnirile succesive cu jeturile de gaz și lichid produc fragmentarea jetului de aliaj topit, respectiv a picăturilor de aliaj rezultate, prin forfecare, având ca rezultat reducerea diametrului mediu a particulelor obținute sub 50 micrometri.

Figura 2 prezintă dispozitivul experimental. Aliajul metalic este topit într-un creuzet de cuarț sau ceramic (1) cu ajutorul unui câmp creat de o bobină (2) alimentată de un generator de medie frecvență 150-250 KHz. Aliajul topit la temperaturi de 1200°-1400°C este ejectat sub formă de jet (3) printr-un orificiu cu diametrul de 90÷200 μm, practicat la baza creuzetului, prin aplicarea unei suprapresiuni de gaz (argon, azot, heliu sau aer) cu valori în domeniul 5÷10 bar. Jetul de aliaj topit trece printr-un sistem de duze care constituie dispozitivul de atomizare.

Dispozitivul de atomizare conform invenției (fig. 3) constă din trei duze, dispuse geometric în plan orizontal și vertical, sub diferite unghiuri, în așa fel încât jetul de aliaj topit este fragmentat inițial în picături cu jetul de gaz 1, picăturile sunt apoi fragmentate cu jetul de gaz 2 și ulterior sunt fragmentate suplimentar și răcite cu jetul de lichid 3, obținându-se pulberi care sunt colectate într-o baie de lichid. Jeturile de gaz și lichid au geometrie lamelară datorată formei duzelor (tub de cuarț închis la un capăt în care este practică o fantă dreptunghiulară cu dimensiunile: 3-5 mm lungime și 0,2-0,5 mm lățime) permițând controlul interacțiunilor cu jetul de aliaj topit într-un spațiu restrâns. Distanța mică (de aproximativ 1 mm) între două ciocniri succesive a jeturilor de gaz și lichid cu jetul de aliaj topit nu permite solidificarea aliajului înaintea fragmentării, obținând astfel particule cu dimensiuni mici.

Deoarece la o viteză a jetului de aliaj de 10-20 m/s, corespunzătoare unei suprapresiuni de eiecție de 5-15 bar, o distanță de aproximativ 1 mm este parcursă într-un timp mai mic de 10^{-4} s, se obțin viteze de răcire mai mari de 10^5 K/s ceea ce conduce la îndeplinirea condițiilor de obținere a materialelor în stare amorfă.

Dispozitivul de atomizare mai sus menționat este introdus într-o incintă cilindrică de protecție (4) închisă la partea superioară și deschisă la partea inferioară, utilizată ca suport în poziționarea duzelor de gaz și lichid, dar și pentru direcționarea pulberilor obținute spre baia de lichid. Baia de lichid (5) constă dintr-un vas cilindric nemagnetic, pentru a permite colectarea magnetică a pulberilor metalice obținute (fig. 2).

Întregul dispozitiv de atomizare este realizat din materiale nemetalice pentru a nu fi afectat de câmpul de înaltă frecvență utilizat pentru topirea aliajului. Cele trei jeturi de gaz și lichid sunt dispuse la un unghi de 120°, proiecția lor în plan orizontal, iar în plan vertical sub diferite unghiuri, față de orizontală, astfel încât jeturile de atomizare să intersecteze axa jetului de aliaj în puncte diferite, aflate la distanță foarte mică între ele (≤ 1 mm) (fig. 3). Poziționarea exactă a duzelor se realizează cu ajutorul unei piese de centrare la unghiurile dorite. Duzele sunt fixate mecanic cu rășini epoxidice în peretele lateral al incintei de protecție (fig. 2).

Pulberea obținută este spălată cu alcool, uscată în vid la temperaturi de până la 60°C și apoi sitată pentru separarea dimensională a particulelor. Dimensiunea redusă a pulberilor obținute și forma sferică (prezentând și câțiva sateliți, asemenea variantei clasice de atomizare) este demonstrată de imaginile de microscopie electronică (fig. 4 și fig. 5).

Structura pulberilor obținute din aliajul cu compoziția $\text{Co}_{68,25}\text{Fe}_{4,25}\text{Si}_{12,5}\text{B}_{15}$ a fost analizată cu ajutorul difracției de raze X. Caracterul amorf al particulelor obținute a fost demonstrat de difractogramele de raze X (fig. 6) pentru următoarele game dimensionale ale particulelor: sub 20 μm; 20-32 μm; 32-63 μm, 63-100 μm și 100-150 μm. Difractogramele de raze X evidențiază prezența majoritară a fazei amorfe, absența oricăror picurilor specifice fazelor cristaline și o minimă prezență a unei faze nanocristaline. Prin comparație în literatură, pentru aceste tipuri de materiale se menționează coexistența caracterului amorf și cristalin al pulberilor chiar și pentru particule, separate prin sitare, cu dimensiuni sub 10 μm [3].

Caracterul amorf al particulelor magnetice asigură proprietăți magnetice moi convenabile pentru un domeniu larg de aplicații în industrie și medicină.

Diametrul mediu al pulberilor obținute a fost calculat ca o medie ponderată a diferitelor diametre obținute prin sitare, raportat la ponderea masică a fracțiunii respective.

În continuare se dau două exemple de realizare a invenției în legătură și cu figurile 1 - 6, care prezintă:

- fig. 1 - reprezentarea schematică a procedurii de fragmentare succesivă a jetului de aliaj topit cu două jeturi de gaz și un jet de lichid;
- fig. 2 - reprezentarea schematică a dispozitivului de experimental de atomizare (vedere generală);
- fig. 3 - reprezentarea schematică a poziționării duzelor de gaz și lichid;
- fig. 4 - imaginea SEM a pulberilor obținute prin atomizare;
- fig. 5 - imaginea SEM a particulelor decantate;
- fig. 6 - difractogramele de raze X pentru diferite game dimensionale ale particulelor.

Exemplul 1

Jeturile de gaz și lichid au unghiuri (în plan vertical) față de orizontală de $5\div 30$ grade (fig. 3) corelate între ele astfel încât intersecția fiecărui jet de atomizare cu direcția jetului de aliaj topit să se realizeze pe o distanță totală de până la $1.5\div 2$ mm pentru toate cele 3 jeturi. De exemplu, primul jet de gaz poate avea o înclinare verticală de 15° , al doilea $16,5^\circ$ și al treilea (cel de lichid) un unghi de 18° . În acest fel aliajul interacționează succesiv cu jetul de "gaz 1", apoi cu cel de "gaz 2", iar în final cu jetul de lichid și nu are timp să se răcească nici prin radiație și nici prin interacțiunea cu jeturile de gaz. Componenta orizontală a vitezei jeturilor de gaz și lichid asigură fragmentarea succesivă a jetului, respectiv a picăturilor de aliaj. Componenta verticală a vitezei jeturilor de gaz și lichid contribuie la evacuarea particulelor din zona de interacțiune și la direcționarea lor spre baia de lichid, în care sunt colectate.

Exemplul 2

Jeturile de gaz și lichid sunt orizontale, decalate pe înălțime cu 0,5 mm. Spre comparație dimensiunea verticală a fantei jetului de atomizare este de 0,4 mm. În acest caz, în zona de interacțiune se formează o structură de 3 plane paralele de gaz/gaz/lichid, cu direcții diferite de curgere, având un efect de forfecare asupra jetului de aliaj. Astfel, jeturile de atomizare au avantajul că nu interacționează deloc între ele, dar avansul produșilor de ciocnire pe direcția verticală este dat exclusiv de viteza inițială a jetului de aliaj. Rezultatele sunt comparabile cu cele de la exemplul 1, pentru alegerea potrivită a presiunilor de ejecție și de atomizare.

Procedeu și dispozitivul de atomizare, conform invenției, prezintă următoarele avantaje:

- Permite obținerea de pulberi cu **dimensiuni medii ale particulelor sub 50 μ m și un procent semnificativ de pulberi cu dimensiuni sub 20 micrometri (20 \div 30%)** prin fragmentarea succesivă prin forfecare a jetului de aliaj topit cu două jeturi de gaz și un jet de lichid, datorită unei poziționări geometrice convenabile a duzelor în plan orizontal și vertical, sub diferite unghiuri;
- Permite fragmentarea jetului de aliaj topit în **particule fine cu structură amorfă** printr-o mai bună interacțiune între jetul de aliaj topit și jeturile gaz și lichid datorită

geometriei lamelare a jeturilor de gaz și lichid și distanței mici între punctele de interacțiune a jeturilor de gaz și lichid cu jetul de aliaj topit, ceea ce conduce la viteze de răcire mari ($> 10^5$ K/s) a particulelor obținute;

- Permite obținerea **unui mic volum de nanoparticule** (sub 0.5% din cantitatea totală) favorabile și pentru aplicații medicale. Particulele submicronice sunt dispersate în baia de apă și sunt colectate după decantare, timp de 24 de ore. Cele mai fine particule submicronice, din aliajul magnetic moale studiat, au avut un **diametru de 200÷400 nm** (fig.5).

Bibliografie

1. Powder metallurgy -VSB, Katerina Stoknicova, Miroslav Kurska, Ivo Szurman, Ostrava 2014, pg.16-17.
(http://katedry.fmmi.vsb.cz/Opory_FMMI_ENG/AEM/Powder%20Metallurgy.pdf)
2. Material magnetic sub forma de pulberi si instalatie pentru producerea acestuia, Chiriac H., Moga A.E., Urse M., brevet OSIM nr.113913 B.
3. Soft magnetic amorphous alloys (Fe-rich) obtained by gas atomisation technique, Kenny Alvarez, Jose Manuel Martin, Mihail Ipatov, Julian Gonzalez, Jurnal of Alloys and Compounds 735 (2018) 2646-2652.

REVENDICĂRI

1. Procedeu de atomizare, **caracterizat prin aceea că** pentru obținerea de pulberi amorfe cu dimensiuni micrometrice, jetul de aliaj topit este fragmentat succesiv prin forfecare datorată interacțiunii acestuia cu două jeturi de gaz și un jet de lichid, orientate geometric sub diferite unghiuri, în raport cu direcția jetului de aliaj topit.
2. Dispozitiv de atomizare, **caracterizat prin aceea că** este constituit din trei duze cu orificii de ieșire sub formă de fante dreptunghiulare cu dimensiunile: 3-5 mm lungime și 0,2-0,5 mm lățime, favorabile obținerii de jeturi lamelare de gaz și lichid, poziționate pentru a permite controlul optim al interacțiunilor succesive cu jetul de aliaj topit într-un spațiu restrâns (distanța de maximum 2 mm pe direcția de curgere a jetului de aliaj topit), favorabil obținerii unui volum mare de fază amorfă în componența pulberilor, o dimensiune medie a particulelor rezultate mai mică de 50 micrometri, un procent semnificativ de pulberi cu dimensiuni sub 20 micrometri ($20\pm 30\%$) și un mic volum de particule submicronice.

FIGURI EXPLICATIVE

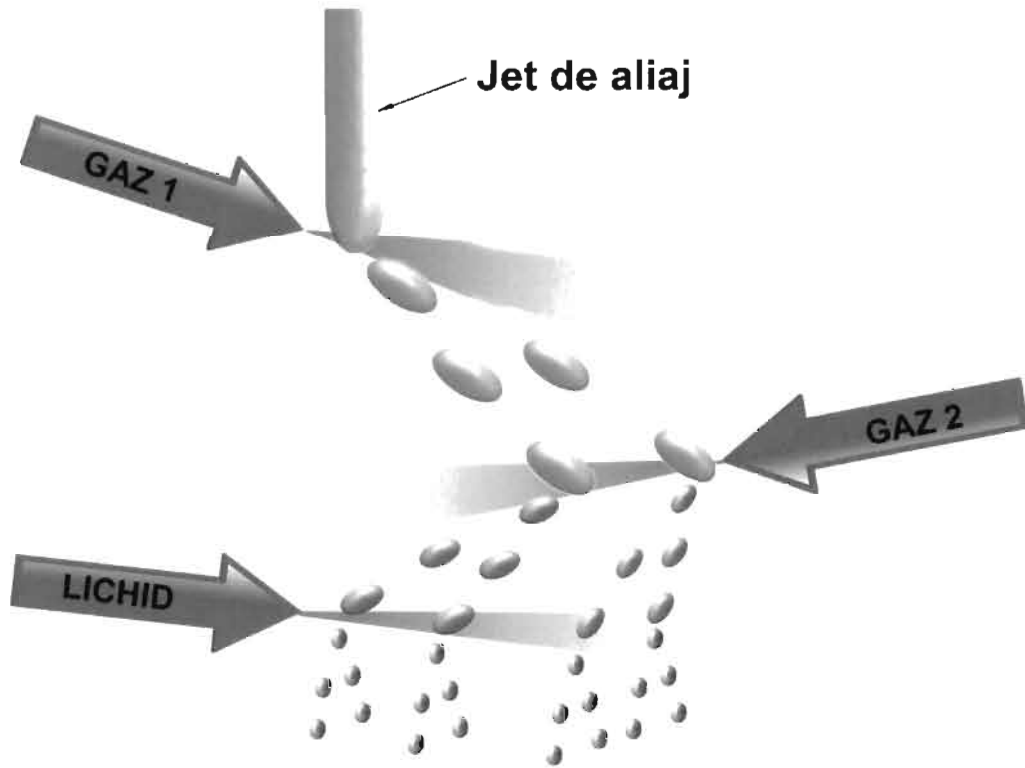


Fig. 1.

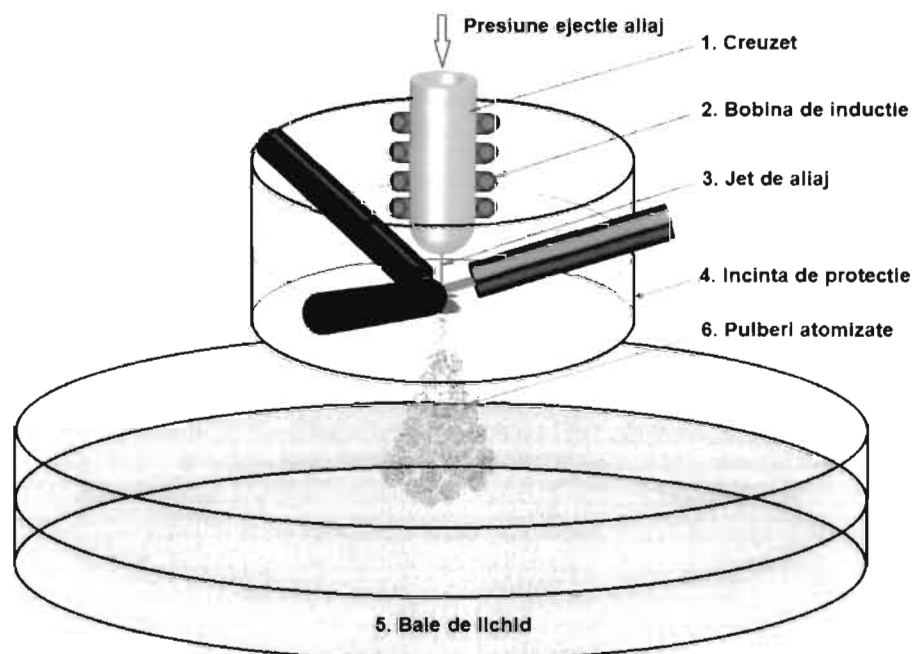


Fig. 2.

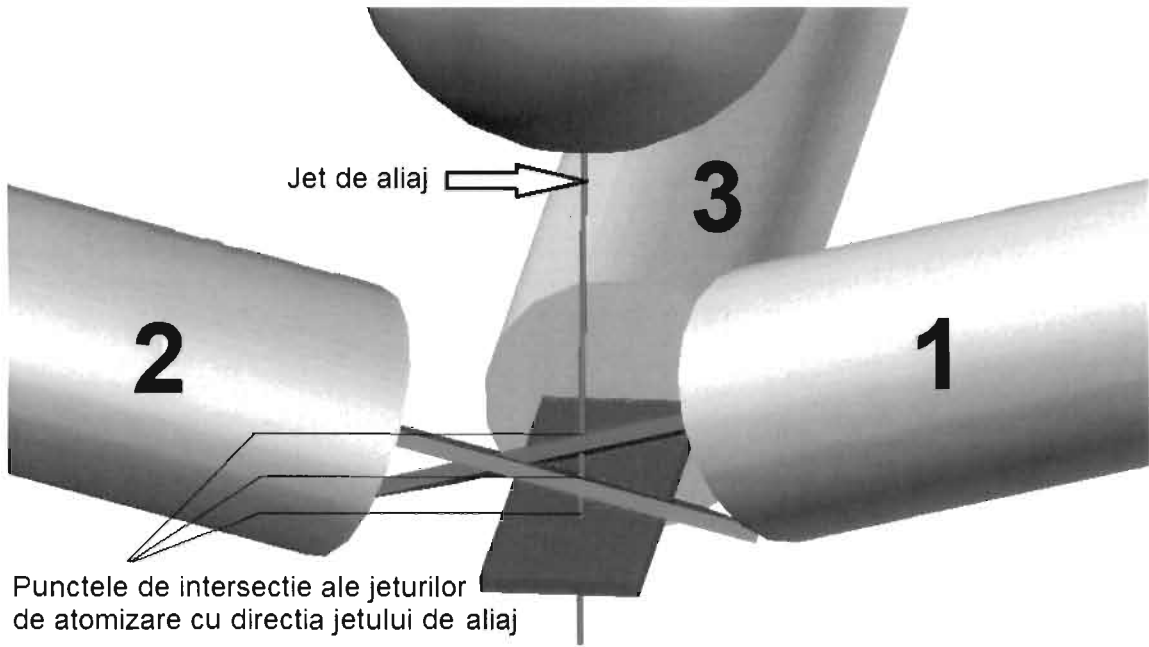


Fig. 3.

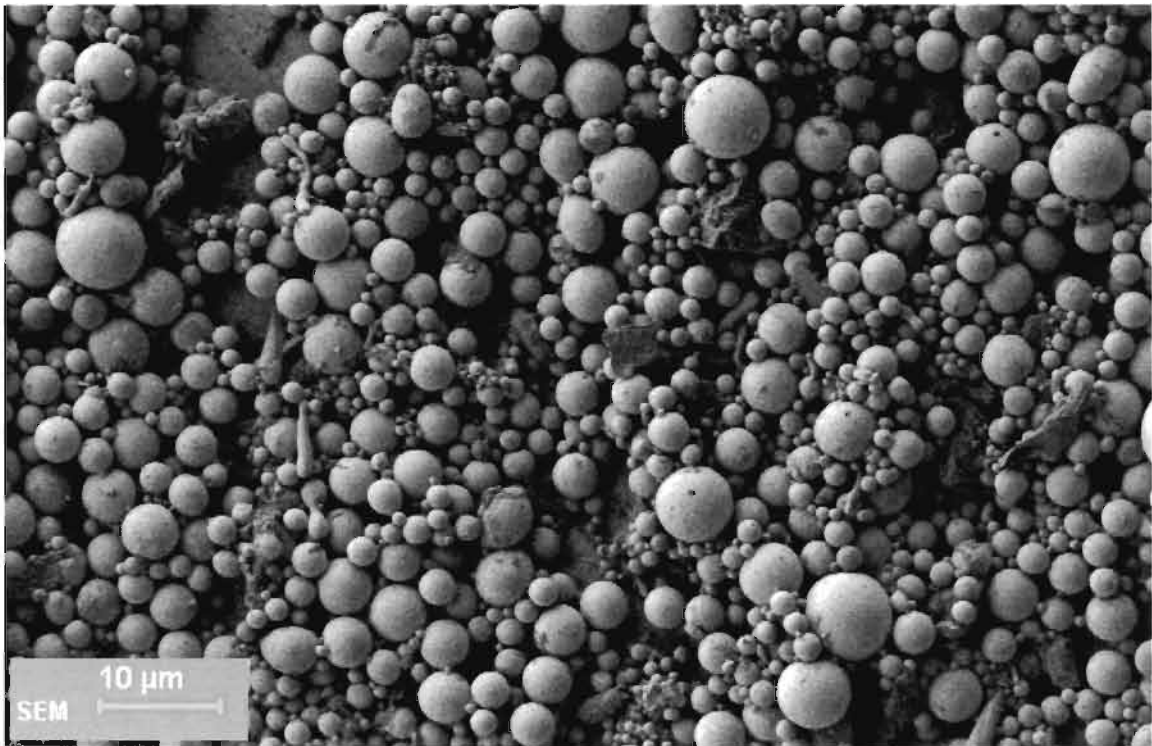


Fig. 4.

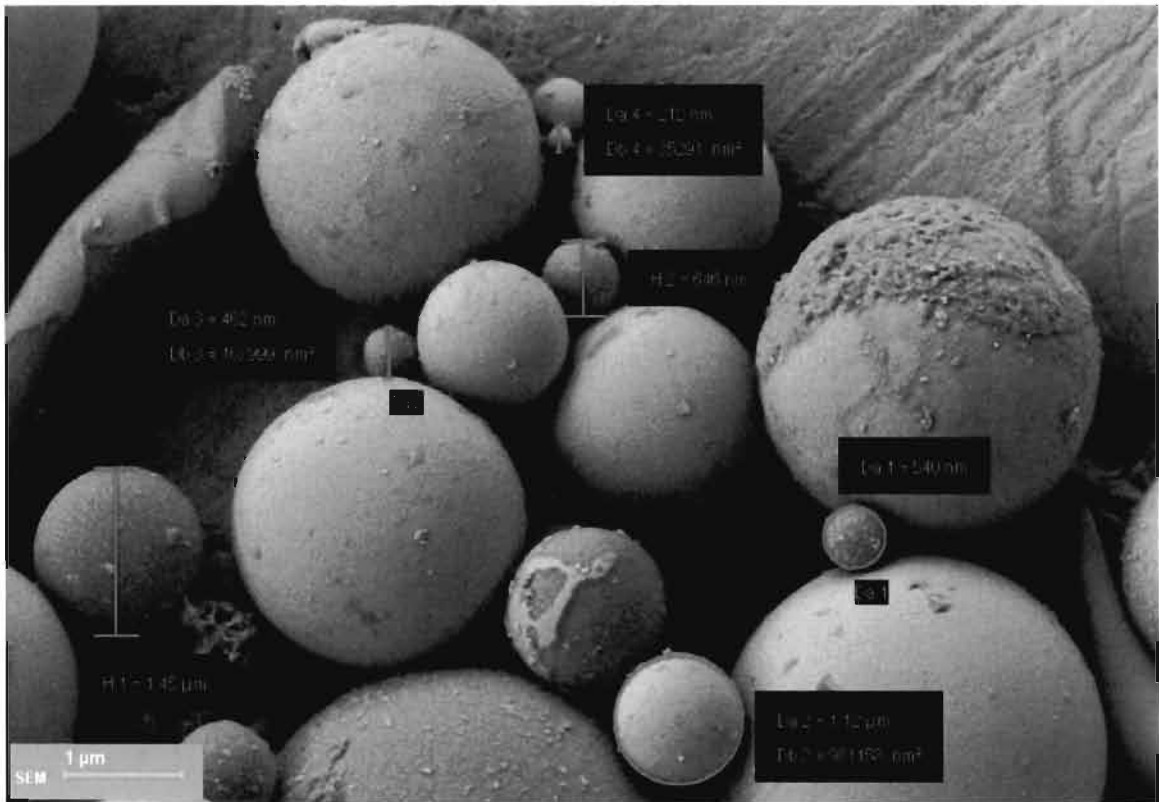


Fig. 5.

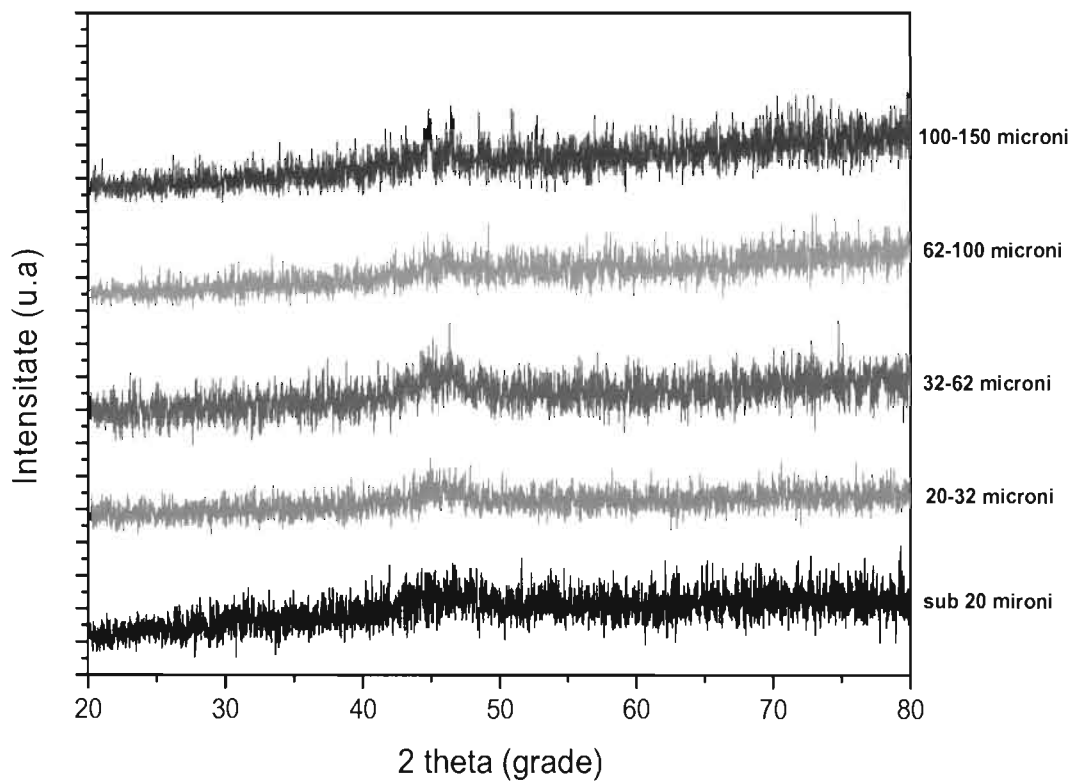


Fig. 6.