

УДК 669.015.5: 546.28/.62: 666.192

## ПРОЧНОСТЬ ТАБЛЕТОК ДЛЯ ВОССТАНОВЛЕНИЯ КРЕМНИЯ ИЗ СМЕСИ КВАРЦЕВОГО СТЕКЛА И АЛЮМИНИЕВОЙ ПУДРЫ

<sup>1</sup>Шевко В.М., <sup>2</sup>Лавров Б.А., <sup>1</sup>Бадикова А.Д., <sup>1</sup>Аманов Д.Д., <sup>2</sup>Мураховская Н.В.

<sup>1</sup>РГП на ПХВ «Южно-Казахстанский государственный университет им. М. Ауэзова», Шымкент, e-mail: sunstroke\_91@mail.ru;

<sup>2</sup>Санкт-Петербургский государственный технологический институт (технический университет), Санкт-Петербург

Одним из перспективных методов получения технического кремния может стать алюмотермическое восстановление его из чистого сырья – кварцевого стекла и алюминиевой пудры. Первоначальным технологическим процессом получения кремния этим методом является получение из шихты спрессованных таблеток. В статье приводятся результаты исследований по влиянию размера кварцевого стекла (99,6% SiO<sub>2</sub>), количества высокодисперсной алюминиевой пудры (99,13% Al) и давления прессования на прочность таблеток. Исследования проводили с использованием рототабельного планирования экспериментов второго порядка. Найдено адекватное уравнение регрессии влияния трех факторов на прочность спрессованных таблеток. Построены объемные поверхности отклика и ее горизонтальные разрезы, по которым установили, что прочность спрессованной шихты из кварцевого стекла и алюминиевой пудры возрастает при уменьшении размера кварцевого стекла, давления прессования и количества алюминиевой пудры; таблетки прочностью 5,9–6,8 кг/см<sup>2</sup> формируются при размере кварцевого зерна 0,1–0,3 мм, давлении прессования 3,1–7,0 МПа и избытке алюминиевой пудры в 1,4 раза; увеличение давления прессования от 7 МПа до 9 МПа приводит к уменьшению прочности таблетки до 2,8–3,0 кг/см<sup>2</sup>.

**Ключевые слова:** кремний, кварцевое стекло, алюминиевая пудра, прочность, температура, давление

## STRENGTH OF TABLETS FROM A MIXTURE OF QUARTZ GLASS AND ALUMINUM POWDER FOR SILICON RECOVERY

<sup>1</sup>Shevko V.M., <sup>2</sup>Lavrov B.A., <sup>1</sup>Badikova A.D., <sup>1</sup>Amanov D.D., <sup>2</sup>Murahovskaya N.V.

<sup>1</sup>M. Auezov South Kazakhstan State University, Shymkent, e-mail: sunstroke\_91@mail.ru;

<sup>2</sup>St. Petersburg State Technological Institute (technical university), St.-Petersburg

One of the promising methods of obtaining technical silicon can be aluminothermic reduction of it from pure raw materials – quartz glass and aluminum powder. The initial technological process for the production of silicon by this method is the preparation of pressed compression tablets. The paper presents the results of studies on the influence of the size of quartz glass (99.6% SiO<sub>2</sub>), the amount of highly disperse aluminum powder (99.13% Al) and the pressing pressure on the strength of tablets. The researches were fulfilled by a method of planning an experiment with use of the second order rotatable plans. The adequate regression equations of influence of three factors on the strength of compressed tablets was found. Were constructed surface solid representations and their horizontal sections, according to which it was established that the strength of the compacted charge from quartz glass and aluminum powder increases with decreasing quartz glass size, pressing pressure and the amount of aluminum powder; tablets with a strength of 5.9–6.8 kg/cm<sup>2</sup> are formed at a quartz grain size of 0.1–0.3 mm, pressing pressure 3.1–7.0 MPa and an excess of aluminum powder 1.4 times; an increase in the pressing pressure from 7 MPa to 9 MPa leads to a decrease in the strength of the tablet to 2.8–3.0 kg/cm<sup>2</sup>.

**Keywords:** silicon, quartz glass, aluminum powder, strength, temperature, pressure

Чистота сырьевых материалов является важным технологическим условием получения кремния необходимой марки. При получении 1 т технического электротермического кремния с 2,5–2,6 т кварцита (96–98% SiO<sub>2</sub>), 1,20–1,35 т древесного угля (1,45% золы), 0,14–0,16 т нефтяного кокса (0,71% золы), 0,2–0,25 т газового угля (13,41% золы) [1, 2] в печь вносится 119–130 кг золы. При электроплавке шихты практически все железо (98,6%), Al (93,4%), Ca (86,7%) восстанавливается и переходит в кристаллический кремний [3]. Поэтому он имеет Σ<sub>Fe, Al, Ca</sub> до 4,5% [4]. Улучшить чистоту технического кремния можно, если использовать сырье с низким содержанием примесей, например прозрачное и непрозрачное кварцевое

стекло (99,5–99,94% SiO<sub>2</sub>) и прокаленную алюминиевую пудру. Наши исследования с использованием кварцевого стекла и алюминиевой пудры для получения кристаллического кремния показали перспективность этого направления [1, 5]. Предварительным технологическим процессом получения кремния предложенным методом является получение спрессованных таблеток из кварцевого стекла и высокодисперсной алюминиевой пудры. В статье приводятся результаты исследований по влиянию размера кварцевого зерна, количества алюминиевой пудры и давления прессования на прочность таблеток.

Химический состав исходных компонентов приведен в табл. 1, 2.

Кварцевое стекло предварительно дробилось в щековой дробилке до фракции 1–55 мм и затем измельчалось на вибромельнице в течение 30 минут. Полученный порошок просеивался на ситах до необходимых фракций. Измельченное кварцевое стекло и алюминиевая пудра смешивались в необходимых количествах в вибромельнице в течение 20–25 минут до получения однородной смеси. Для получения таблеток смесь из кварцевого стекла и алюминиевой пудры ( $\approx 25$  г) набивалась в пресс-форму и помещалась в гидравлический пресс. Уплотнение смеси проводили при различном давлении в зависимости от условий опыта. Размер спрессованных таблеток: диаметр 40 мм, высота 4 мм. Прочность таблеток определялась с помощью гидравлического пресса.

Исследования проводили методом планирования эксперимента с использованием рототабельных планов второго порядка [6]. Независимыми факторами были: давление

прессования ( $P$ , МПа), размер кварцевого стекла ( $d$ , мм), избыток алюминиевой пудры ( $Al$ , доля от стехиометрии). Параметр оптимизации – прочность спрессованных таблеток ( $\Pi$ , кг/см<sup>2</sup>). Оптимальные условия формирования прочных таблеток находили методом построения объемной поверхности отклика и ее горизонтальных разрезов [7].

Матрица планирования экспериментов и их результаты показаны в табл. 3. На основании полученных результатов было получено следующее адекватное уравнение регрессии:

$$\Pi = -2,544 + 0,769 \cdot P + 5,05 \cdot d + 3,616 \cdot Al - 0,039P^2 - 3,995 \cdot d^2 - 0,328 \cdot Al^2 - 0,373 \cdot P \cdot d - 0,173 \cdot P \cdot Al - 3,472 \cdot d \cdot Al. \quad (1)$$

На рис. 1 приведено объемное изображение поверхности отклика и ее горизонтальные разрезы при расходе алюминиевой пудры в 0,6 от стехиометрии, а на рис. 2 горизонтальные разрезы при расходе пудры 0,76, 1,0, 1,24 и 1,4 от стехиометрии.

Таблица 1

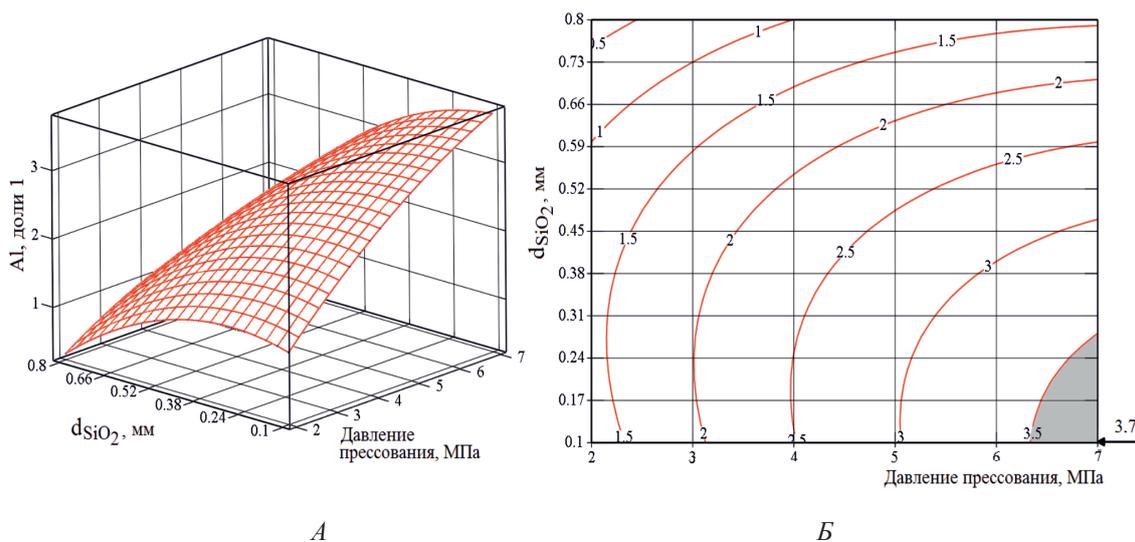
Химический состав непрозрачного кварцевого стекла

Оксиды	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO	MgO
Содержание, %	99,6	0,2	0,06	0,1	0,04

Таблица 2

Химический состав прокаленной алюминиевой пудры

Элемент	Al	Fe	Si	Cu	Mn
Содержание, %	99,13	0,40	0,3	0,05	0,12



А

Б

Цифры на линиях – прочность, кг/см<sup>2</sup>

А – объемное изображение поверхности отклика,  
Б – горизонтальные разрезы поверхности отклика

Рис. 1. Влияние давления прессования и размера кварцевого зерна на прочность при количестве алюминиевой пудры 0,6

Таблица 3

Матрица планирования экспериментов и их результаты

№ опыта	Кодированный вид			Натуральный вид			Прочность П, кг/см <sup>2</sup>
	X <sub>1</sub>	X <sub>2</sub>	X <sub>3</sub>	P, МПа	d <sub>SiO<sub>2</sub></sub> , мм	Al, доли	
1	1	1	1	6,0	0,66	1,24	3,25
2	-1	1	1	3,0	0,66	1,24	2,12
3	1	-1	1	6,0	0,24	1,24	5,31
4	-1	-1	1	3,0	0,24	1,24	3,75
5	1	1	-1	6,0	0,66	0,76	2,35
6	-1	1	-1	3,0	0,66	0,76	1,51
7	1	-1	-1	6,0	0,24	0,76	3,75
8	-1	-1	-1	3,0	0,24	0,76	2,40
9	1,68	0	0	7,0	0,45	1,0	4,25
10	-1,68	0	0	2,0	0,45	1,0	1,98
11	0	1,68	0	4,5	0,8	1,0	1,49
12	0	-1,68	0	4,5	0,1	1,0	4,24
13	0	0	1,68	4,5	0,45	1,4	4,12
14	0	0	-1,68	4,5	0,45	0,6	2,50
15	0	0	0	4,5	0,45	1,0	3,37
16	0	0	0	4,5	0,45	1,0	3,35
17	0	0	0	4,5	0,45	1,0	3,30
18	0	0	0	4,5	0,45	1,0	3,39
19	0	0	0	4,5	0,45	1,0	3,29
20	0	0	0	4,5	0,45	1,0	3,40

Таблица 4

Условия получения таблеток максимальной прочности

Al, доли	d, мм	P, МПа	П, кг/см <sup>2</sup>	Область на рис. 2
0,76	0,1–0,34	7,0–6,0	4,0–4,4	abc
1,0	0,1–0,30	7,0–4,5	4,7–5,7	fln
1,24	0,1–0,30	7,0–3,8	5,3–6,1	meo
1,4	0,1–0,30	7,0–3,1	5,9–6,8	xyz

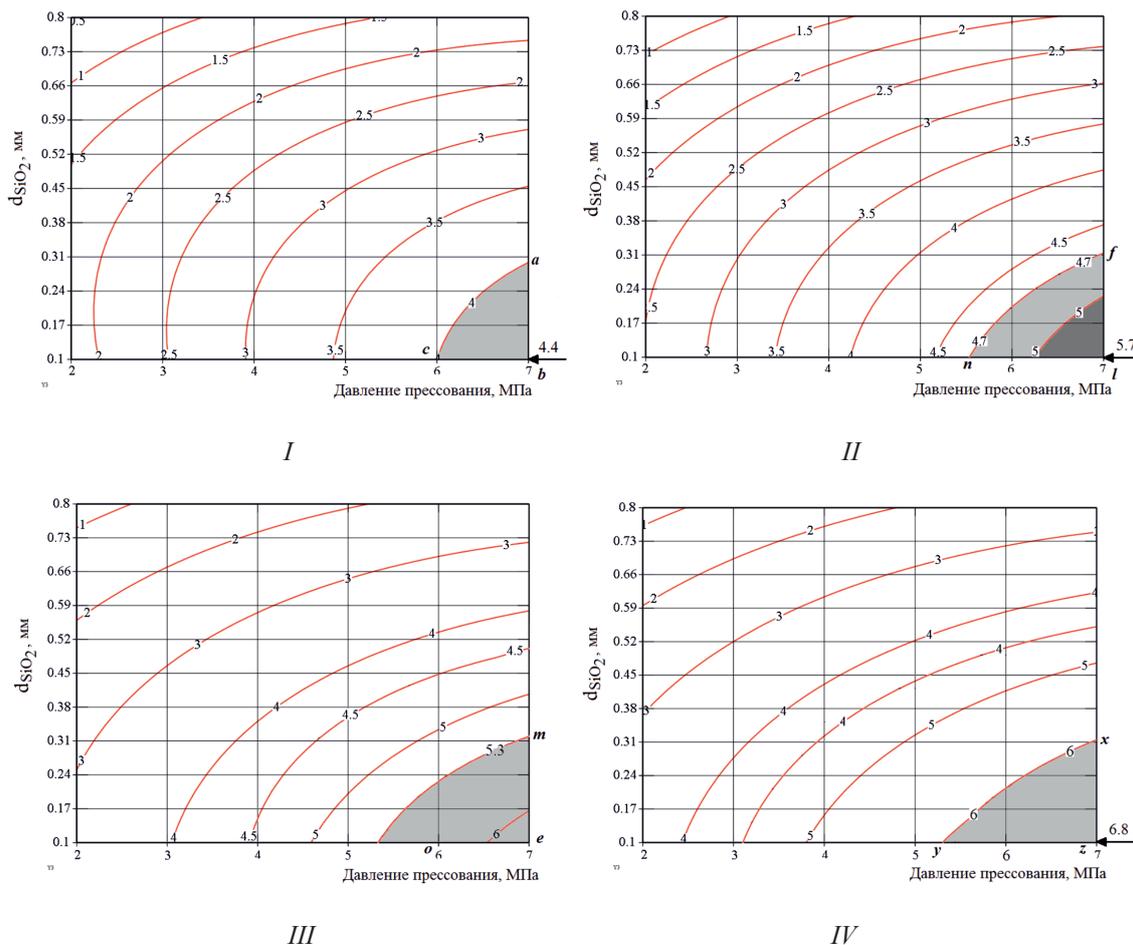
Из рис. 1, 2 следует, что независимо от количества алюминиевой пудры уменьшение размера кварцевого стекла позволяет увеличить прочность спрессованных таблеток, а уменьшение давления прессования напротив уменьшает прочность таблеток. Из рис. 1 следует, что при 60% количестве алюминиевой пудры формируются таблетки прочностью 3,7 кг/см<sup>2</sup>, а при 80% количестве алюминиевой пудры – 4,4 кг/см<sup>2</sup>. При увеличении давления прессования прочность брикетов увеличивается.

В табл. 4 приводится информация, полученная из рис. 2 о влиянии переменных факторов на прочность спрессованных таблеток, из которой следует, что таблетки прочностью 5,9–6,8 кг/см<sup>2</sup> формируются при избытке алюминиевой пудры в 1,4 раза, крупностью

зерна кварцевого стекла 0,1–0,3 мм и давлением прессования 5,2–7,0 МПа.

Необходимо отметить, что при увеличении давления прессования более 7,0 МПа прочность таблеток резко снижается. Так при d = 0,1 мм, Al = 1,0 увеличение давления прессования до 9,0 МПа привело к уменьшению прочности таблетки до 2,8–3,0 кг/см<sup>2</sup>.

Условия пресования таблетки должны обеспечивать не только необходимую прочность при транспортировке ее от пресса до реактора восстановления, но и обеспечивать высокую степень восстановления кремния. Поэтому следующим этапом работы будут исследования влияния различных факторов, в том числе и прочности таблетки на восстановление Si из кварцевого стекла.



Цифры на линиях – прочность, кг/см<sup>2</sup>  
 Количество алюминиевой пудры I-0,76, II-1, III-1,24, IV-1,4  
 Рис. 2. Влияние давления прессования и размера кварцевого зерна на прочность

На основании полученных результатов установлено, что:

– прочность спрессованной шихты из кварцевого стекла и алюминиевой пудры возрастает при уменьшении размера кварцевого стекла, давления прессования и количества алюминиевой пудры;

– таблетки прочностью 5,9–6,8 кг/см<sup>2</sup> формируются при размере кварцевого зерна 0,1–0,3 мм, давлении прессования 3,1–7,0 МПа и избытке алюминиевой пудры в 1,4 раза;

– увеличение давления прессования от 7 МПа до 9 МПа приводит к уменьшению прочности таблетки до 2,8–3,0 кг/см<sup>2</sup>;

– для определения оптимальной прочности таблетки необходимо продолжение исследований по влиянию ее прочности на степень восстановления Si из кварцевого стекла.

#### Список литературы

1. Фалькевич Э.С., Пульнер Э.О., Червоний И.Ф. и др. Технология полупроводникового кремния. – М.: Металлургия, 1992. – 408 с.
2. Емлин Б.И., Гасик М.И. Справочник по электротермическим процессам. – М.: Металлургия, 1978. – 288 с.
3. Рагулина Р.И., Емлин Б.И. Электротермия кремния и силумина. – М.: Металлургия, 1972. – 240 с.
4. ГОСТ 2169-69 Кремний технический. Технические условия. Москва, 2001. – 7 с.
5. Разработка метода аллотермического получения кремния «солнечной» чистоты (6N) Отчет НИР: инв.№ 0215РК01480; № гос. регистрации 0115РК01547. Руководитель: Шевко В.М. – 2015. – 99 с.
6. Ахназарова С.Л., Кафаров В.В. Методы оптимизации эксперимента в химической технологии: Учебное пособие для вузов. – М.: Высшая школа, 1985. – 327 с.
7. Очков В.Ф. Mathcad 14 для студентов, инженеров и конструкторов. – СПб.: БХВ-Петербург, 2007. – 368 с.