

соотношения компонентов и значения размеров зерен и последующее термобарическое спекание при 4 – 4,5 ГПа и температуре, составляющей 0,8 от температуры плавления сплава при атмосферном давлении, позволили получить исходные заготовки с пористостью меньше 2 %.

Испытания сплавов-растворителей, полученных методом порошковой металлургии, показало их высокую эффективность для выращивания структурно совершенных монокристаллов алмаза типа Ib и массой до 2 карат, а также перспективность использования для промышленного производства алмазов.

Ключевые слова: сплавы-растворители, порошковая металлургия, монокристаллы алмаза, высокие давления.

Література

1. Лейпунский О. И. Об искусственных алмазах // Успехи химии. – 1939. – Вып. 8. – С. 1519–1534.
2. Степанчук А.М. Теорія і технологія пресування порошкових матеріалів. К.: ЗАО «ВІПОЛ», 2012. – 321 с.
3. Физическое металловедение: В 3-х т., 3-е изд., перераб. и доп. / Под ред. Кана Р.У., Хаазена П. // Т. 2: Фазовые превращения в металлах и сплавах и сплавы с особыми физическими свойствами: Пер. с англ. – М.: Металлургия, 1987. – 624 с.

Надійшла 28.06.21

Reference

1. Leypunskii, O.I. (1939). Ob iskustvennikh almazakh [About synthetic diamonds]. *Uspekhi khimii – Successes of chemistry*, 8, 1519–1534 [in Russian].
2. Stepanchuk, A.M. (2012). *Teoriia i tekhnolohiia presuvannia poroshkovykh materialiv [Theory and technology of pressing powder materials]*. Kyiv.: ЗАО «VIPOЛ» [in Ukrainian].
3. Kan R.U., Haazen P. (Ed.). (1987). *Fazovie prevracheniiia v metallakh i splavakh i splavi s osobimi fizicheskimi svoistvami. Fizicheskoe metallovedenie. V. II. (Vols. 1–3; Vol. 2).* Moscow: Metallurgiiia [in Russian].

УДК 548.736

DOI: 10.33839/2708-731X-24-1-152-159

А.В. Бурченя, канд. техн. наук; **В.В. Лисаковський**, д-р техн. наук; **С.О. Івахненко**, член-корр. НАН України; **Т.В. Коваленко**, канд. техн. наук; **С.О. Гордєєв**, м.н.с.

Інститут надтвердих матеріалів ім. В.М. Бакуля НАН України, вул. Автозаводська 2, 04074, м. Київ, e-mail: burcheniaav@gmail.com

ОПТИМІЗАЦІЯ ТЕМПЕРАТУРИ СЕРЕДОВИЩА НАВКОЛО ШЕСТИПУАНСОННИХ ПРЕСОВИХ УСТАНОВОК СТИСКАННЯ РОСТОВИХ КОМІРОК ВЕЛИКОГО ОБ'ЄМУ ДЛЯ КРИСТАЛІЗАЦІЇ МОНОКРИСТАЛІВ АЛМАЗУ

В роботі проведено дослідження впливу змінення температури повітря навколо шестипуансонних пресів на ростові умови для вирощування структурно досконалих алмазів на затравці методом температурного градієнта. Використано комп'ютерне моделювання з застосуванням розрахункового методу скінченних елементів. Розглянуто формування розподілу температури та її градієнтів в залежності від параметрів нагрівання електрорезистивних систем, що забезпечують створення і підтримання ростових умов при тисках 6–6,5 ГПа та температурах 1300–1600 °С, та їх залежність від коливань температури повітря, що оточує великогабаритні

складові частини пресових установок; показано, що за рахунок таких процесів температура в ростовому об'ємі може змінюватись в межах $\pm 50^\circ\text{C}$.

Отримані дані дозволили дійти до висновку про необхідність стабілізації температури повітря навколо пресу на рівні $21 \pm 1^\circ\text{C}$, що дозволяє покращити якісні характеристики вирощених монокристалів.

Ключові слова: монокристал алмазу, шестикутний прес, градієнт температури.

Вирощування монокристалів алмаза в умовах термодинамічної стабільності базується на проведенні процесів розчин-розплавної кристалізації при високих тисках та температурах (НРНТ-кристалізація) [1–3]. В останній час широкого застосування знайшли АВТ кубічного типу [4], що дозволили, за рахунок значних величин ростового об'єму (1 дм^3 та більше), отримувати зразки монокристалів з масою до кількох десятків каратів [5, 6]. Однак значна кількість дефектів в таких кристалах, недосконалість гранних форм, висока щільність дислокацій, наявність скелетних форм росту [7, 8] свідчать про необхідність прецизійного керування та підтримання необхідних температурних режимів вирощування протягом часу проведення циклів вирощування, який досягає 200–300 год. При цьому, значний вплив на стабільність процесу вирощування монокристалів алмазу мають навколишні температурні умови. Значні величини маси пресових установок, до 50–80 т, та габарити, що досягають 5–6 м, потребують стабілізації їх теплового стану при здійсненні процесу кристалізації.

Мета даної роботи полягала у визначенні зміни розподілу теплових полів в ростовій

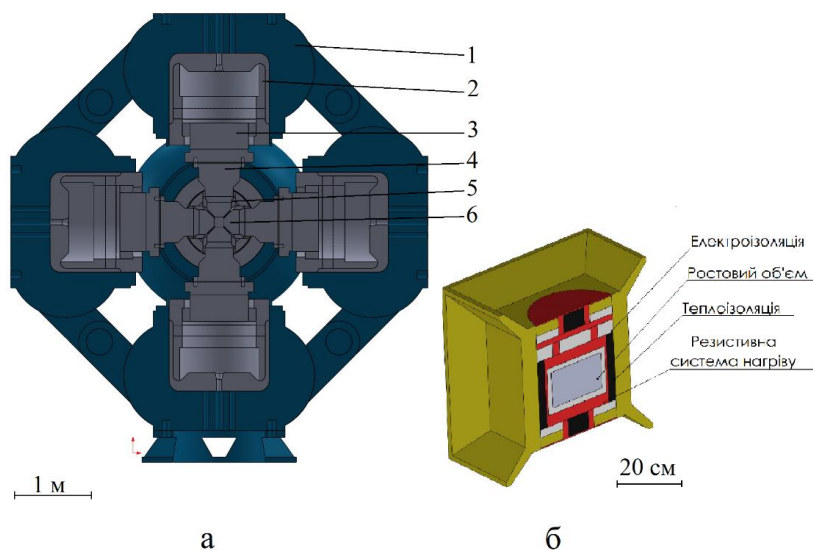


Рис. 1. Зображення перерізів кубічного пресу моделі CS-XII (а) та ростової комірки (б) в розрізі вертикальної симетрії: 1 – шість складових деталей корпусу пресу, в яких розміщено плунжерні пари для передачі зусиль стискування твердосплавним пуансонам, які мають натискні площадки, розміщені паралельно граням кубічного контейнеру; 2 – циліндр високого тиску; 3 – плунжер; 4 – опорні плити; 5 – охолоджуюча обойма з каналами для циркуляції холодоагенту; 6 – твердосплавний пуансон для стискування пірофілітового контейнеру

комірці кубічних апаратів високого тиску та їх вплив на якість монокристалів алмаза в залежності від температури навколишнього середовища.

Визначення розподілу температурних полів в ростових комірках апаратів високого тиску було проведено методом скінченних елементів з застосуванням програмного комплексу Ansys [9]. Комп'ютерне моделювання процесу розігріву виконували для ростових комірок апаратів високого тиску кубічного типу моделі CS-XII з зусиллям 3-х вісного навантаження $6 \times 48,5\text{ МН}$. Використано розрахункові методи визначення розподілу температур, що у порівнянні з експериментальними методами дозволили значно пришвидшити отримання результатів дослідження.

Розрахункова модель дозволила отримати

результати розподілу температури для осьового перерізу по вертикальній осі апарату високого тиску з ростовою коміркою (рис.1, а).

Контейнер високого тиску у формі куба з довжиною ребра 74,5 мм та співвісним отвором циліндричної симетрії з діаметром 58 мм розміщувався між твердосплавними

пуансонами з розмірами нажимної площадки 68×68 мм. Конструкція ростової комірки, що використовувалась для проведення розрахунків, представлена на рис. 1, б.

Розв'язання задачі електропровідності виконано шляхом задання значень електричного потенціалу між верхнім та нижнім пуансонами; бокові пуансони при цьому були ізолювані від системи нагріву. Електричний потенціал на початковому етапі підбирався таким чином, щоб температура в зоні ініціації росту алмаза на затравці складала $\approx 1400^\circ\text{C}$, що обумовлено вимогами до забезпечення термодинамічних параметрів кристалізації, які відповідають області стабільності алмаза [10]. Використані величини електро- та теплофізичних властивостей матеріалів, з яких виготовляються складові контейнеру високого тиску, ростової комірки та елементи апарату високого тиску, описані в [11, 12].

Визначення впливу температури навколишнього середовища на розподіл температур в ростовій комірці проводили розрахунковим та експериментальним шляхами; для цього на ділянках комп'ютерної моделі апарату високого тиску, які контактують з навколишнім середовищем, задавали значення температури в діапазоні $5\text{--}100^\circ\text{C}$, які експериментально вимірювались за умови температури повітря в виробничому приміщенні $5\text{--}35^\circ\text{C}$.

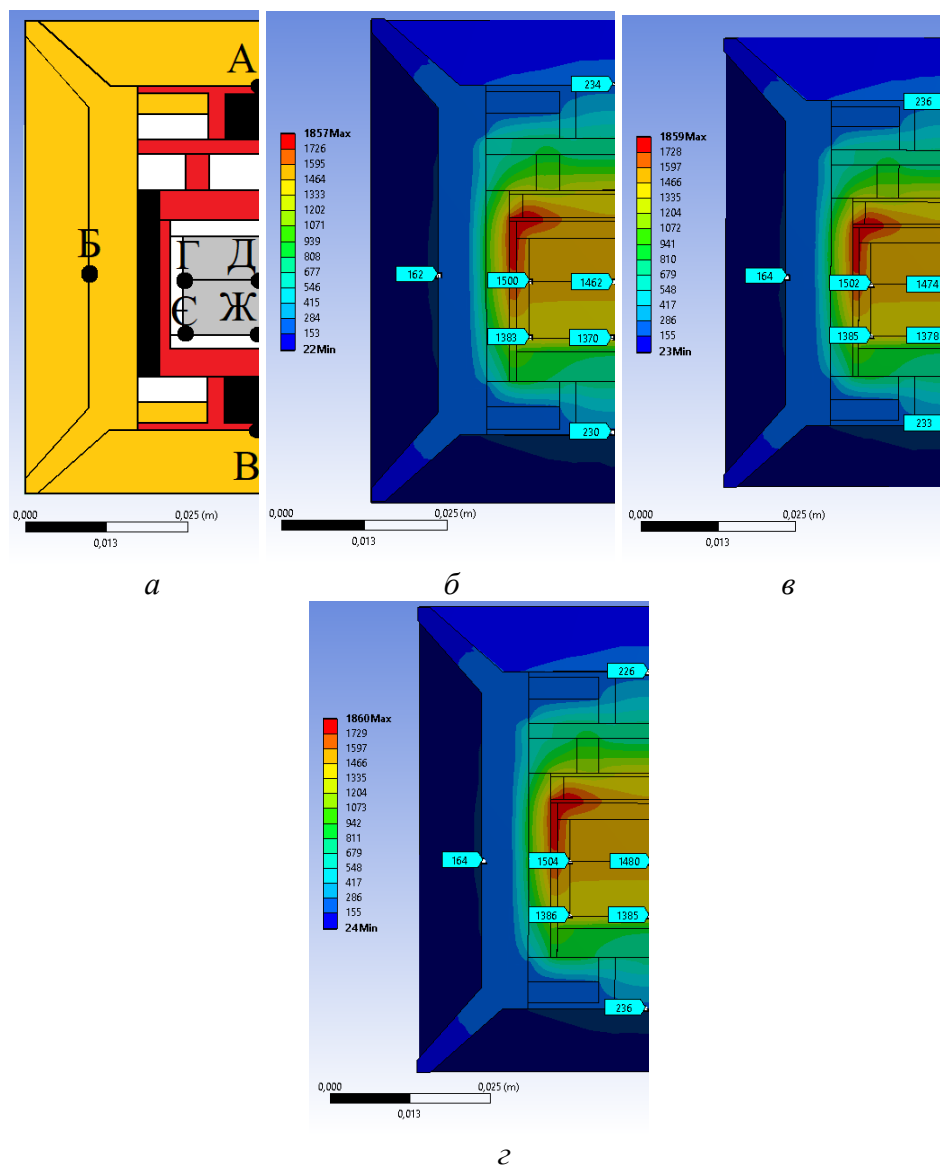


Рис. 2. Змінення розподілу температур в ростовій комірці в залежності від температури навколишнього середовища ($T_{нс}$): а – характеристичні точки ростової комірки для порівняння; б – з $T_{нс}$ дорівнює 5, 10, 15, 20, 25, 30, 35 $^\circ\text{C}$, відповідно

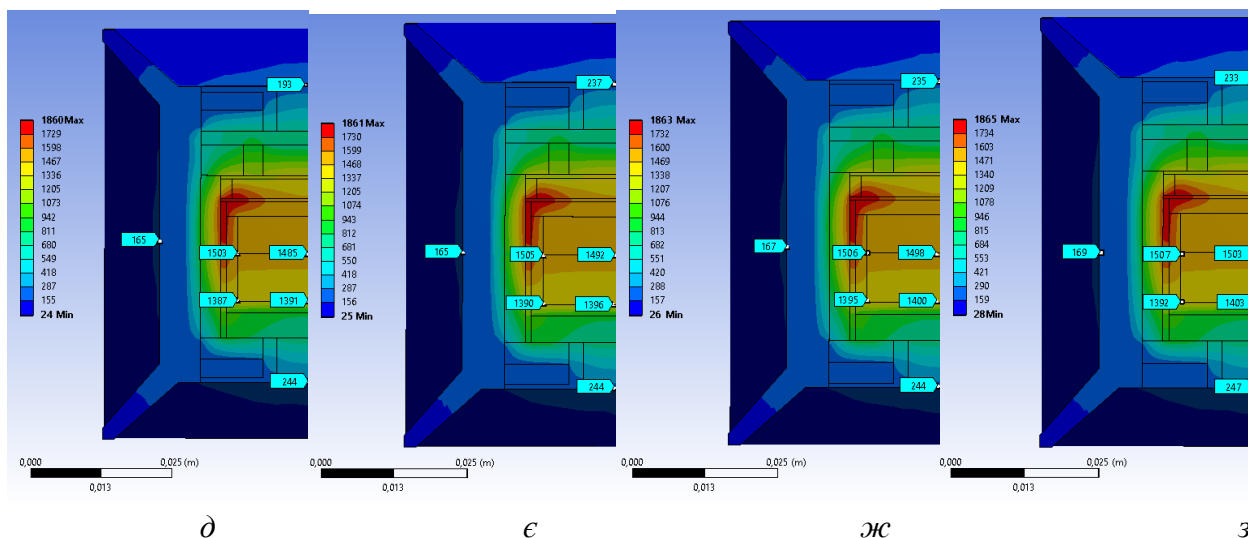


Рис. 2 (закінчення)

Результати розрахунків з впливу температури навколишнього середовища на розподіл температури в ростовій комірці зображені на рис. 2. Контроль температур після проведення розрахунків проводили в характеристичних точках ростової комірки (рис. 2, а). При виборі розміщення характеристичних точок виходили з міркувань контролю зміни температури в місцях контакту контейнера з нажимними площадками твердосплавних пуансонів (т. А, Б, В) та контролю зміни осьового та радіального перепадів температур (т. Г, Д, Є, Ж).

Результати розрахунків показали, що при зміні температури навколишнього середовища $5^{\circ}\text{C} \rightarrow 35^{\circ}\text{C}$ спостерігається поступове підвищення температури по всьому об'єму ростової комірки (рис. 2, б-г): для точок А, Б, В температура підвищується на 18, 7 та 17°C , відповідно (рис. 3, а); для характеристичних точок Г, Д, Є, Ж температура підвищується на 7, 41, 9, 33°C , відповідно (рис. 3, б).

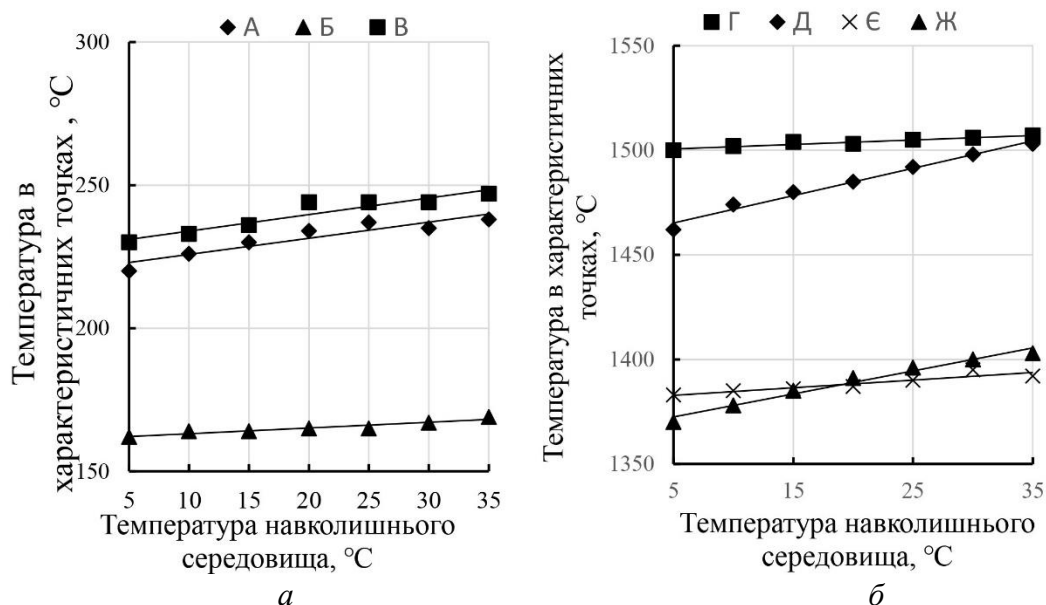


Рис. 3. Залежність зміння температури в характеристичних точках ростової комірки від температури навколишнього середовища ($T_{\text{нс}}$): а – для характеристичних точок А, Б, В; б – для характеристичних точок Г, Д, Є, Ж

Слід відмітити, що при підвищенні T_{nc} відбувається зменшення осьового перепаду температури 100 °C до 82 °C (рис. 4, а); при цьому радіальний перепад температури спочатку зменшується з 13 °C до 0 °C (рис. 4, б) за температури навколишнього середовища ≈ 18 °C з направленням від центру ростового шару (Ж, рис. 2, а) до його периферії (Є, рис. 2, а), а потім збільшується до 11 °C зі зміною напрямку на протилежний від периферії ростового шару до центру, чим пояснюються від'ємні значення на рис. 4, б. В цілому така зміна градієнтів температури в процесі проведення циклів вирощування може негативно впливати на якість монокристалів алмазу і стимулювати появу включень сплаву-розчиннику в монокристалах у зв'язку зі змінням (зменшенням) значень розчинності вуглецю при більш низьких температурах та менших величинах її градієнтів.

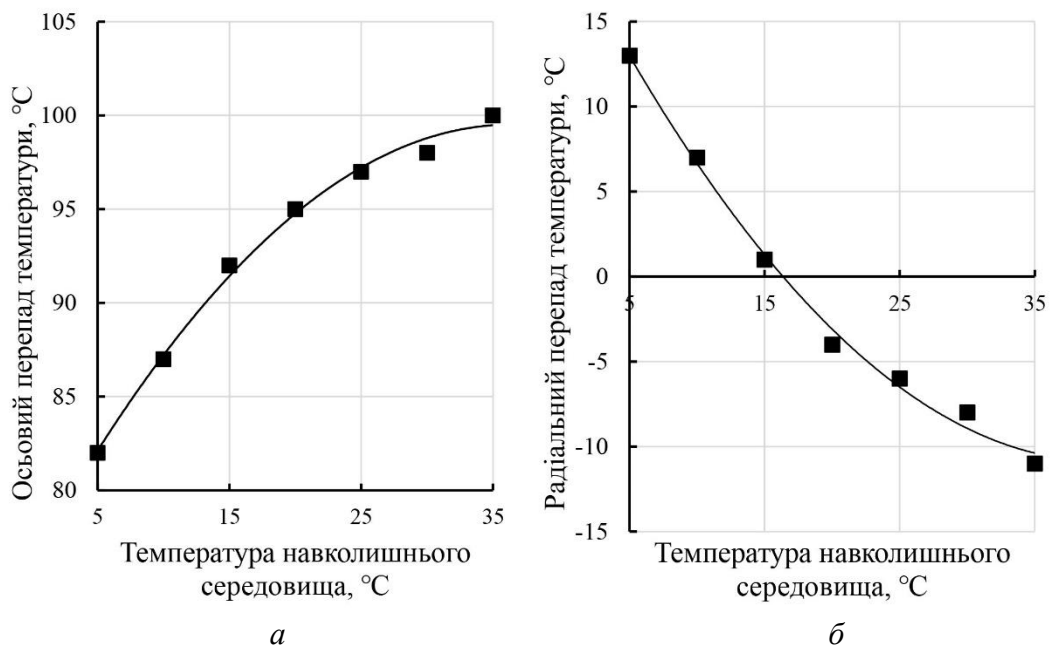


Рис. 4. Зміння осьового (а) та радіального (б) перепадів температур в залежності від температури навколишнього середовища

Таким чином, моделювання закономірностей формування теплового стану в шестипуансонних АВТ з ростовою коміркою дозволяє визначити, що коливання температури навколишнього середовища може суттєво змінювати умови вирощування кристалів. Це особливо стосується тих умов росту, які створюються при використанні керування пресом за допомогою каліброваної потужності електричного струму. У цьому випадку моделювання дозволяє зробити оцінку величини теплообміну (прес CS-XII, $D = 750$ мм) з навколишнім середовищем і встановити, що нагрівання оточуючого повітря з 5 до 35 °C може привести до підвищення температури у ростовому середовищі на величину $\Delta T = 45$ °C та зміння величин осьових та радіальних перепадів температур у межах 10–20 °C.

Отримані результати дозволили прийти до висновку про безперечну доцільність стабілізації температурних умов навколо ростової установки та створенню умов її термостатування при тривалій роботі. Оптимальним для функціонування пресових установок з метою вирощування структурно досконалих монокристалів алмазу буде створення умов, в яких температура оточуючого повітря стабілізована на рівні нормальних значень роботи пресової установки та обслуговуючого персоналу, але вона не повинна перевищувати значення 21 ± 1 °C. Робота пресових установок при температурах нижче вказаної межі призводить до утворення роси на деталях пресу – контактуючих поверхнях

пуансони/перехідні плити/плунжери, через які відбувається передача зусиль стиснення. Ефект утворення роси і присутність вологи на контактних поверхнях натискних деталей дає можливість утворення окисних плівок заліза (іржі), що з часом може змінити умови теплообміну і характеристики нагріву складових конструкцій АВТ зі значною втратою точності керування процесом вирощування. З другого боку, підтримання температури оточуючого повітря вище значення 21 ± 1 °C знижує ефективність роботи холодоагенту в охолоджуючому контурі.

Таким чином, при експлуатації шестипуансонних пресових установок великого об'єму, що використовуються для кристалізації структурно досконалих алмазів, температурні умови навколишнього середовища повинні строго контролюватись з метою забезпечення стабільного значення $T_{nc} = 21 \pm 1$ °C.

Дана робота виконана за підтримки Національного Фонду Досліджень України, проєкт № 2020.02/0160 «Розробка нових розчинників вуглецю для вирощування монокристалів алмаза в області термодинамічної стабільності з контрольованим вмістом домішок азоту та бору з ціллю створення концептуальних конструкцій електронних приладів»

A.A. Burchenia, V.V. Lysakovskiy, S.O. Ivakhnenko, T.V. Kovalenko, S.O. Gordieiev

V.N. Bakul Institute for Superhard Materials of National Academy of Science of Ukraine

OPTIMIZATION OF THE AMBIENT TEMPERATURE AROUND SIX-PUNCH HIGH-VOLUME APPARATUS TO COMPRESSION CELL FOR DIAMOND SINGLE CRYSTALS CRYSTALLIZATION

The influence of changes in ambient temperature around six-punch press on the formation of growth condition for growing structurally perfect diamond single crystals by temperature gradient method is studied in this work. Computer simulation of finite element method was used to obtain pictures of temperature distribution inside of growth volume. The formation of temperature distribution and its gradients depending on growth conditions at pressure 6–6.5 GPa and temperature 1300–1600 °C and their dependence on heating–cooling of air surrounding large press components was studied. It was shown that the temperature in the growth container can vary within ± 50 °C.

Obtained data allowed us to conclude that it is necessary to stabilize air temperature around press at the level of 21 ± 1 °C, which allows to improve quality of the grown diamond single crystals.

Key words: diamond single crystal, six-punch press, temperature gradient.

А.В. Бурченя, В.В. Лысаковский, С.А. Ивахненко, Т.В. Коваленко, С.А. Гордеев

Институт сверхтвердых материалов им. В.Н. Бакуля НАН Украины

ОПТИМИЗАЦИЯ ТЕМПЕРАТУРЫ ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЫ ДЛЯ РАБОТЫ ШЕСТИПУАНСОННЫХ ПРЕССОВЫХ УСТАНОВОК ПРИ КРИСТАЛЛИЗАЦИИ МОНОКРИСТАЛЛОВ АЛМАЗА В РОСТОВЫХ ЯЧЕЙКАХ БОЛЬШОГО ОБЪЕМА

В работе проведено исследование влияния температуры воздуха вокруг шестипуансонных прессов на ростовые условия для выращивания структурно совершенных монокристаллов алмаза на затравке методом температурного градиента. Использовано компьютерное моделирование с применением расчетных методов конечных элементов. Рассмотрено формирование распределения температуры и ее градиентов в зависимости от параметров нагрева электрорезистивных систем, которые обеспечивают создание и поддержание ростовых условий при давлениях 6–6,5 ГПа и температурах 1300–1600 °C, и их зависимость от колебаний температуры воздуха, который окружает крупногабаритные составные части прессовых установок; показано, что за счет таких процессов температура в ростовом объеме может изменяться в пределах ± 50 °C.

Полученные данные позволили прийти к выводу про необходимость стабилизации температуры воздуха вокруг пресса на уровне 21 ± 1 °C, что позволяет улучшить качественные характеристики выращенных монокристаллов.

Ключевые слова: монокристалл алмаза, шестигуансонный пресс, градиент температуры.

Література

1. Strong H. M., Hanneman R. E. Crystallization of diamond and graphite // J. Chem. Phys. – 1967. – V. 46, N 9. – P. 3668–3676.
2. Nassau K., Nassau J. The history and present status of synthetic diamonds // Journal of Crystal Growth. – 1979. – N 46. – P. 157–172.
3. Синтетические сверхтвердые материалы: В 3-х т. Т. 1. / Редкол.: Новиков Н.В. (отв. ред.) и др. – К.: Наукова думка. – 1986. – 280 с.
4. Сайт компанії з виробництва кубічних пресів «Gulin guiye machinery Co., Ltd» [Електронний ресурс]. – Режим доступу: <https://glguiye.en.made-in-china.com/Product-Catalogs>.
5. H. Sumiya, K. Harano, K. Tamasaku, HPHT synthesis and crystalline quality of large high-quality (001) and (111) diamond crystals // Diamond and Related Materials. – 2015. – V. 58. – P. 221–225.
6. Khokhryakov A. F., Yu. N. Palyanov, Igor N. Kupriyanov, Yu. M. Borzdov, Sokol A. G., Härtwig J., Masiello F. Crystal growth and perfection of large octahedral synthetic diamonds // Journal of Crystal Growth. – 2011. – V. 317, N 1 – P. 32–38.
7. Lysakovskiy V.V., Ivakhnenko S.O., Kvasnytsky V.M., Burchenia A.V., Kovalenko T.V., Bovsunivskiy O.V. Features of morphogenesis of diamond single crystals more than 2 carats grown by temperature gradient method // Journal of Crystal Growth. – 2020. – V. 550. – 125890.
8. Katrusha A. N. Fabrication and properties of ultra-large type IIa colorless synthetic diamonds / 28th International Conference on Diamond and Carbon Materials (3–7 September, 2017), Goteburg, Sweden. – P. INV11.
9. Бруйка В.А. Инженерный анализ в Ansys Workbench: учеб. пос. – Самар: Гос. техн. ун-т, 2008. – 271 с.
10. Верещагин Л.Ф., Яковлев Е.Н., Бучнев Л.М., Дымов Б.К. Условия термодинамического равновесия алмаза с различными углеродными материалами // Теплофизика высоких температур. – 1977. – № 2. – С. 316–321.
11. Свойства конструкционных материалов на основе углерода: Справ. / под ред. В.П. Соседова. – М.: Металлургия. 1975. – 336 с.
12. Теплопроводность твердых тел: Справ. / Под ред. В.С. Охотина. – М.: Энергоатомиздат. 1984. – 320 с.

Надійшла 29.06.21

Reference

1. Strong, H. M. & Hanneman, R. E. (1967). Crystallization of diamond and graphite *J. Chem. Phys.*, 46, 9, 3668–3676.
2. Nassau, K. & Nassau, J. (1979). The history and present status of synthetic diamonds *Journal of Crystal Growth*, 46, 2, 157–172.
3. Aleshin, V. H., Andreev, V. D., Bohatireva, H. P. et al. (1986). *Sinteticheskie sverhtverdie materiali [Synthetic superhard materials]* N. V. Novikov (Ed.). (Vols. 1–3). Kyiv: Naukova Dumka [in Russian].

4. Sait kompanii z vyrobnytstva kubichnykh presiv «Gulin guiye machinery Co., Ltd» [Site of company that produce cubic presses «Gulin guiye machinery Co., Ltd»]. *glguiye.en.made-in-china.com*. Retrieved from <https://glguiye.en.made-in-china.com/Product-Catalogs>.
5. Sumiya, H., Harano, K., & Tamasaku, K. (2015). HPHT synthesis and crystalline quality of large high-quality (001) and (111) diamond crystals. *Diamond and Related Materials*, 58, 221–225.
6. Khokhryakov, A. F., Palyanov, Y. N., Kupriyanov, I. N., et. al. (2011). Crystal growth and perfection of large octahedral synthetic diamonds. *Journal of Crystal Growth*, 317, 1, 32–38.
7. Lysakovskiy, V. V. Ivakhnenko, S. O., Kvasnytsya, V. M., et. al. (2020). Features of morphogenesis of diamond single crystals more than 2 carats grown by temperature gradient method. *Journal of Crystal Growth*, 550, 125890.
8. Katrusha, A. N. (2017). Fabrication and properties of ultra-large type IIa colorless synthetic diamonds. Proceedings from Diamond and Carbon Materials'17: 28th International Conference (3–7 September, 2017). (p. INV11). Goteburg, Sweden.
9. Buryakova V. A. (2008). *Inzheneranii analiz v Ansys Workbench [Engineer analysis in Ansys Workbench]*. Samara: Samarskiy gos. tehn. un-t. [in Russian].
10. Verezchahin, L. F., Yakovlev, E. N., Buchnev, L. M. et. al. (1977). Usloviia termodinamicheskoho ravnovesiia almaza s razlichnimi uhlerodnimi materialami [Conditions of thermodynamic equilibrium of diamond with various carbon materials] *Thermal physics of high temperatures*, 2, 316–321. [in Russian].
11. Sosedov V.P. (Eds.). (1975). *Svoistva konstruktivnykh materialov na osnove uhleroda [Properties of constructional materials based on carbon]*. Moskow: Metalurgiya [in Russian].
12. Okhotin V.S. (Eds.). (1984). *Teploprovodnost tverdykh tel [Thermal conductivity of solid states]*. Moskow: Nauka [in Russian].

УДК 004.94:539.893:539.4

DOI: 10.33839/2708-731X-24-1-159-168

С. Б. Полотняк, канд. техн. наук; **О. О. Лещук**, д-р техн. наук;
С. О. Івахненко, чл.-кор. НАН України; **О. О. Заневський**, канд. хім. наук;
О. В. Савіцький, асп.; **С. О. Гордєєв**, мол. наук. спів.

*Інститут надтвердих матеріалів ім. В. М. Бакуля НАН України, вул. Автозаводська, 2,
04074 Київ, e-mail: psb@ism.kiev.ua*

ЧИСЕЛЬНЕ МОДЕЛЮВАННЯ ВПЛИВУ ФІЗИКО-МЕХАНІЧНИХ ХАРАКТЕРИСТИК МАТЕРІАЛУ ПУАНСОНІВ ШЕСТИПУАНСОННОГО КУБІЧНОГО АПАРАТА ВИСОКОГО ТИСКУ НА РІВЕНЬ ДОСЯЖНОГО ТИСКУ ТА ГРАНИЧНИЙ СТАН ПУАНСОНІВ

Метою роботи є визначення впливу фізико-механічних властивостей матеріалу пуансонів на рівень згенерованого тиску в шестипуансонному кубічному апараті та граничний стан пуансонів. Проведено комп'ютерне моделювання з використанням методу скінченних елементів процесу стиснення пірофілітового контейнера між пуансонами із вольфрам-кобальтових твердих сплавів ВК6, NF, HB02UF та KF308 і досліджено напружено-деформований і граничний стани контейнера і пуансонів в процесі деформування. Рекомендовано використовувати пуансони із зарубіжних сплавів марок KF308, HB02UF та NF, що забезпечують міцність апарата за тиску 5–7 ГПа.

Ключові слова: апарат високого тиску, комп'ютерне моделювання, границя плинності, тиск, напружено-деформований стан.