

УДК 004.942:62-978

**А. А. Лещук**, д-р техн. наук; **В. В. Лысаковский**, **М. А. Серга**, кандидаты технических наук; **С. А. Гордеев**, **Т. А. Псярнецкая**, **В. В. Нагорный**, **Т. С. Панасюк**, **В. А. Каленчук**,  
**А. В. Бурчя**, **О. С. Гуцу**

*Институт сверхтвердых материалов им. В. Н. Бакуля НАН Украины, г. Киев*

## **МОДЕЛИРОВАНИЕ ТЕМПЕРАТУРНЫХ ПОЛЕЙ ПРИ ИЗМЕНЕНИИ СИСТЕМЫ НАГРЕВА В АВД ТИПА «ТОРОИД»**

*Проведены расчеты температурных полей в реакционной ячейке АВД типа «тороид» ТС-40, в результате которых определена конфигурация и оптимизированы размеры графитовых нагревателей реакционных ячеек, обеспечивающих необходимое распределение температуры в ростовом объеме при выращивании кристаллов алмаза методом температурного градиента.*

**Ключевые слова:** алмаз, высокое давление, поле температуры, аппарат высокого давления, компьютерное моделирование.

В настоящее время выращивание монокристаллов алмаза в области термодинамической стабильности методом температурного градиента является основным методом получения крупных кристаллов технического назначения, предназначенных для использования в электронике, лазерной технике, прецизионной обработке материалов.

Определение температурных полей в аппарате высокого давления (АВД) при синтезе сверхтвердых материалов методами экспериментальной термометрии является достаточно трудоемким. Применение методов компьютерного моделирования дает возможность получать достаточно полную картину распределения температуры в объеме в зависимости от применяемой конструкции резистивной системы нагрева. Целесообразность такого подхода для определения распределения температуры в ячейке высокого давления неоднократно доказана при решении широкого класса задач повышения эффективности процессов создания новых сверхтвердых материалов и изделий на их основе [1, 2].

Целью настоящей работы было компьютерное моделирование тепловых полей при изменении конструкции резистивной системы нагрева ростовых ячеек для аппарата высокого давления (АВД) типа «тороид» ТС-40. На основе полученных расчетных данных выполняли оптимизацию формы и размеров нагревательной резистивной системы и зависящих от нее конфигурации температурного поля и значений градиентов температуры в ростовом объеме с последующим применением рассчитанных схем нагрева для проведения экспериментов по выращиванию алмазов типа Па.

Схема ростовой ячейки с контейнером, использованной для расчетов и экспериментов, показана на рис. 1. Резистивная система ячейки представляет собой электрическую цепь проводников и резисторов (6–8, 10), при этом основными элементами для нагрева ячейки и определения конфигурации температурного поля и значений градиентов температуры являются торцевые нагреватели 6 и цилиндрический резистор 10.

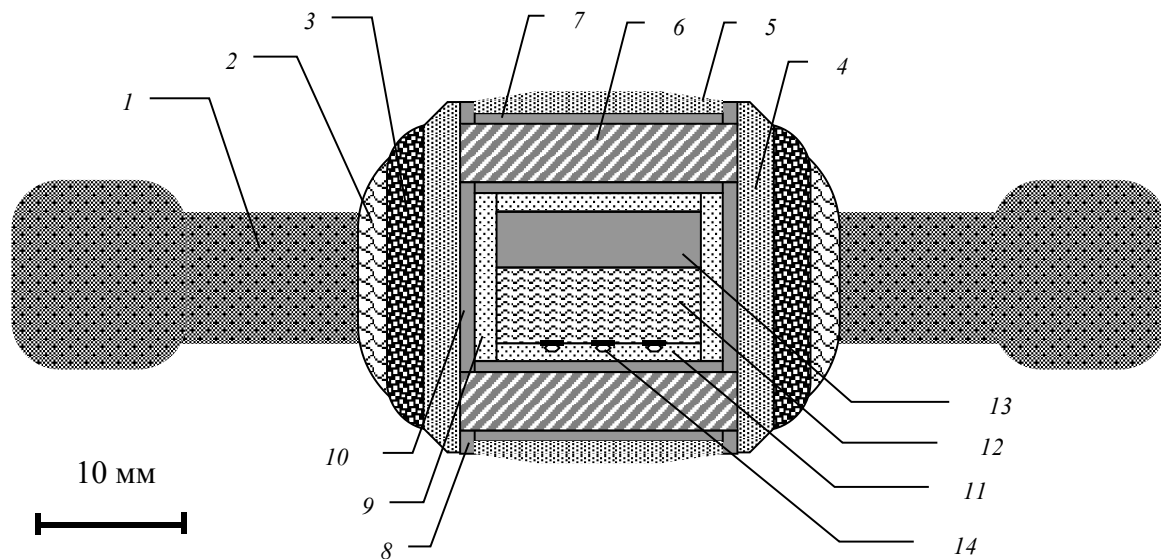


Рис. 1. Ячейка высокого давления АД типа «тороид» ТС-40: 1 – тороидальное кольцо (литографский камень); 2 – внешняя втулка (литографский камень); 3 – внешняя теплоизоляционная втулка (пирофиллит); 4 – внутренняя теплоизоляционная втулка (хлорид цезия); 5 – теплоизоляционный диск (хлорид цезия); 6 – нагревательный элемент (смесь диоксида циркония и графита); 7 – токопроводящий диск (графит); 8 – тоководы (графит); 9 – изоляционная втулка (хлорид цезия); 10 – трубчатый нагревательный элемент (графит); 11 – изоляционные диски (хлорид цезия); 12 – металл-растворитель; 13 – источник углерода (графит); 14 – система ориентированных затравок с барьерным слоем

Ранее экспериментально было установлено, что в ростовом объеме используемых ячеек высокого давления необходимо создавать значения перепада температуры  $\sim 50$  °С, обеспечивающих величины градиентов температуры 4–18 °С/мм. При изготовлении торцевых нагревателей 6 из мелкодисперсных композиционных материалов с различным содержанием электропроводной и электроизоляционной компонент [3] эти требования достаточно легко выполнить, задавая соотношение их концентрации в пределах 6–12 и 88–94 об. % (для нижнего и верхнего нагревателей соответственно). Однако стабильность работы торцевых нагревателей оказывается недостаточно высокой по причине сложности воспроизведения их структуры за счет отклонения от однородности состава при смешивании и прессовании мелкодисперсных частиц (15–30 мкм), особенно для материалов с сильно различающимися значениями плотности.

С целью улучшения стабильности создания температуры и замены дисперсно-композиционных материалов торцевых нагревателей 6 были использованы кольцевые нагреватели из графита, конфигурация которых, определялась наружным, внутренним диаметрами и высотой –  $D$ ,  $d$  и  $h$  (рис. 2). Варьируя значениями  $D$ ,  $d$  и  $h$ , возможно задавать различные распределения тепловыделения в объеме при пропускании переменного электрического тока через ячейку и таким образом получать необходимые температурное поле и величины осевых и радиальных градиентов температуры.

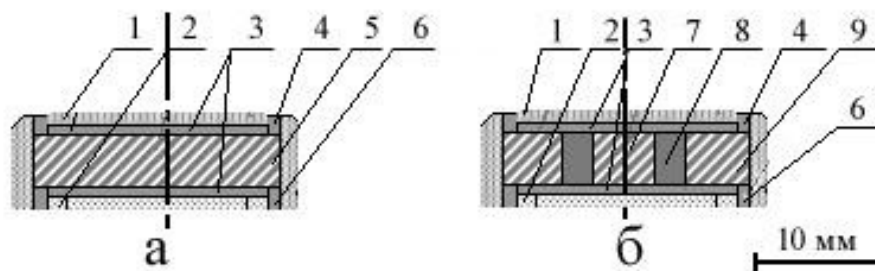


Рис. 2. Схема замены дисперсно-композиционных нагревательных элементов (а) на кольцевые графитовые нагреватели (б): 1 – теплоизоляционный диск; 2 – изоляционные диски; 3 – токопроводящий графитовый диск; 4 – токоввод; 5 – нагревательный элемент из дисперсно-композиционного материала (смесь диоксида циркония и графита); 6 – трубчатый нагревательный элемент; 7 – теплоизоляционный диск; 8 – кольцевой нагревательный элемент; 9 – теплоизоляционное кольцо

Путем компьютерного моделирования температурных полей в ростовой ячейке были определены конфигурация и размеры кольцевых графитовых нагревателей, обеспечивающих необходимое распределение температуры при выращивании монокристаллов алмаза на затравке. Поля температуры в АД моделировали с помощью методики конечно-элементного решения связанной задачи электро- и теплопроводности [1, 2]. Математическая формулировка такой задачи приведена в [4]. Постановка задачи электро- и теплопроводности для конкретной конструкции АД типа «тороид» ТС-40 включала в себя конечно-элементную дискретизацию аппарата, формулирование условий электроподвода к АД, формулирование условий теплообмена аппарата с окружающей средой и системой охлаждения, задание температурных зависимостей коэффициентов электро- и теплопроводности используемых материалов.

Учитывая осевую симметрию АД и граничных условий на его поверхности, при расчетах рассматривали 1/2 часть поперечного сечения аппарата, которая была дискретизирована на 8484 треугольных элемента, соединенных между собой в 4353 узлах. В области реакционной ячейки, где имеют место максимальные градиенты электрического потенциала и температуры, было проведено сгущение конечно-элементной сетки. На эту область приходится около 80 % элементов и узлов.

При решении задачи электро- и теплопроводности задавали следующие граничные условия:

- на поверхностях верхней и нижней подкладных плит: значения электрического потенциала подбирали таким образом, чтобы расчетная температура в характеристической точке ростового объема (центр нижней поверхности сплава-растворителя) составляла ~ 1400 °С; значение температуры – 40 °С;

- на участках внешней поверхности аппарата, охлаждаемых воздухом: нулевое значение плотности тока, что соответствует условию электроизоляции; конвективный теплообмен с воздухом – коэффициент теплоотдачи  $\alpha = 50 \text{ Вт}/(\text{м}^2 \cdot \text{°С})$ , температура окружающей среды  $\Theta = 30 \text{ °С}$ ;

- на участках внешней поверхности аппарата, охлаждаемых водой: нулевое значение плотности тока; конвективный теплообмен с водой –  $\alpha = 7600 \text{ Вт}/(\text{м}^2 \cdot \text{°С})$ ,  $\Theta = 20 \text{ °С}$ .

Для расчетов использовали электро- и теплофизические свойства материалов, приведенные в [5].

Расчитаны различные схемы нагрева ростового объема с применением кольцевых нагревателей (см. рис. 2, б) при одновременном варьировании геометрических размеров элементов реакционной ячейки (рис. 3–5).

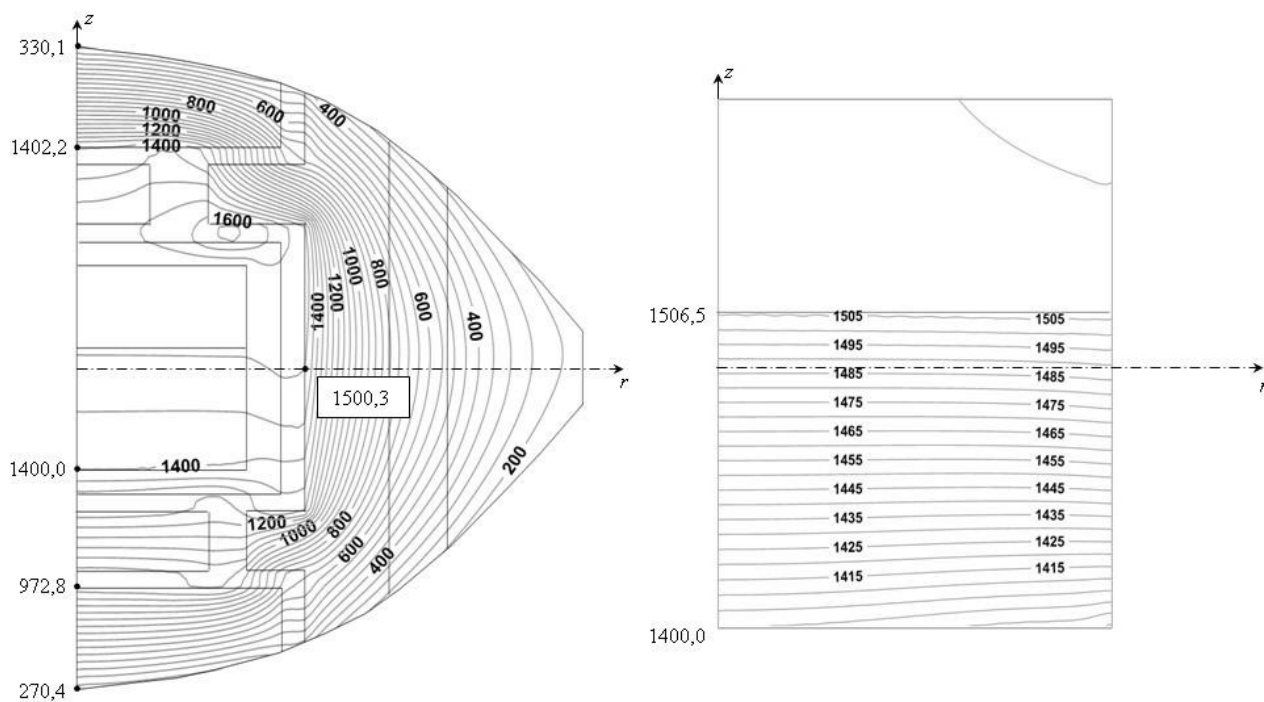


Рис. 3. Распределение температуры в реакционной ячейке АД типа «тороид» ТС-40 с кольцевыми графитовыми нагревательными элементами для площади сечения верхнего кольцевого нагревательного элемента  $0,6 \text{ см}^2$ ,  $D=10,5 \text{ мм}$ ,  $d=5,5 \text{ мм}$

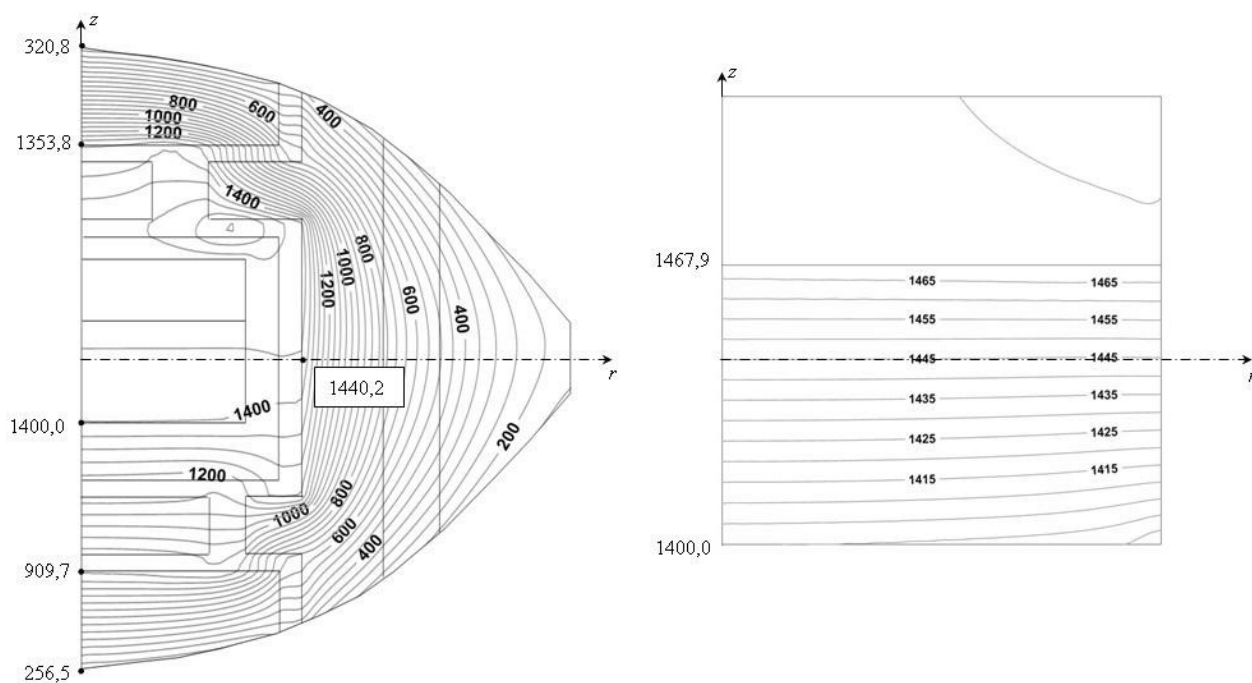


Рис. 4. То же, что на рис. 3 для площади сечения верхнего кольцевого нагревательного элемента  $0,7 \text{ см}^2$ ,  $D=11,0 \text{ мм}$ ,  $d=5,5 \text{ мм}$

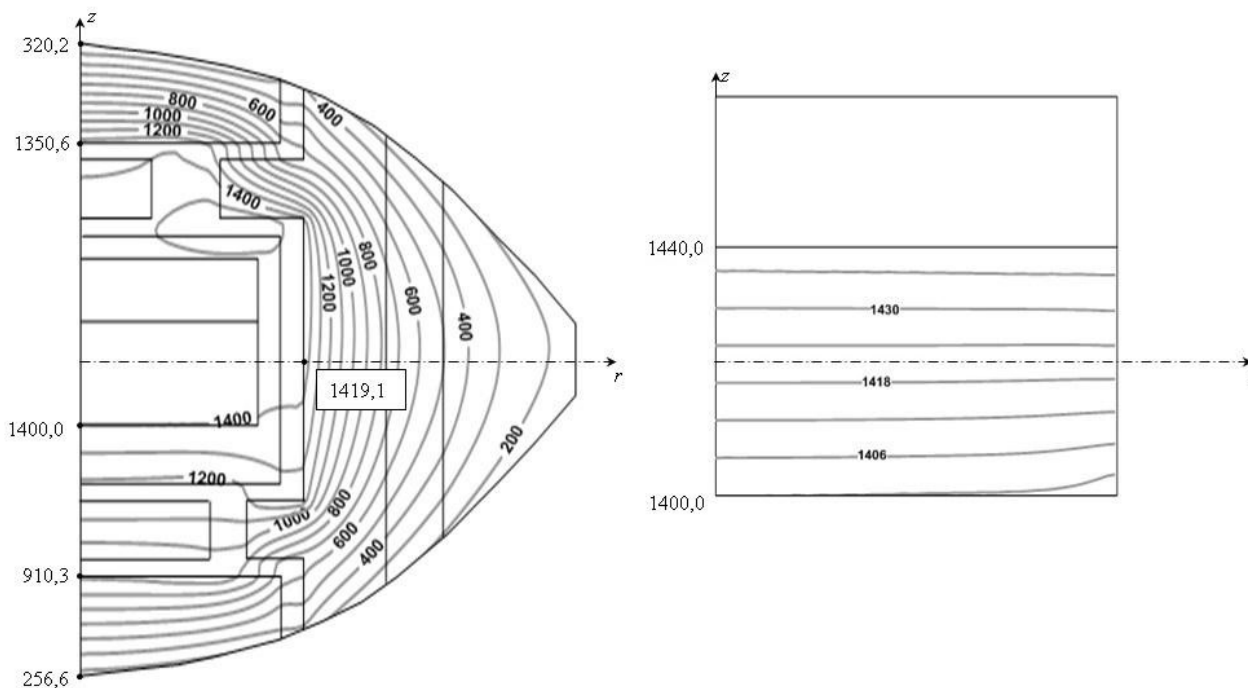


Рис. 5. То же, что на рис. 3 для площади сечения верхнего кольцевого нагревательного элемента  $0,8 \text{ см}^2$ ,  $D=11,5 \text{ мм}$ ,  $d=5,0 \text{ мм}$

Расчеты показали, что изменение линейных размеров кольцевых нагревателей приводит к существенным изменениям тепловых полей в реакционном объеме. Так, если площадь сечения верхнего кольцевого нагревательного элемента составляет менее чем  $0,6 \text{ см}^2$ ,  $D=10,5 \text{ мм}$ ,  $d=5,5 \text{ мм}$  (см. рис. 3), значение перепада температуры достигает  $100 \text{ }^\circ\text{C}$  и более.

Для случая, когда площадь сечения верхнего кольцевого нагревательного элемента превышает значение  $0,8 \text{ см}^2$ ,  $D=11,5 \text{ мм}$ ,  $d=5,0 \text{ мм}$  (см. рис. 5), перепад температуры в реакционном объеме составляет  $40 \text{ }^\circ\text{C}$ . Хороший эффект, заключающийся в параллельности изотермических поверхностей к плоскости расположения затравок, однородности осевого градиента практически по всей высоте растворителя и близком к нулю его значению, достигается при использовании резистивной системы, площадь сечения верхнего кольцевого нагревательного элемента которой составляет  $0,7 \text{ см}^2$ ,  $D=11,0 \text{ мм}$ ,  $d=5,5 \text{ мм}$  (см. рис. 4). Как видно из результатов расчетов, такие соотношения площади сечения и диаметров верхнего и нижнего нагревательных элементов позволяет создать в реакционном объеме перепад температур порядка  $68 \text{ }^\circ\text{C}$ , что является близким к требуемому значению, обеспечивающемуся ранее используемыми композиционными нагревательными элементами (рис. 6).

Сравнение результатов моделирования тепловых полей для ростовых ячеек с кольцевыми нагревателями (см. рис. 3–5) с данными для резистивных элементов из дисперсно-композиционных материалов (см. рис. 6) показывает, что нагрев ячейки с помощью кольцевых нагревателей позволяет достаточно легко обеспечить, с конструктивной точки зрения, требуемые условия для выращивания алмазов на затравке методом Стронга-Венторфа [6, 7].

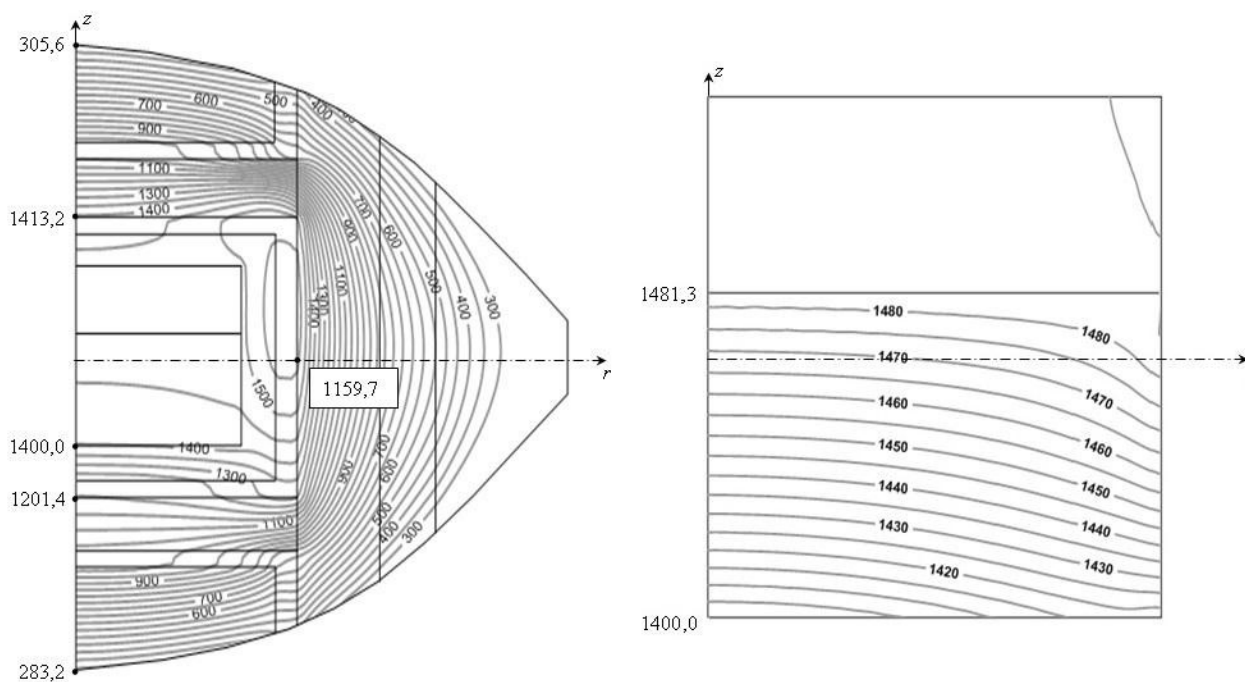


Рис. 6. Распределение температуры в реакционной ячейке АД типа «тороид» ТС-40 с композитным нагревательным элементом для сборки ячейки высокого давления, представленной на рис. 1

Практические испытания разработанных кольцевых резистивных элементов различной конфигурации для реакционных ячеек показали значительное улучшение качества выращиваемых кристаллов, а также стабильность и повторяемость результатов. Для выращивания монокристаллов алмаза в области термодинамической стабильности алмаза были использованы сплав-растворитель Fe–Al и источник углерода на основе графита с минимальным содержанием азота. Процесс выращивания монокристаллов проводили при давлении  $6 \pm 0,2$  ГПа в температурном диапазоне  $(1400–1450) \pm 5$  °С. Сплавы-растворители заданного состава были получены методом вакуумно-индукционной плавки компонентов с последующим формированием слитков разливом в чугунные изложницы необходимого диаметра; из полученных слитков вырезали образцы сплавов диаметром 15 мм. Затравочная система состояла из 1–3 алмазных затравок. В качестве затравок применялись монокристаллы алмаза размером 0,4–0,5 мм, полученные путем спонтанной кристаллизации, которые ориентировали к сплаву-растворителю гранью куба с изоляцией от него барьерным слоем платины толщиной порядка 0,02 мм. Длительность циклов выращивания составляла 100–150 часов. После цикла выращивания монокристаллы извлекались из затвердевшего расплава путем раскалывания или, при необходимости, химического травления в неорганических кислотах  $\text{H}_2\text{SO}_4\text{--HCl--HNO}_3$ .

На рис. 7 представлены результаты четырех последовательно проведенных экспериментов. Все выращенные кристаллы имеют высокое структурное совершенство и кубоктаэдрический габитус (соотношение площадного развития граней куба и октаэдра 50/50); некоторые кристаллы имеют включения металла-растворителя размером 0,2–0,5 мм в периферической области.

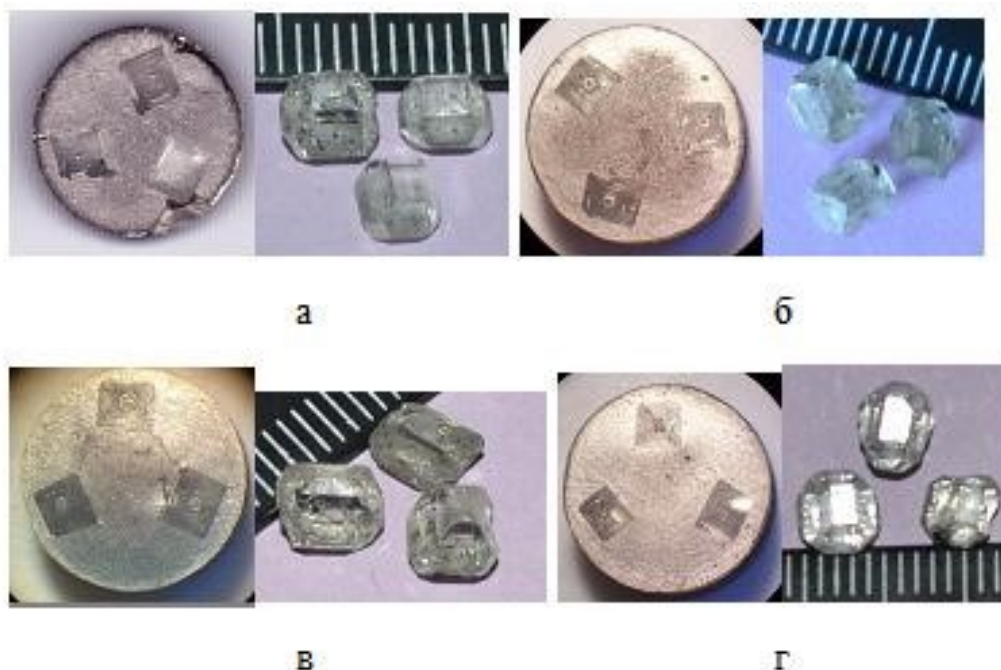


Рис. 7. Монокристаллы алмаза, выращенные при использовании резистивной системы нагрева с кольцевыми нагревательными элементами: а) – алмазы массой 0,8, 0,86 и 1,1 карата в сплаве-растворителе и после их извлечения (продолжительность цикла выращивания 110 часов); б) – 0,75, 0,79 и 0,82 карата (105 часов); в) – 1,1, 1,21 и 1,28 карата (150 часов); г) – 0,69, 0,78 и 0,88 карата (100 часов)

Проведенные исследования позволяют сделать следующие выводы:

- применение кольцевых графитовых нагревателей в схеме нагрева ячеек высокого давления для выращивания алмаза на затравках методом температурного градиента позволяет получить в ростовом объеме необходимое распределение температуры;
- изменение линейных размеров кольцевых нагревателей приводит к изменениям значений градиентов температуры в широких пределах без конструктивного изменения состава резистивной цепи нагрева; в том случае, когда площадь сечения верхнего кольцевого нагревательного элемента последовательно увеличивать с 0,6 до 0,8 см<sup>2</sup>, значение перепада температуры в реакционном объеме уменьшается от 100 до 40 °С;
- применение кольцевых резистивных элементов различной конфигурации для ростовых ячеек позволяет значительно улучшить качественные показатели выращиваемых кристаллов, стабильность и повторяемость результатов.

*Проведені розрахунки температурних полів у реакційній комірці АВТ типу «тороїд» ТС-40, в результаті яких визначена конфігурація і оптимізовані розміри графітових нагрівачів реакційних комірок, що забезпечують необхідний розподіл температури в ростовому об'ємі при вирощуванні кристалів алмазу методом температурного градієнту.*

**Ключові слова:** алмаз, високий тиск, температурне поле, апарат високого тиску, комп'ютерне моделювання.

*Temperature fields in the reaction cell of TS-40 type high-pressure apparatus have been calculated which have resulted in determination of configuration and optimization of dimensions of reaction cell graphite heaters, providing the required temperature distribution in the growth volume at growing diamond crystals by temperature gradient method.*

**Key words:** *diamond, high pressure, temperature field, high-pressure apparatus, computer modeling.*

### Литература

1. *Lyeshchuk O.* Computational modeling of superhard materials synthesis // *Comp. Mater. Sci.* – 2010. – **49**, N 1S. – P. 85–94.
2. *Lyeshchuk O. O., Polotniak S. B., Novikov M. V.* Thermomechanical approach to the modeling of HP–HT material processing // *J. Phys.: Conf. Ser.* – 2012. – **377**. – 012095.
3. *Патент на винахід № 200512707, Україна, МПК В01J 3/06, H05B 3/12.* Шихта для виготовлення нагрівача комірки високого тиску / В. В. Лисаковський, С. О. Івахненко, І. С. Білоусов, А. І. Марков. – Опубліковано 15.01.2007. – Бюл. № 1.
4. *Панасюк Т. С., Лещук А. А., Лысаковский В. В. и др.* Компьютерное моделирование условий кристаллизации алмаза в аппаратах высокого давления большого объема // *Породоразрушающий и металлообрабатывающий инструмент – техника и технология его изготовления и применения: Сб. науч. тр. – Киев: Ин-т сверхтв. материалов им. В. Н. Бакуля НАН Украины, 2013. – Вып. 16. – С. 251–257.*
5. *Лещук А. А.* Термомеханика спонтанной кристаллизации алмазов в аппаратах высокого давления: дис. ... д-ра техн. наук. – К., 2004. – 324 с.
6. *Strong H. M., Wentorf R. H.* The growth of large diamond crystals // *J. Naturwissenschaften.* – 1972. – **59**, N 1. – P. 1–7.
7. *Wentorf R. H.* Some studies of diamond growth rates // *J. Phys. Chem.* – 1971. – **75**, N 12. – P. 1833–1837.

*Поступила 12.06.14*

УДК 621.762.5, 004.94

**С. М. Коновал**, канд. техн. наук

*Институт надтвердых материалов им. В.М. Бакуля НАН Украины, м. Київ*

### **ВИВЧЕННЯ ДИНАМІКИ ТЕМПЕРАТУРНОГО ПОЛЯ В РОБОЧОМУ ОБ'ЄМІ АПАРАТІВ ВИСОКОГО ТИСКУ ПРИ ОДЕРЖАННІ НАДТВЕРДИХ КОМПЗИТИВ СИСТЕМ cBN-AI**

*Висвітлено результати дослідження нестационарного теплового поля в апаратах високого тиску методом комп'ютерного моделювання. Показано, як змінюються теплове поле та напрямки теплових потоків в залежності від часу спікання, зміни електропровідності суміші КНБ з алюмінієм внаслідок просочення та хімічної взаємодії. Описано внесок випромінювання в загальний тепловий потік та можливість зменшення теплових втрат шляхом екранування робочого об'єму.*

**Ключові слова:** *апарат високого тиску, температурне поле, тепловий потік, кубічний нітрид бору, алюміній, просочення, реакційне спікання, теплопровідність, випромінювання, екранування.*

### **Вступ**

Композиційні матеріали кубічного нітриду бору, які широко відомі основною продукцією – різальними пластинами (PCBN), в усьому світі виробляють з застосуванням техніки і технологій високого тиску. Якість композитів багато в чому визначається рівномірністю