

Т.С. Панасюк, м.н.с.

О.О. Лещук, д.т.н., зав. відд.

Інститут надтвердих матеріалів ім. В.М. Бакуля НАН України

П.М. Присяжнюк, к.т.н., доц.

Івано-Франківський національний технічний університет нафти і газу

Комп'ютерне моделювання температурних полів в шестипуансонному апараті високого тиску при зміні складу композитного нагрівача

На сьогоднішній день перспективними для вирошування одиничних кристалів алмазу методом температурного градієнту являються шестипуансонні апарати високого тиску кубічного типу. Експериментальне визначення розподілів температури в ростовому об'ємі займає багато часу та зусиль, тому доцільно використовувати комп'ютерне моделювання. За допомогою пакету програм ANSYS Workbench розроблена методика чисельного моделювання температурних полів в шестипуансонному АВТ в залежності від масової концентрації графіту в композитному нагрівачі. Встановлено, що зміна концентрації графіту від 7 до 50 % дозволяє змінювати температуру в характерних точках комірки високого тиску на 26–170 °С, горизонтальний та вертикальний перепади температури в ростовому об'ємі на 66–69 °С та градієнти температури в ньому на 3,8–14 град/мм.

Ключові слова: монокристалл; алмаз; метод температурного градієнту; шестипуансонний апарат високого тиску; чисельне моделювання.

Постановка проблеми. Алмаз – найтвердіший матеріал в природі, має виключне значення в багатьох областях науки і техніки. Кристалізація алмазу відбувається в області його термодинамічної стабільності при високих тиску (5–10 ГПа) і температурі (1200–2000 °С) в розчині вуглецю в розплав металу. Для створення таких екстремальних p , T -параметрів використовують спеціальні апарати високого тиску (АВТ) різних типів: «ковадла із заглибленнями», циліндричні, багатопуансонні, «БАРС».

Для отримання синтетичних алмазів використовують такі основні методи: спонтанна кристалізація в області термодинамічної стабільності алмазу в системі метал – графіт під впливом високого статичного тиску і високої температури на протязі часу від декількох мікросекунд до десятків хвилин; метод температурного градієнту, який полягає в вирошуванні алмазу на затравочному кристалі при умові переносу вуглецю через розплав металу. Останній досліджено в даній роботі.

Вирошування одиничних кристалів алмазу було започатковано в АВТ типу «ковадел із заглибленнями», недоліком яких є обмежений ростовий об'єм. Багатопуансонні апарати, незважаючи на більш складну конструкцію, мають комірку високого тиску зі значно більшим ростовим об'ємом. На сьогоднішній день при спонтанному синтезі алмазів набули широкого використання шестипуансонні апарати кубічного типу китайського виробництва з реакційним об'ємом до 40 см³. В даній роботі використовували шестипуансонний прес ССР-типу марки CS-VII китайського виробництва зусиллям 27 МН на кожний пуансон (діаметр плунжера – 560 мм, довжина грані кубічного контейнера – 58 мм).

При вирошуванні кристалів алмазу методом температурного градієнту велике значення мають величини осьових і радіальних перепадів температури в ростовому об'ємі, які підбирають експериментально. Вони становлять, як правило, 10–80 °С в залежності від типу вирошуваних кристалів. Нагрівання ростового об'єму відбувається за рахунок виділення джоулевого тепла в резистивних деталях комірки високого тиску при пропусканні електричного струму через АВТ. Зазвичай в якості матеріалу нагрівачів використовують графіт, але для підвищення резистивних властивостей можна використовувати композитні нагрівачі із графіту і оксиду цирконію. Це дає можливість оперувати величиною осьового і радіального градієнтів температури в ростовому об'ємі, змінюючи масові частки компонентів нагрівачів.

Основна проблема при розробці комірок високого тиску полягає в відшуванні такої схеми її резистивного нагрівання, яка б забезпечувала необхідний розподіл температури в ростовому об'ємі. Експериментальне визначення температури потребує значних часових та матеріальних затрат. Тому для відшукування оптимальної схеми резистивного нагрівання доцільним є використання методів комп'ютерного моделювання. За допомогою чисельного аналізу можна достатньо ефективно моделювати розподіл температури в комірці високого тиску АВТ.

У [1, 2] наведені як теоретичні, так і експериментальні дослідження поля температури в шестипуансонному АВТ при вирошуванні одиничного кристалу алмазу. Але схему спорядження комірки високого тиску з відповідною системою резистивного нагрівання автори не розкривають.

Метою даного дослідження було проведення комп'ютерного моделювання температурних полів в шестипуансонному АВТ китайського виробництва і встановлення закономірностей розподілу температури в ростовому об'ємі при зміні концентрації компонентів композитного нагрівача.

Результати комп'ютерного моделювання. Для визначення розподілу температури в АВТ потрібно розв'язати тривимірну зв'язану задачу електро- і теплопровідності, що проводили за допомогою пакету програм ANSYS Workbench [3]. Досліджували випадок стаціонарного розподілу температури. Схему апарату розглядали в навантаженому деформованому стані. Внаслідок симетрії АВТ розрахунки проводили для 1/4 його частини (рис. 1). Розміри zdeформованих елементів комірки високого тиску були визначені після експериментів при тиску 5,7 ГПа і склали: довжина сторони пірофілітового контейнеру – 55 мм (до експерименту 58 мм), довжина замикаючих ущільнень – 12 мм.

На першому етапі моделювання виконано дискретизацію АВТ на 34000 елементів, 60 % яких припадає на центральну частину.

Для розв'язання задачі електропровідності задавали наступні граничні умови: на торцевих поверхнях *A* верхнього і нижнього пуансонів (див. рисунок 1) задавали значення електричного потенціалу таким чином, щоб розрахункова температура в контрольній точці *G* (рисунок 2) на поверхні диску з затравочними кристалами становила 1400 °С, що відповідає оптимальним експериментально встановленим умовам вирощування кристалів алмазу при тиску 5,7 ГПа. На вертикальних поверхнях симетрії АВТ величину густини електричного струму задавали рівною нулю.

Граничні умови для задачі теплопровідності були такими: на торцевих поверхнях *A* всіх пуансонів (див. рисунок 1) задавали постійну температуру 40 °С. На поверхнях *B* АВТ, що охолоджуються повітрям, задавали умову конвективного теплообміну за законом Ньютона (коефіцієнт тепловіддачі – 25 Вт/(м²·°С) [4], температура навколишнього середовища – 22 °С).

В порожнистих каналах внутрішньої системи водяного охолодження (поверхні *C* на рисунку 1), що оточують скріплючі кільця, задавали умову конвективного теплообміну з водою за законом Ньютона. При цьому коефіцієнт конвективної тепловіддачі α розраховували за формулою, що враховує вимушений рух текучого середовища в трубах і каналах [4]: $\alpha = 0,023\lambda Re^{0,8} Pr^{0,33}/D$, де $\lambda = 0,602$ (Вт/(м·°С)) [5] – теплопровідність води, $Re = \rho VD/\mu$ – число Рейнольдса, $\rho = 998,2$ (кг/м³) [5] – щільність холодоагента, V – швидкість води, $D = 2wh/(w+h)$ – еквівалентний діаметр поперечного розрізу каналу з водою, $w = 0,007$ м – ширина поперечного розрізу каналу, $h = 0,014$ м – висота поперечного розрізу каналу, $\mu = 10015 \cdot 10^{-7}$ (Па·с) [5] – динамічний коефіцієнт в'язкості води, $Pr = 6,96$ [5] – число Прандтля. Для $V_1 = 2,6$ м/с (верхній і нижній пуанسونи) $\alpha_1 = 9041$ (Вт/(м²·°С)) а для $V_2 = 1,2$ м/с (бокові пуанسونи) $\alpha_2 = 4871$ (Вт/(м²·°С)). Швидкість води в пуансонах визначалась експериментально.

Електро-, теплофізичні властивості матеріалів конструкційних елементів АВТ детально наведені в [6–9]. Властивості композиційного нагрівача визначали по моделі узагальненого сингулярного наближення теорії випадкових функцій [10].

Адекватність моделі розрахунку температурних полів в шестипуансонному АВТ оцінено нами в статті [11] (на прикладі спонтанного синтезу алмазів).

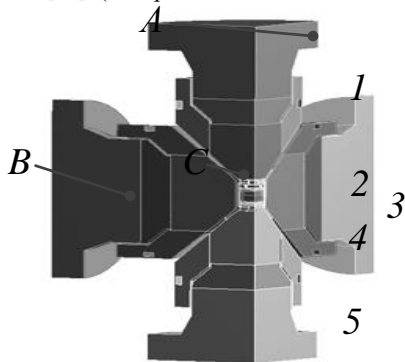


Рис. 1. Розрахункова схема 1/4 шестипуансонного АВТ: 1 – опорна плита плунжера преса (сталь); 2 – підкладна плита (сталь); 3 – охолоджуючо-скріплююче кільце (сталь); 4 – пуансон (твердий сплав); 5 – комірка високого тиску; *A* – торці пуансонів; *B* – поверхні контакту АВТ з повітрям; *C* – охолоджуючі канали з водою

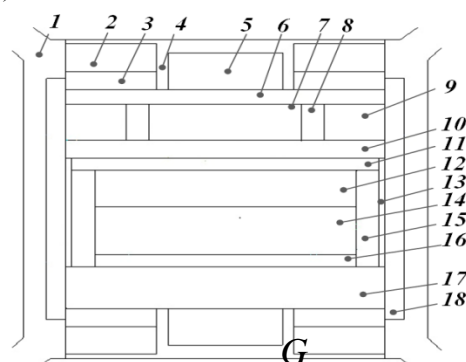


Рис. 2. Комірка високого тиску:

- 1 – контейнер з zdeформованими ущільненнями (пірофіліт);
- 2 – теплоізолюючий диск (пірофіліт);
- 3, 5 – теплоізолюючі циліндр та диск (доломіт);
- 4 – електроконтактний елемент (сталь);
- 6 – електророзподільчі диски (графіт);
- 8 – кільцевий струмовідвід (графіт);
- 7, 9, 11, 15, 16, 18 – теплоізолюючі елементи (CsCl);
- 10 – композиційний нагрівач;
- 12 – джерело вуглецю (графіт);
- 13 – циліндричний нагрівач (графіт);
- 14 – сплав-розчинник вуглецю (Fe-Ni)

Отриманий в результаті чисельного розв'язання стаціонарної зв'язаної задачі електро- і теплопровідності розподіл температури в комірці високого тиску представлений на рис. 3 (при умові сталості температури в контрольній точці $G - 1400\text{ }^{\circ}\text{C}$).

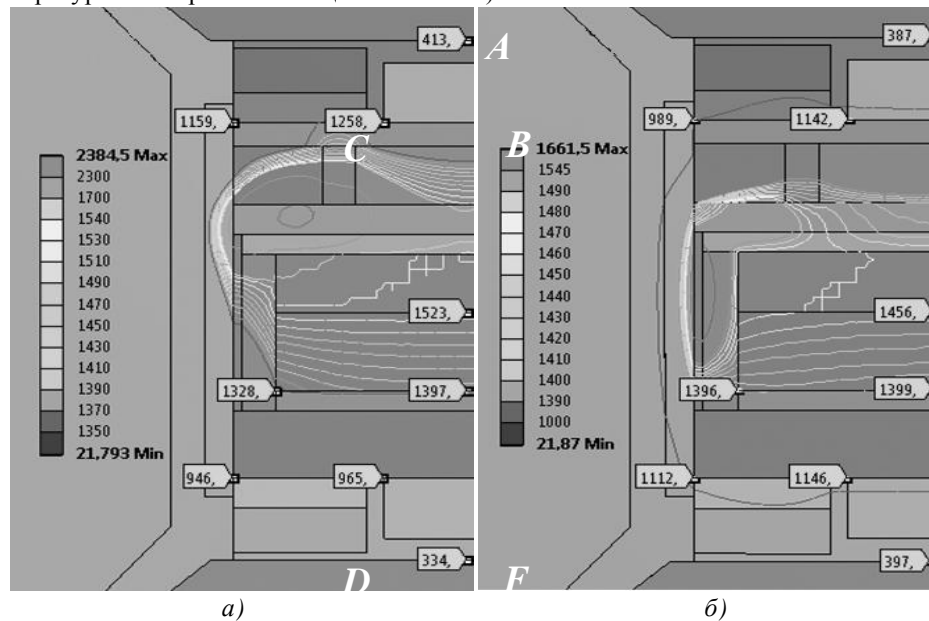


Рис. 3. Поля температури і її значення в характерних точках комірки високого тиску для випадків вмісту графіту в нагрівачі 7 % (а) і 50 % (б)

Аналіз розрахунків дає наступні результати: при збільшенні концентрації графіту в нагрівачі від 7 до 30 % загальний максимум температури стрімко падає з 2384 до 1658 $^{\circ}\text{C}$ (рисунку 4). При подальшому збільшенні концентрації графіту з 30 до 50 % максимум температури в комірці високого тиску несуттєво зростає. Температура в характерних точках A, B, C (див. рисунок 3, а), що розташовані в верхній частині комірки високого тиску, знижується, в точках D, E, F – зростає (рисунку 5). Це пов'язано з тим, що при збільшенні концентрації графіту точка температурного максимуму переміщується від торцевого композитного нагрівача (див. рисунок 3, а) до циліндричного графітового (див. рисунок 3, б).

При збільшенні концентрації графіту в нагрівачі вертикальний перепад температури в ростовому об'ємі зменшується з 126 до 58 $^{\circ}\text{C}$. При цьому вертикальний градієнт температури зменшується на 14 град/мм, а горизонтальний на 3,8 град/мм (рисунку 6), а форма ізоліній температури в ростовому об'ємі стає більш сприятливою для вирощування структурно досконалих кристалів алмазу (див. рисунок 3).

Збільшення концентрації графіту в нагрівачі призводить до необхідності підвищення потужності нагрівання на 3 % (рисунку 7) при умові підтримання температури 1400 $^{\circ}\text{C}$ на поверхні зростаючого кристалу.

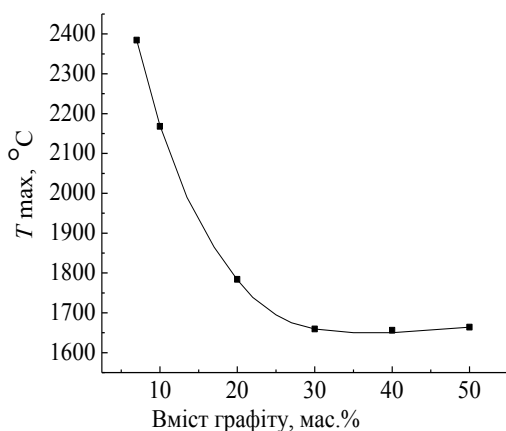


Рис. 4. Залежність максимальної температури в комірці високого тиску від вмісту графіту в композиційному нагрівачі

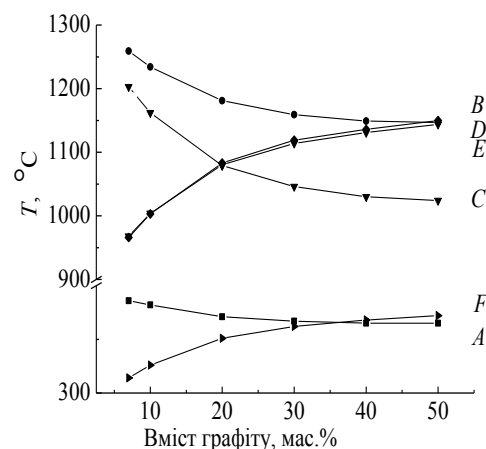


Рис. 5. Залежність температури в точках $A-F$ комірки високого тиску від вмісту графіту в композиційному нагрівачі

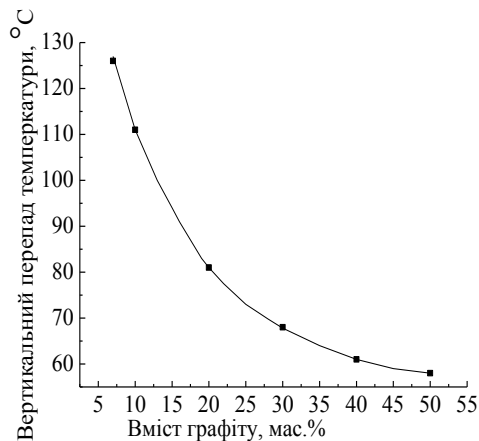


Рис. 6. Залежність вертикального перепаду температури в ростовому об'ємі від вмісту графіту в композиційному нагрівачі

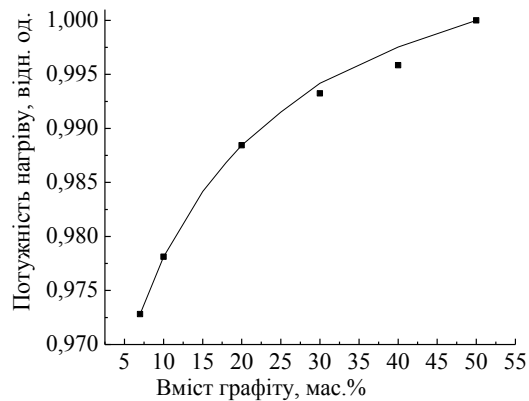


Рис. 7. Залежність потужності нагрівання АВТ від вмісту графіту в композиційному нагрівачі

Таким чином, в результаті проведеного моделювання встановлено, що варіюванням виключно концентрацією компонентів композиційного нагрівача можливо понизити перепад температури в ростовому об'ємі до 57 °C. Такі умови будуть оптимальними з точки зору вирішення достатньої кількості кристалів алмазу невеликого розміру.

Список використаної літератури:

1. FEM simulations and experimental studies of the temperature field in a large diamond crystal growth cell / Z.C. Li, X.P. Jia, G.F. Huang and others // Chin. Phys. B. – 2013. – Vol. 22, № 1. – Pp. 363–367.
2. New assembly design suitable for tower-shaped large size single-crystal diamond growth under high pressure and high temperature / Y.Li, X.Jia, N.Chen, L.Chen, L.Guo, C.Wang, G.Li, S.Sun, H.Ma // The Royal Society of Chemistry. – 2017. – № 19. – Pp. 137–141.
3. Бруяк В.А. Инженерный анализ в Ansys Workbench : учеб. пособие. Ч. 1 / В.А. Бруяк. – Самар. гос. техн. ун-т, 2008. – 271 с.
4. Крейт Ф. Основы теплопередачи / Ф. Крейт, У. Блэк. – М.: Мир, 1983. – 512 с.
5. Варгафник Н.Б. Справочник по теплофизическим свойствам газов и жидкостей / Н.Б. Варгафник. – М.: Наука, 1972. – 720 с.
6. Охотин В.С. Теплопроводность твердых тел : справ. / В.С. Охотин. – М.: Энергоатомиздат, 1984. – 320 с.
7. Зубченко А.С. Марочник сталей и сплавов : справ. / А.С. Зубченко. – М.: Машиностр., 2003. – 784 с.
8. Туманов В.И. Свойства сплавов системы карбид вольфрама – кобальт : справ. / В.И. Туманов. – М.: Metallurgiya, 1971. – 96 с.
9. Соседов В.П. Свойства конструкционных материалов на основе углерода : справ. / В.П. Соседов. – М.: Metallurgiya, 1975. – 336 с.
10. Хорошун Л.П. Методы автоматизированного расчета физико-механических постоянных композиционных материалов / Л.П. Хорошун, Б.П. Маслов. – К.: Наук. думка, 1980. – 156 с.
11. Компьютерное моделирование условий кристаллизации алмаза в аппаратах высокого давления большого объема / Т.С. Панасюк, А.А. Леуцук, В.В. Лысаковский и другие // 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.

References:

1. Li, Z.C., Jia, X.P., Huang, G.F., Hu, M.H., Li, Y., Yan, B.M. and others (2013), «FEM simulations and experimental studies of the temperature field in a large diamond crystal growth cell», *Chinese Physics B.*, Vol. 22, No. 1, pp. 363–367.
2. Li, Y., Jia, X., Chen, N. and others (2016), «New assembly design suitable for tower-shaped large size single-crystal diamond growth under high pressure and high temperature», *The Royal Society of Chemistry*, Vol. 19, No. 1, pp. 137–141.
3. Bruyak, V.A. (2008), *Inzhenernyy analiz v ansys Workbench*, Part 1, Samar. gos. tekhn. un-t, 271 p.
4. Kreith, F. and Black, W. (1972), *Basic heat transfer*, Harper and Row Publ., New York, 556 p., Translated by Anfimova, I.A. (1983), Mir Publ., Moscow, 512 p.
5. Vargafnik, N.B. (1972), *Spravochnik po teplofizicheskim svoystvam gazov i gidkostey*, Nauka Publ., Moscow, 720 p.
6. Okhotin, V.S. (1984), *Teploprovodnost' tverdykh tel*, Energoatomizdat Publ., Moscow, 320 p.
7. Zubchenko, A.S. (2003), *Marochnik staley i splavov*, Mashinostr. Publ., Moscow, 784 p.
8. Tumanov, V.I. (1971), *Svoystva splavov sistemy karbid vol'frama – kopal't*, Metallurgiya Publ., Moscow, 96 p.
9. Sosedov, V.P. (1975), *Svoystva konstruktivnykh materialov na osnove ugleroda*, Metallurgiya Publ., Moscow, 336 p.

10. Khoroshun, L.P. and Maslov, B.P. (1980), *Metody avtomatizirovannogo rascheta fiziko-mekhanicheskikh postoyannykh kompozitsionnykh materialov*, Nauk. dumka Publ., Kiev, 156 p.
11. Panasyuk, T.S., Leshchuk, A.A., Lysakovskiy, V.V., Ivakhnenko, S.A., Zanevskiy, O.A., Kalenchuk, V.A., Van, Dufu and Van, Shenlin (2013), «Komp'yuternoe modelirovanie usloviy kristallizatsii almaza v apparatakh vysokogo davleniya bol'shogo ob'ema», *Porodorazrushayushchiy i metalloobrabatyvayushchiy instrument – tekhnika i tekhnologiya ego izgotovleniya i primeneniya*, sb. nauch. tr. In-t sverkhstv. materialov im. V.N. Bakulya NAN Ukrainy, Vol. 16, Kiev, pp. 251–257.

Панасюк Тетяна Сергіївна – молодший науковий співробітник Інституту надтвердих матеріалів ім. В.М. Бакуля НАН України.

Наукові інтереси:

- розробка методів комп'ютерного проектування реакційних осередків АВТ.

E-mail: scripse@ukr.net.

Лещук Олександр Олександрович – завідувач відділом, доктор технічних наук, старший науковий співробітник Інституту надтвердих матеріалів ім. В.М. Бакуля НАН України.

Наукові інтереси:

- термомеханіка матеріалів;
- комп'ютерне матеріалознавство;
- розробка фізико-механічних моделей та комп'ютерне моделювання технологічних процесів отримання функціональних матеріалів та виробів в екстремальних умовах високих тисків та температур.

E-mail: leshchuk@ism.kiev.ua.

Присяжнюк Павло Миколайович – кандидат технічних наук, доцент кафедри зварювання конструкцій та відновлення деталей машин Івано-Франківського національного технічного університету нафти і газу.

Наукові інтереси:

- композиційні металокерамічні матеріали та покриття.

E-mail: pavlo1752010@gmail.com.

Стаття надійшла до редакції 27.10.2017.