

УДК 62-987:621.921.34

А. И. Боримский, С. Б. Полотняк, кандидаты технических наук;
И. А. Боримский, В. Н. Крикун, инженеры

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

АППАРАТ ВЫСОКОГО ДАВЛЕНИЯ С УВЕЛИЧЕННЫМ РЕАКЦИОННЫМ ОБЪЕМОМ ДЛЯ СПЕКАНИЯ КОМПОЗИТОВ НА ОСНОВЕ КУБИЧЕСКОГО НИТРИДА БОРА

Разработан аппарат высокого давления (АВД) типа наковальни с углублением новой конструкции с увеличенным до 132 см^3 рабочим объемом при диаметре реакционной ячейки 60 мм. В аппарате достигнуто давление 5 ГПа при усилии его сжатия прессом 50 МН. В таком АВД можно спекать заготовки из композитов на основе кубического нитрида бора в форме цилиндра диаметром 45–48 мм и высотой до 36,0 мм, рекомендуемые для изготовления пуансонов полости высокого давления шести- и восьмипуансонных АВД, предназначенных для создания давления более 10 ГПа. Работоспособность аппаратов, оснащенных матрицами из закаленной инструментальной стали и твердого сплава, при создании высокого давления подтверждена как расчетом методом конечных элементов их напряженно-деформированного состояния с применением оригинальных методик, разработанных в ИСМ им. В. Н. Бакуля НАН Украины, так и испытанием опытных образцов.

Ключевые слова: аппарат высокого давления типа наковальни с углублением, многопуансонный аппарат высокого давления, матрица, реакционный объем, композит, кубический нитрид бора, напряженно-деформированное состояние.

Введение

Для создания сверхвысокого давления (4–8 ГПа) и высокой температуры (1100–2500 °С), применяемых для синтеза алмаза и кубического нитрида бора (КНБ) в области их термодинамической стабильности, а также спекания композитов на основе указанных сверхтвёрдых материалов (СТМ), используют аппараты высокого давления (АВД) различных конструкций [1]. Среди многообразия конструкций наиболее широко применяют одноступенчатые АВД трех типов – наковальни с углублением (АВД НУ) различной формы (рис. 1), «белт» (рис. 2) и многопуансонные конструкции (рис. 3).

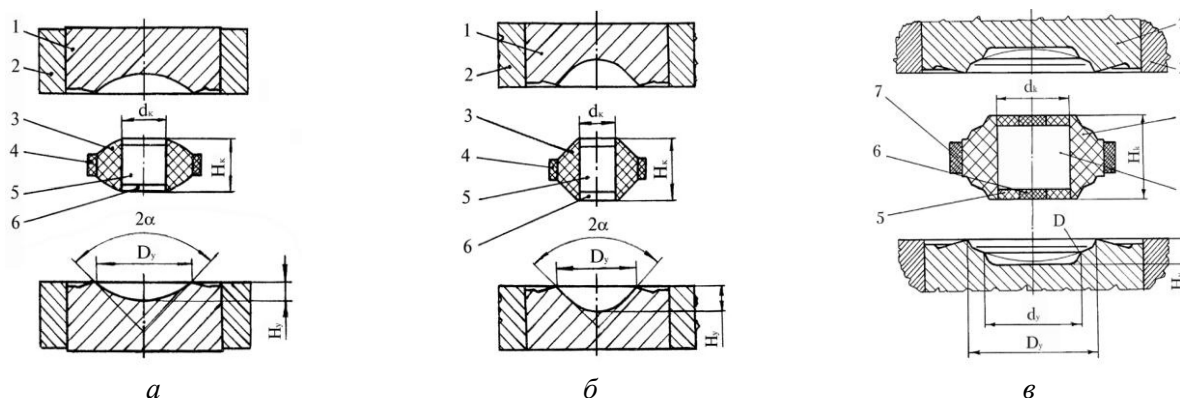


Рис. 1. Схемы АВД НУ с углублением в матрицах различной формы: а – сфера [2], б – конус, сопряженный со сферой [3], в – комбинированной формы [4]; 1 – матрица; 2 – блок скрепляющих колец; 3 – контейнер; 4 – образец; 5 – электроизоляционная шайба; 6 – нагреватель; 7 – муфта

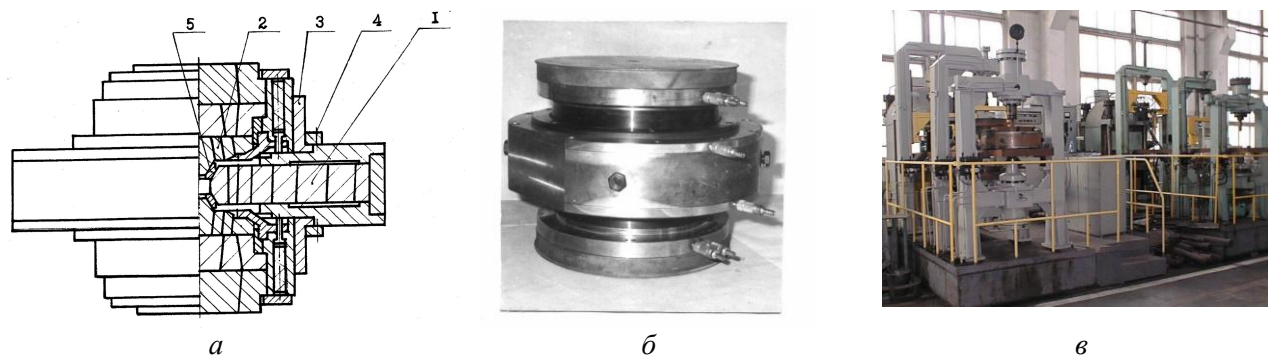


Рис. 2. АД типа «белт»: а – схема аппарата (1 – блок-матрица; 2 – блок-пуансон; 3 – направляющая втулка; 4 – корпус; 5 – контейнер в сборе); б, в – фотографии соответственно аппарата и прессовых установок, оснащенных аппаратами, разработанными в ИСМ им. В. Н. Бакуля НАН Украины [1]

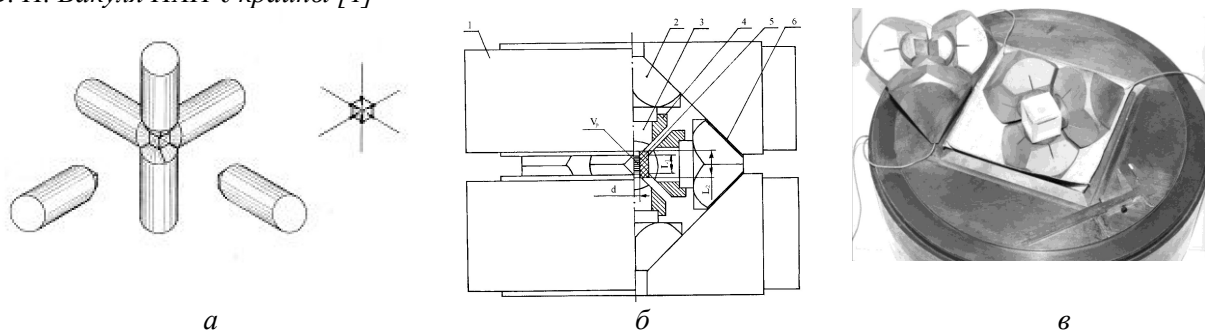


Рис. 3. Шестипуансонный (кубический) АД: а – схема расположения пуансонов в АД; б – схема АД (1 – опорная плита; 2 – корпус пуансона; 3 – вставка пуансона; 4 – кольцо; 5 – контейнер в сборе; 6 – антифрикционная прокладка); в – фотография АД на стадии сборки [5, 6]

Аппараты высокого давления представленных конструкций применяют в исследованиях при давлении до 6 ГПа и высокой температуре.

Отметим, что для синтеза СТМ и спекания композитов на их основе в ИСМ им. В. Н. Бакуля НАН Украины разработаны АД типа наковальни с углублением для применения на прессовых установках с усилием 5–50 МН. Максимальный реакционный объем разработанных АД составляет 65 см³.

По мере увеличения геометрических параметров АД увеличивается их реакционный объем, следовательно, повышается производительность синтеза СТМ и значительно расширяются технологические возможности при спекании композитов. Поэтому, проведение работ по созданию и освоению новых конструкций АД с увеличенным реакционным объемом является актуальным.

Другим перспективным направлением в области техники высоких давлений является создание АД для достижения давления более 10 ГПа и температуры более 2000 °С. Примерами эффективного применения таких аппаратов является получение нано-поликристаллов инструментального назначения на основе алмаза (NPD) твердостью до 130 ГПа [10, 12] и поликристаллов на основе КНБ твердостью 108–110 ГПа [13, 14].

Исследования при таком сверхвысоком давлении и температуре осуществляют в Ultra-High Pressure Laboratory, Geodynamics Research Center, Ehime University (Япония); Electronics and Materials R&D Laboratories, Sumitomo Electric Industries Ltd. (Япония); Bayerisches Geoinstitut, Universität Bayreuth (Германия); LPMTM-CNRS, Université Paris Nord (Франция); Rockland Research Corporation (США) и др.

Для создания в сравнительно больших реакционных объемах давления более 10 ГПа и высокой температуры применяют многоступенчатые многопуансонные АД различных конструкций с полостью высокого давления, образованной пуансонами ступени высокого давления либо в форме

куба, либо в форме октаэдра. В первом случае ступень высокого давления состоит из шести пуансонов (кубические аппараты), во втором – из восьми (октаэдрические аппараты).

Для изготовления пуансонов ступени высокого давления чаще всего используют высококачественные твердые сплавы, реже – для достижения более высокого давления, используют композиты на основе как алмаза, так и КНБ.

В октаэдрических АД обычно используют пуансоны ступени высокого давления в форме куба с ребром длиной 26–46 мм (наиболее часто 32 мм), изготовленные из высококачественного твердого сплава, либо пуансоны в форме куба с ребром длиной до 14 мм, изготовленные из композита на основе алмаза, как показано на рис. 4 [15, 16].

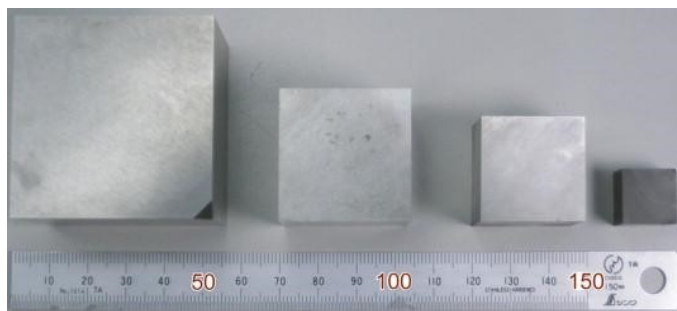


Рис. 4. Пуансоны ступени высокого давления октаэдрического АД, изготовленные из твердого сплава с ребром длиной 46 мм (а), 32 мм (б), 26 мм (в) и из композита на основе алмаза с ребром длиной 14 мм (г)

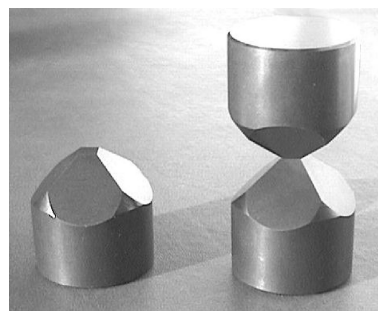
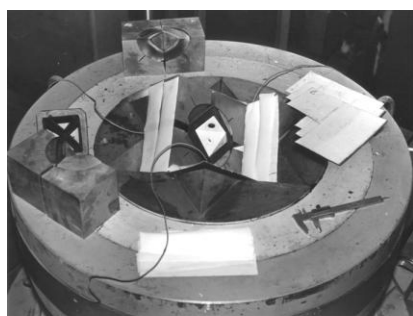


Рис. 5. Пуансоны диаметром 30 и высотой 25 мм (габаритные размеры) ступени высокого давления кубического АД, изготовленные из композита на основе КНБ

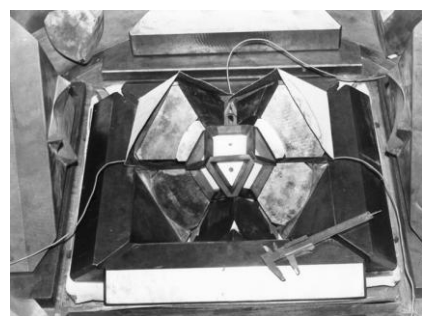
В кубических АД успешно применяют пуансоны ступени высокого давления диаметром до 30 и высотой до 25 мм (габаритные размеры) из композитов на основе КНБ [8, 9] (рис. 5). Отметим, что заготовки для изготовления указанных пуансонов получали спеканием в АД НУ [4], оснащенных матрицами из быстрорежущей стали марки Р6М5 твердостью 59...61 HRC.

Применение в качестве материала пуансонов композитов на основе СТМ позволяет повысить, по сравнению с пуансонами из твердого сплава, величину достижимого в АД давления.

Разработанные в ИСМ им. В. Н. Бакуля НАН Украины шести- (рис. 3, в), восьми- (рис. 6, а) и четырнадцатипуансонные АД (рис. 6, б) [17] для синтеза СТМ и спекания поликристаллов на их основе при давлении до 5,5 ГПа и высокой температуре перспективны для создания на их основе многоступенчатых аппаратов для создания давлений, превышающих 10 ГПа.



а



б

Рис. 6. Общий вид восьмипуансонного (а) и четырнадцатипуансонного (б) АД

Техническая характеристика многупуансонных аппаратов, разработанных в ИСМ им. В. Н. Бакуля НАН Украины, приведена в табл. 1.

Таблица 1. Техническая характеристика АДВ, разработанных в ИСМ НАН Украины

| Показатель | Количество пуансонов, шт. | | |
|--|---------------------------|------|------|
| | 6 | 8 | 14 |
| Рабочее усилие, МН | 15 | 30 | 50 |
| Объем полости высокого давления, см ³ | 33 | 161 | 380 |
| Реакционный объем, см ³ | 6 | 28 | 65 |
| Длина рабочего торца пуансона, мм | 25 | 50 | 47 |
| Габаритные размеры, мм : | | | |
| высота | 450 | 500 | 1000 |
| диаметр | 535 | 930 | 1150 |
| Масса, кг | 700 | 2450 | 7500 |

На основании проведенного анализа определена цель настоящей работы – разработка АДВ НУ (как наиболее простого по конструкции) с увеличенным реакционным объемом для спекания при давлении до 5 ГПа и высокой температуре крупногабаритных заготовок из композитов на основе КНБ, предназначенных для изготовления пуансонов ступени высокого давления шести- и восьмипуансонных АДВ, применяемых для достижения давлений, превышающих 10 ГПа.

Методика исследования

При разработке конструкции АДВ НУ с увеличенным реакционным объемом численно методом конечных элементов, исследовали напряженно-деформированное и предельное состояния блок–матрицы аппарата при создании в нем давления до 5 ГПа, что позволило обосновать форму и геометрические параметры основных элементов конструкции при условии обеспечения их работоспособности при рабочей нагрузке.

При моделировании использовали разработанные в ИСМ им. В. Н. Бакуля НАН Украины алгоритмы и программное обеспечение для численного решения контактных термоупругопластических задач при конечных деформациях [18–20]. При проведении расчетов было принято, что пластическое деформирование стальных элементов блок–матрицы описывается моделью линейно-упрочняющегося тела, а элементы из твердого сплава ВК6 (матрицы) деформируются упруго.

Опытные образцы АДВ испытывали при спекании крупногабаритных заготовок в форме цилиндра из композитов на основе КНБ. Испытания аппаратов проводили на прессовой установке при сжатии их усилием до 50 МН.

Величину создаваемого в АДВ давления определяли по общепринятой методике с применением калибровочных ячеек, содержащих материалы-реперы, такие как Vi и $PbSe$ [21, 22].

Экспериментальная часть

Блок-матрица АДВ НУ новой конструкции (см. рис. 7) состоит из трехслойного блока скрепляющих колец 1–3, изготовленных из конструкционной стали марки 35ХГСА, в которые запрессована матрица 4. Исследовали АДВ с матрицами из быстрорежущей стали марки Р6М5 твердостью 60...62 HRC и твердого сплава марки ВК6.

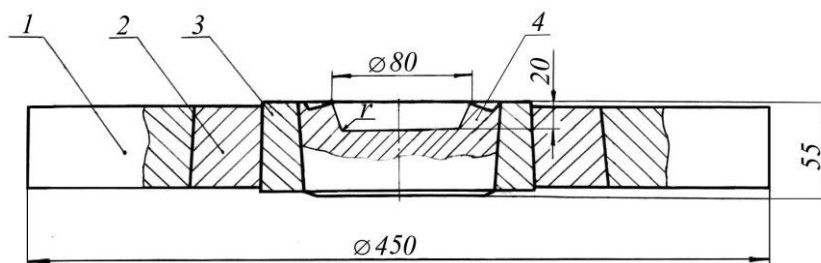


Рис. 7. Схема блок-матрицы АДВ НУ новой конструкции с увеличенным объемом полости высокого давления: 1–3 – блок скрепляющих колец; 4 – матрица

Расчетная схема для определения напряженно-деформированного состояния (НДС) блок-матрицы и контактирующей с ней опорной плиты показана на рис. 8. При расчете принимали, что давление в углублении матрицы равно 5 ГПа, а усилие сжатия АД прессом – 50 МН. Расчет НДС проводили для значений радиуса закругления r (см. рис. 8), равных 3,5 и 20 мм.

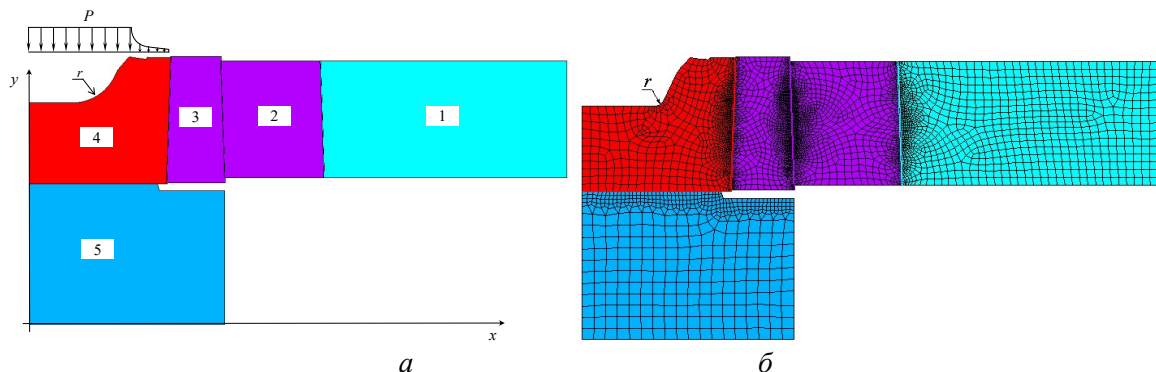


Рис.8. Расчетная схема (а) и конечно-элементная дискретизация (б) блок-матрицы новой конструкции и опорной плиты: 1–3 – скрепляющие кольца блок-матрицы; 4 – матрица; 5 – плита опорная

В результате численного моделирования получены распределения компонент тензора напряжений, контактных и эквивалентных напряжений в матрице, стальных скрепляющих кольцах и опорной плите. Для оценки предельного состояния элементов блок-матрицы использован критерий удельной потенциальной энергии формоизменения, согласно которому опасное состояние наступает тогда, когда удельная потенциальная энергия формоизменения достигает своего предельного значения

$$\sigma_e^W = \sigma_i = \frac{1}{\sqrt{2}} \sqrt{(\sigma_1 - \sigma_2)^2 + (\sigma_2 - \sigma_3)^2 + (\sigma_3 - \sigma_1)^2} \leq R_{c0,2},$$

где σ_i – интенсивность напряжений, $\sigma_1, \sigma_2, \sigma_3$ – главные напряжения, $R_{c0,2}$ – предел текучести.

Распределение интенсивности напряжений σ_i в матрице из сплава ВК6 с радиусом закругления 3,5 и 20 мм показаны соответственно на рис. 9.

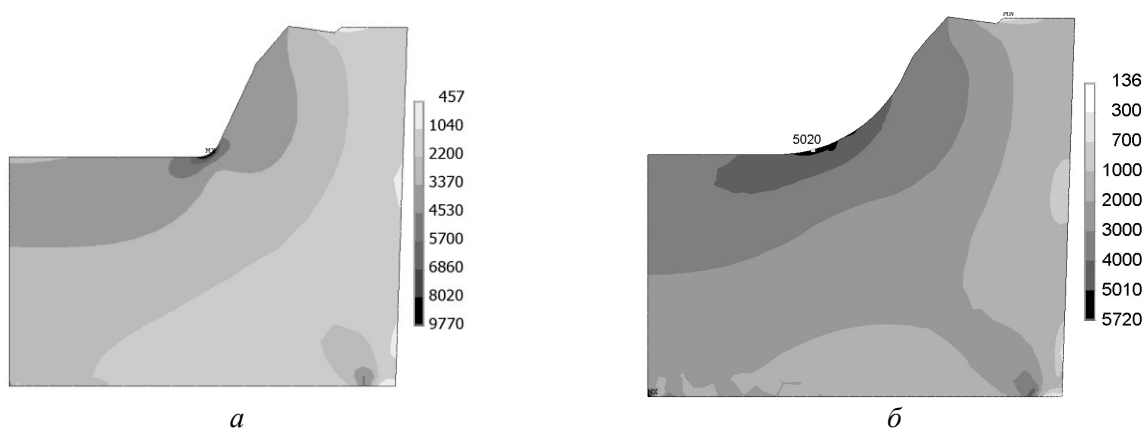


Рис. 9. Распределение интенсивности напряжений σ_i (МПа) в матрице из сплава ВК6 при радиусе закругления 3,5 (а) и 20 (б) мм

Результаты расчета показали, что для обеспечения работоспособности блок-матриц АД новой конструкции необходимо, чтобы радиус закругления r в углублении матриц превышал

величину 3,5 мм, при которой максимальное значение σ_i в матрицах почти в 2 раза превышает предел прочности для твердого сплава марки ВК6.

Как показали результаты расчетов НДС, при радиусе закругления равном 20 мм максимальное значение σ_i в матриц составляет 5 ГПа и не превышает величины предела прочности твердого сплава марки ВК6, а матрица пригодна для создания давления до 5 ГПа.

На рисунках 10 и 11 показаны распределения интенсивности напряжений σ_i и накопленной пластической деформации ε_i^p в матрице изготовленной из быстрорежущей стали Р6М5 с радиусом закругления 3,5 и 20 мм соответственно.

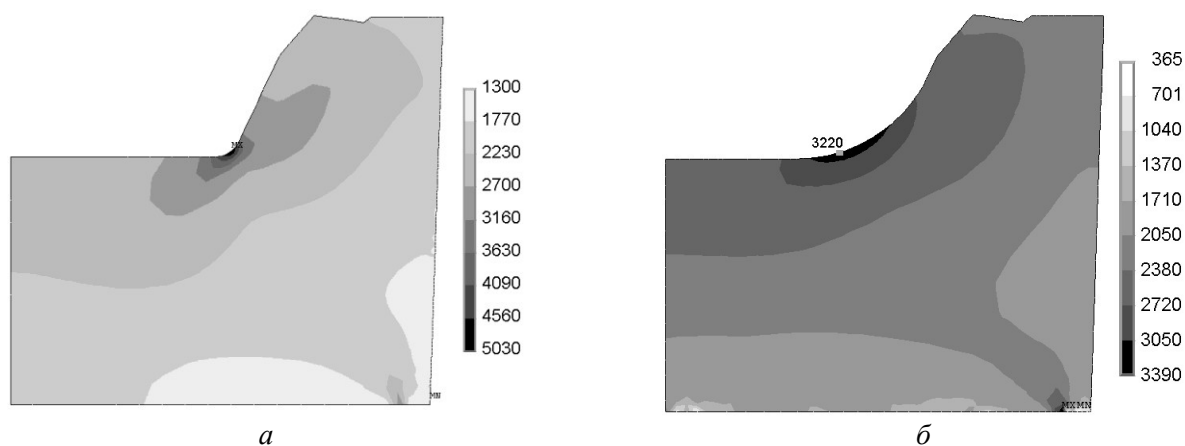


Рис. 10. Распределение интенсивности напряжений σ_i (МПа) в матрице из стали Р6М5 с радиусом закругления 3,5 (а) и 20 (б) мм

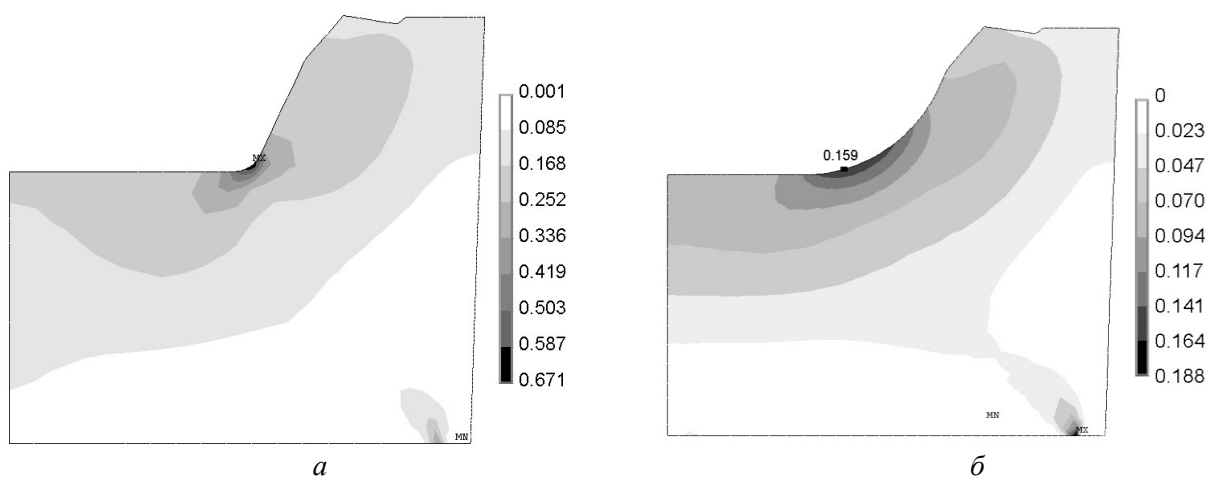


Рис. 11. Распределение накопленной пластической деформации ε_i^p в матрице из стали Р6М5 с радиусом закругления 3,5 (а) и 20 (б) мм

Как следует из результатов расчета, при создании давления 5 ГПа в АД новой конструкции с матрицами, изготовленными из стали марки Р6М5, как и в предыдущем случае при изготовлении матриц из твердого сплава марки ВК6, при $r = 3,5$ мм интенсивность напряжений σ_i в матрицах достигает значения ~ 5 ГПа (см. рис. 10, а), которое значительно превышает предел прочности материала матриц, что недопустимо, так как приведет к разрушению матриц.

При $r = 20$ мм в матрицах создаются почти в 2 раза меньшие напряжения $\sigma_i \sim 2,9\text{--}3,2$ ГПа (см. рис. 10, б), при которых матрицы сохраняют работоспособность при создании давления 5 ГПа.

С учетом результатов расчета НДС разработан АД НУ новой конструкции с увеличенным до 132 см^3 реакционным объемом при диаметре реакционной ячейки 60 мм.

В АД НУ при давлении 5 ГПа и высокой температуре получены заготовки из композита на основе КНБ в форме цилиндра диаметром 45–48 мм и высотой 36,0–36,5 мм (размеры заготовок в исходном состоянии – диаметр 49 мм, высота 49 мм; масса заготовок – 1150 карат), предназначенные для изготовления пуансонов ступени высокого давления шести- и восьмипуансонных аппаратов.

Контейнер АД новой конструкции в исходном состоянии и после спекания заготовки из композита на основе КНБ показан на рис. 12.

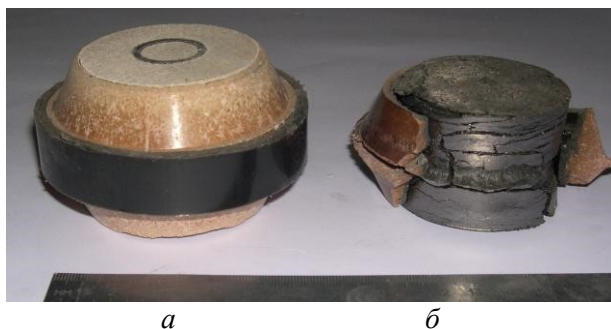


Рис. 12. Контейнер АД с размещенной в нем заготовкой из композита на основе КНБ в исходном состоянии (а) и после спекания (б)

На рис. 13 показана цилиндрическая заготовка из композита на основе КНБ в исходном состоянии (а) и после спекания (б).

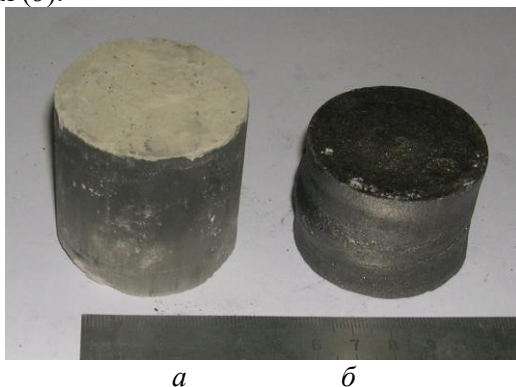


Рис. 13. Заготовка для пуансона из композита на основе КНБ в исходном состоянии (а) и после спекания (б)

Выводы

Разработан АД типа наковальни с углублением новой конструкции с увеличенным рабочим объемом (132 см^3) при диаметре реакционной ячейки 60 мм. В аппарате достигнуто давление 5 ГПа при усилии его сжатия прессом 50 МН.

АД позволяет спекать заготовки из композитов на основе КНБ диаметром 45–48 мм и высотой до 36,0 мм, которые рекомендуются для изготовления пуансонов полости высокого давления шести- и восьмипуансонных АД, предназначенных для создания давления более 10 ГПа.

Работоспособность аппаратов высокого давления новой конструкции, оснащенных матрицами из закаленной инструментальной стали и твердого сплава, подтверждена испытанием опытных образцов и результатами конечно-элементного моделирования напряженно-деформированного и предельного состояний элементов АД, выполненного с применением оригинальных расчетных методик, разработанных в ИСМ им. В. Н. Бакуля НАН Украины.

Таким образом, разработанный АДВ рекомендуется для спекания композитов на основе сверхтвердых материалов и синтеза порошков КНБ.

Розроблено апарат високого тиску (АВТ) типу ковадла із заглибленням нової конструкції зі збільшеним до 132 см³ робочим об'ємом при діаметрі реакційної комірки 60 мм. В апараті досягнуто тиск 5 ГПа при зусиллі його стискування пресом 50 МН. У такому апараті можливо спікати циліндричні заготовки з композитів на основі кубічного нітриду бору діаметром 45–48 мм і висотою до 36,0 мм, що рекомендуються для виготовлення пуансонів порожнини високого тиску шести- та восьмипуансонних АВТ, призначених для створення тиску понад 10 ГПа. Роботоздатність апаратів, оснащених матрицями із загартованої інструментальної сталі та твердого сплаву, при створенні високого тиску підтверджена як розрахунком методом скінченних елементів їх напружено-деформованого стану із застосуванням оригінальних методик, розроблених в ІНМ ім. В. М. Бакуля НАН України, так і випробуванням дослідних зразків.

Ключові слова: апарат високого тиску типу ковадла із заглибленням, багатопуансонний апарат високого тиску, матриця, реакційний об'єм, композит, кубічний нітрид бору, напружено-деформований стан.

A new design of the high pressure apparatus (HPA) of the “anvil with recess” type with an increased to 132 cm³ working volume and a reaction cell diameter of 60 mm was developed. Pressure of 5 GPa at the press compression force of 50 MN has been reached. HPA allows sintering the compacts of CBN based composites in the form of a cylinder with a diameter of 45–48 mm and a height of 36.0 mm. Compacts are recommended for the production of anvils for high-pressure cell of 6 and 8 anvils HPA, designed for generation pressures above 10 GPa. Efficiency of the HPA at high pressure creation is confirmed by numerical simulation of stress-strain state of the HPA elements as well as by prototype testing. Hardened tool steel and tungsten carbide were examined as a dies-material.

Key words: high-pressure apparatus of the “anvil with recess” type, multi-anvil high-pressure apparatus, dies, the reaction volume, composite, cubic boron nitride, the stress-strain state.

Литература

1. Сверхтвердые материалы. Получение и применение: В 6 т. / Под общ. ред. Н. В. Новикова. – К.: ИСМ им. В. Н. Бакуля НАН Украины, ИПЦ “АЛКОН” НАН Украины, 2003. – Том 1: Синтез алмаза и подобных материалов / Отв. ред. А. А. Шульженко. – 320 с.
2. Pat. 1360281 Great Britain, 2 В 01 J 3/00. Apparatus for developing high pressures and high temperatures / L. F. Vereschagin, V. N. Bakul, A. A. Semerchan et al. – Publ. 17.07.74.
3. Pat. 3732043 USA, В 30 В 11/32. High pressure and high temperature device / V. N. Bakul, A. I. Prikhna, A. A. Shulzhenko. – Publ. 08.05.73.
4. А. с. 674277 СССР. Устройство для создания высокого давления и высокой температуры / А. И. Прихна, А. И. Боримский, П. А. Нагорный. – Заяв. 22.03.79.
5. Прихна А. И., Боримский А. И. Кубическая камера высокого давления // Синтетические алмазы. – 1974. – № 3. – С. 6–8.
6. А. с. 447297 СССР, МКИ2 В 30 В 11/32. Многопуансонная камера для создания высокого давления и температуры / А. И. Прихна, А. И. Боримский. – Заявл. 27.03.73; Опубл. 25.10.74, Бюл. № 39.
7. Основные достижения института сверхтвердых материалов им. В. Н. Бакуля НАН Украины в области синтеза и спекания сверхтвердых материалов / Н. В. Новиков, А. А. Шульженко, С. А. Ивахненко, А. И. Боримский // Синтез, спекание и свойства сверхтвердых материалов: Сб. науч. тр. / Отв. ред. Н. В. Новиков, А. А. Шульженко. – К.: НАН Украины. Ин-т сверхтвердых материалов им. В. Н. Бакуля, 2011. – С. 6–13.
8. Поликристаллические материалы на основе кубического нитрида бора / Н. В. Новиков, А. А. Шульженко, Н. П. Беженар, С. А. Божко, А. И. Боримский, П. А. Нагорный // Синтез, спекание и свойства сверхтвердых материалов: Сб. науч. тр. / Отв. ред. Н. В. Новиков. – К.: Ин-т сверхтвердых материалов им. В. Н. Бакуля НАН Украины, 2005. – С. 122–128.
9. Новый сверхтвердый инструментальный материал киборит и области его применения / Н. В. Новиков, А. А. Шульженко, Н. П. Беженарь и др. // Инструментальный світ. – 2002. – № 1. – С. 10–12.

10. Irifune T., Kurio A., Sakamoto S., Inoue T., Sumiya H. and Funakoshi K. Formation of pure polycrystalline diamond by direct conversion of graphite at high pressure and high temperature // *Physics of the Earth and Planetary Interiors*. – 2004. – 143–144. – P. 593–600.
11. Sumiya H., Harano K. Distinctive mechanical properties of nano-polycrystalline diamond synthesized by direct conversion sintering under HPHT // *Diamond Relat. Mater.* – 2012. – 24. – P. 44–48.
12. Dubrovinskaia N., et al. Superhard nanocomposite of dense polymorphs of boron nitride: noncarbon material has reached diamond hardness // *Appl. Phys. Lett.* – 2007. – 90, 101912.
13. Sumiya H., Uesaka S., Satoh S. Mechanical properties of high purity polycrystalline cBN synthesized by direct conversion sintering method // *J. Mater. Sci.* – 2000. – 35. – P. 1181–1186.
14. Minomura S. (Ed.). High pressure and temperature experiment with sintered diamond anvil // *SolidState Physics under Pressure: Recent Advance with Anvil Devices*, KTK Scientific Publishers, Tokyo, 1985. – P. 19–24.
15. Ito E. Development of the Kawai-type Multi-anvil Apparatus (KMA) and Its Application to High Pressure Earth Science / 23rd Intern. Conf. on High Pressure Science and Technology (AIRAPT-23) IOP Publishing J. of Physics: Conference Series, 377 (2012). 012001 doi:10.1088/1742–6596/377/1/012001.
16. Zhai Shuangmeng, Ito Eiji. Recent advances of high-pressure generation in a multianvil apparatus using sintered diamond anvils // *Geoscience Frontiers*. – 2011. – 2, Is. 1. – P. 101–106.
17. Прихна А. И., Боримский А. И. Многопуансонные аппараты для создания сверхвысокого давления и высокой температуры // *Эксперимент и техника высоких газовых и твердофазовых давлений*. – М.: Наука, 1978. – С. 147–150.
18. Моделювання термомеханічного стану елементів апарата високого тиску для синтезу алмазів з розвинутою питомою поверхнею / М. В. Новіков, О. І. Боримський, О. О. Лещук, С. Б. Полотняк, О. П. Антонюк // *Сверхтв. матеріали*. – 2004. – № 4. – С. 3–15.
19. Полотняк С. Б. Методика чисельного моделювання процесів мартенситних фазових перетворень у малих обсягах матеріалів при деформуванні на алмазних ковадлах // *Сверхтв. матеріали*. – 2008. – № 2. – С. 13–28.
20. Idesman A. V., Levitas V. I. Finite element procedure for solving contact thermoplastic problems at large strain, normal and high pressures // *Comp. Meth. Appl. Mech. Eng.* – 1995. – 126. – P. 39–66.
21. Герасимович А. В., Вишнеvский Э. Б., Ляшенко А. Ф. Ячейка для измерения сверхвысоких давлений // *Синтетические алмазы*. – 1973. – № 3. – С. 4–5.
22. Герасимович А. В. Измерение электросопротивления реперных металлов в установках синтеза без отключения шин от трансформатора нагрева // *Синтетические алмазы*. – 1973. – № 4. – С. 17–19.

Поступила 12.06.15

УДК 62-987:539.89

П. А. Балабанов, канд. техн. наук

*Институт сверхтвердых материалов им. В. Н. Бакуля НАН Украины, г. Киев
Фирма «SedKrist GmbH», Seddiner See, Германия*

РЕЗУЛЬТАТЫ ПРИМЕНЕНИЯ АППАРАТА ВЫСОКОГО ДАВЛЕНИЯ «GIRDLE-40» ДЛЯ ВЫРАЩИВАНИЯ МОНОКРИСТАЛЛОВ АЛМАЗА МЕТОДОМ ТЕМПЕРАТУРНОГО ГРАДИЕНТА

Приведены результаты применения аппарата высокого давления цилиндрического типа «Girdle» с диаметром цилиндрического отверстия в матрице 40 мм для выращивания монокристаллов алмаза методом температурного градиента в области их термодинамической стабильности. Показана перспективность применения аппарата такого типа с большим объемом