

УДК 548.736

**В. В. Лысаковский**, канд. техн. наук; **Н. В. Новиков**, академик НАН Украины;  
**В. В. Нагорный**, **Т. С. Панасюк**, **В. А. Каленчук**, **О. С. Гуцу**<sup>1</sup>;  
**Ван Дуфу**, **Ван Шенлинь**<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Институт сверхтвердых материалов им. В.Н. Бакуля НАН Украины, г. Киев

<sup>2</sup>Компания «Best Environment Ltd.», г. Цзинань, Китай

## КИНЕТИКА РОСТА МОНОКРИСТАЛЛОВ АЛМАЗА В ШЕСТИПУАНСОННОМ АППАРАТЕ ВЫСОКОГО ДАВЛЕНИЯ

Рассмотрены особенности выращивания монокристаллов алмаза типов Ib, IIa и IIb в шестипуансонном аппарате высокого давления методом температурного градиента. Приведена оптимизированная скорость роста для получения структурно-совершенных кристаллов и характеристики их выхода при использовании разработанных ростовых ячеек при максимальной длительности цикла выращивания до 96 ч.

**Ключевые слова:** монокристалл, алмаз, аппарат высокого давления, шестипуансонный аппарат.

С учетом опыта работы с аппаратами высокого давления (АВД) ССР-типа можно заключить, что для конструирования ростовых ячеек, обеспечивающих требуемые осевые и радиальные градиенты температуры и их соотношение в ростовом объеме, температуру необходимо рассчитывать методом конечных элементов [1]. Такой подход позволяет осуществлять компьютерное моделирование тепловых полей при использовании заданных конфигураций элементов резистивного нагрева и требуемых материалов теплоизоляции [2; 3]. С использованием указанного метода создана ячейка АВД ССР-типа, обеспечивающая выращивание монокристаллов алмаза различных типов массой 1 карат и более.

Схема ростового объема ячейки шестипуансонного АВД ССР-типа с изолиниями распределения температуры показана на рис. 1.

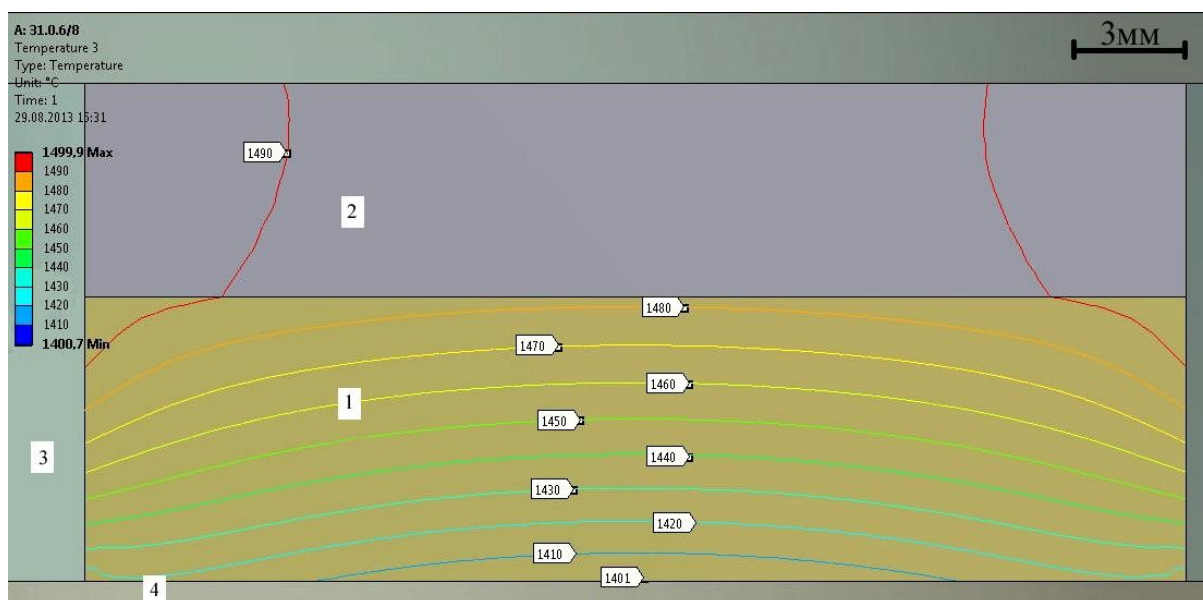


Рис. 1. Схема распределения температуры в ростовом объеме ячейки шестипуансонного АВД. 1 – источник углерода; 2 сплав-растворитель; 3 – изоляция ростового объема; 4 – подложка с затравочными кристаллами

Перепад температуры от источника к подложке с затравочными кристаллами составляет  $\sim 83$  °С, радиальный температурный градиент 3–4 °С/мм, что определяет различную скорость роста кристаллов, расположенных на центральной и периферийной частях подложки в сплаве-растворителе.

Для создания высокого давления в ростовой ячейке использовали шестипуансонный пресс ССР-типа марки CS-VII (диаметр плунжера – 560 мм) с максимальным усилием на каждый пуансон 27 МН. Контейнер изготовили из прессованного пирофиллита в виде куба со стороной длиной 58 мм. Исследования проводили при высоком давлении  $5,7 \pm 0,1$  ГПа и температуре 1400–1450 °С. Длительность циклов выращивания составляла 30–96 ч. Для выращивания монокристаллов алмаза методом температурного градиента [4;5] применяли сплав-растворитель Fe–Ni и Fe–Al, изготовленные вакуумно-индукционной плавкой. Затравочная система состояла из 21 или 23 кристаллов, ориентированных гранью куба к сплаву и изолированных платиновой фольгой толщиной  $\sim 0,025$  мм. Полученные в циклах выращивания разной продолжительности монокристаллы типов Ib, Ia и IIb показаны на рис. 2.

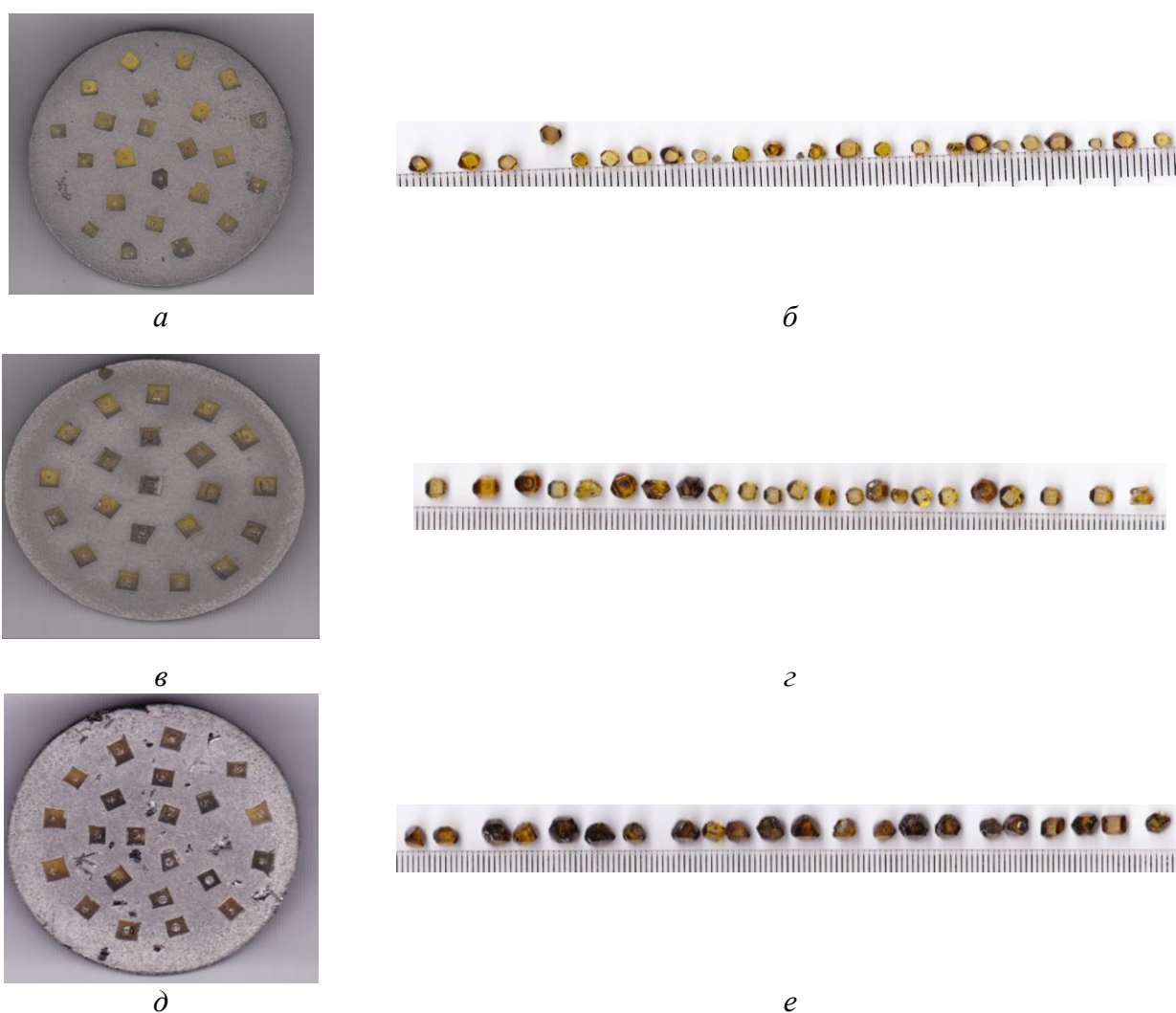


Рис. 2. Общий вид монокристаллов алмаза типа Ib, выращенных с использованием пресса CS-VII (растворитель – Fe–Ni) при высоком давлении ( $5,5 \pm 0,1$  ГПа) и высокой температуре (1400–1450 °С): а – после выращивания в течение 30 часов размером 1,4–3,6 мм и общей массой 6,8 карата (б); в – после выращивания в течение 72 ч. общей массой 11,3 карата и размером 2,1–5,7 мм (г); д – после выращивания в течение 90 ч. с размером 4,3–7,2 мм и общей массой 18,2 карата (е)

При выращивании монокристаллов алмаза типа Ib в многопуансонном АД CS-VII провели эксперименты при различной выдержке – 48, 72 и 96 ч. При цикле выращивания в течении 48 ч, получили 23 образца массой 0,13–0,45 карата, общая масса составляла 6,3 карат (рис. 2 а, б). Все выращенные кристаллы не содержали включений сплава-растворителя. При этом габитус монокристаллов кубоктаэдрический, соотношение граней куба и октаэдра приблизительно одинаковое. Три монокристалла, расположенные в центральной области подложки, содержали включения сплава-растворителя размером до 0,5 мм вблизи наружной поверхности.

При цикле выращивания в течении 72 ч получили 21 образец массой 0,28–0,93 карата; общая масса составляла 11,3 карата (рис. 2 в, г). Следует отметить, что масса монокристалла алмаза, расположенного в центре была наибольшей; при этом, он содержал включения сплава-растворителя размером до 2 мм. Семь кристаллов, которые росли в центральной части на подложке, содержали включения сплава-растворителя размером до 0,5 мм. Остальные выращенные образцы отличались высоким структурным совершенством, хотя некоторые из них содержали включения размером до 0,05 мм. В результате исследования пришли к выводу, что форма выращиваемых кристаллов и развитие их граней зависят от месторасположения на подложке – в центральной области наблюдали хорошо развитые грани октаэдра, соотношение площадного развития граней (100) и (111) составляло ~30/70; остальные кристаллы, выращенные на периферии, имели приблизительно одинаковое развитие граней куба и октаэдра.

При увеличении длительности цикла выращивания до 96 ч выросли 22 образца массой 0,45–1,36 карата; общая масса составляла 18,2 карата (рис. 2д, е). Монокристаллы алмаза, выращенные в центральной области ростового объема, содержали много больших (до 2 мм) включений сплава-растворителя, образованных на разных стадиях роста. Все остальные кристаллы представляли собой образцы высокого структурного совершенства и не содержали включений до 0,1 мм. В этом случае габитуса кристаллов изменялся аналогично циклу длительностью 72 ч при переходе от центра ростовой ячейки к периферии (рис. 2 з).

На основе разработанной ростовой ячейки (см. рис. 1) также изучали изменение массы выращиваемых кристаллов типа IIa. Кинетические данные для этого случая, вместе с результатами, полученными для образцов типа Ib, показаны на рис. 3.

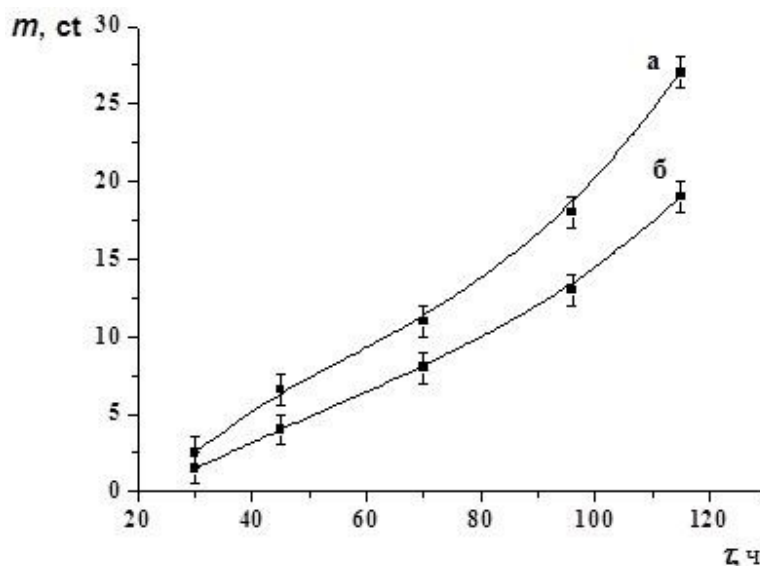


Рис. 3. Зависимости общей массы монокристаллов алмаза типов Ib (а) и IIa (б), выращенных за один цикл при использовании затравочных систем из 21–23 затравок

По полученным данным о выращивании структурно-совершенных монокристаллов алмаза типов Ib и IIa на затравке сделали следующие выводы.

1. Разработанная ростовая ячейка обеспечивает необходимые условия для выращивания кристаллов по циклам длительностью 100 ч и более.
2. Полученный расчетным методом радиального градиента температуры 4–5 °С/мм приводит к перераспределению переноса от источника к растущим кристаллам, в результате чего скорость роста в центральной части ростовой ячейки на 15–20 % выше, что приводит к захвату включений сплава-растворителя.
3. Разработанная ростовая ячейка позволяет достигать значения выхода кристаллов типов Ib и IIa соответственно 18–20 и 14–16 карат за один цикл выращивания при выдержке ~100 ч.

*Розглянуто особливості вирощування монокристалів алмазу типів Ib, IIa і IIb у шестипуансонному апараті високого тиску методом температурного градієнту. Наведено оптимізовану швидкість зростання для отримання структурно-досконалих кристалів і характеристики їх виходу при використанні розроблених ростових комірок за максимальної тривалості циклу вирощування до 96 год.*

**Ключові слова:** монокристал, алмаз, апарат високого тиску, шестипуансонний апарат.

*The features of the process of growing single crystals of diamond type Ib, IIa and IIb in shestipuansonnom high pressure apparatus temperature gradient method are examined. Given growth rate optimized for structurally perfect crystals and the characteristics of their output by using the developed growth cells in the maximum duration of the growth cycle to 96 hours.*

**Key words:** single crystal diamond, high-pressure apparatus, six anvil apparatus.

### Литература

1. Компьютерное моделирование условий кристаллизации алмаза в аппаратах высокого давления большого объема / Т. С. Панасюк, А. А. Лещук, В. В. Лысаковский и др. // Породоразрушающий и металлообрабатывающий инструмент — техника и технология его изготовления и применения: сб. науч. тр. — К.: ИСМ им. В.Н. Бакуля НАН Украины, 2013. — Вып. 16. — С. 251–257.
2. Новиков Н. В., Лещук А. А., Боримский А. И. Компьютерное моделирование зон кристаллизации алмазов различного габитуса в аппаратах высокого давления цилиндрического типа // Сверхтвердые матер. — 2002. — № 2. — С. 3–14.
3. Lyeshchuk O. Computational modeling of superhard materials synthesis // Comp. Mater. Sci. — 2010. — 49. — N 1S. — P. 85–94.
4. Strong H.M., Wentorf R. H. The growth of large diamond crystals // J. Naturwissenschaften. — 1972. — V. 59. — N 1. — P. 1–7.
5. Wentorf R.H. Some studies of diamond growth rates / R.H. Wentorf // J. Phys. Chem. — 1971. — V. 75. — N 12. — P. 1833–1837.

*Поступила 02.07.14*