



УКРАЇНА

(19) UA (11) 9754 (13) A

(51) B 01 J 3/06

ДЕРЖАВНЕ
ПАТЕНТНЕ
ВІДОМСТВООПИС ДО ПАТЕНТУ
НА ВІНАХІДбез проведення експертизи по суті
на підставі Постанови Верховної Ради України
№ 3769 XII від 23 XII 1993 рПублікується
в редакції заявника

(54) КОНТЕЙНЕР АПАРАТА ДЛЯ СТВОРЕННЯ ВИСОКОГО ТИСКУ І ТЕМПЕРАТУРИ

1

(21) 95073577
(22) 31 07 95
(46) 30 09 96 Бюл. № 3
(56) Патент США № 3030662,
кл. 18 - 34 опубл. 24 04 62
(71) Інститут надтвердих матеріалів ім.
В. М. Бакуля НАН України
(72) Боримський Олександр Іванович, Нагор-
ний Петро Арсенійович, Сороченко Тетяна
Антонівна
(73) Інститут надтвердих матеріалів ім.
В. М. Бакуля НАН України (UA)
(57) 1. Контейнер апарата для створення ви-
сокого тиску і температури, що складаєть-
ся з корпусу, виконаного з матеріалу на

2

основі известняка і який має центральне
отвір для розміщення реакційної
субстанції, що відрізняється тим, що в
якості матеріалу використано известняк
з густиною 2,55 - 2,85 г/см³.

2. Контейнер за п. 1, що відрізняється
тим, що корпус виконаний з матеріалу, со-
держачого принаймні два известняка
різної густоти, середня гу-
стина яких становить 2,55 - 2,85 г/см³.

3. Контейнер за п. 1, що відрізняється
тим, що корпус виконаний складним з двох
охватуваних один одного елементів, при
чому принаймні один з них виконаний
з известняка з густиною 2,55 - 2,85 г/см³.

Изобретение относится к технике высо-
ких давлений и может быть использовано в
технологических процессах в качестве сред-
ства для получения моно- и поликристалли-
ческих сверхтвердых материалов
различного назначения, а также при физико-
химических исследованиях при высоких тер-
модинамических параметрах.

Наиболее близким по технической сущ-
ности к заявляемому изобретению является
контейнер аппарата для создания высокого
давления и температуры, содержащий по
крайней мере один элемент, а именно ци-
линдрический корпус контейнера, выпол-
ненный на основе известняка - каленита
(другое название - литографский камень), а

вертикальные вкладыши в корпусе, напри-
мер, из поваренной соли [1].

Применение контейнера, корпус кото-
рого выполнен из материала на основе ук-
азанного известняка с плотностью порядка
2,50 г/см³ и величиной напряжения сдвига,
занимающей промежуточное значение меж-
ду аналогичными величинами для талька и
спеченных окислов, позволяет расширить
диапазон достигаемых давлений с некото-
рым одновременным повышением надежно-
сти работы аппарата при нагреве образца,
т.е. указанный контейнер соединяет в себе
преимущества талька и керамики на основе
окислов (по аналогам).

Однако для контейнеров на основе изве-
стняков указанной плотности в сочетании с

(19) UA (11) 9754 (13) A

их достаточно значительной пористостью эффективность создания давления в наиболее широко применяемых аппаратах высокого давления типа наковальни с углублениями в силу специфики их конструкции и характера истечения материала контейнера при его деформации в процессе создания давления достаточно низкой, что ухудшает технико-экономические показатели процессов, в которых применяются указанные параметры

Кроме того, напряжения сдвига остаются еще достаточно низкими, что в сочетании с естественными неоднородностями природного минерала обеспечивает достаточно значительную неоднородность напряженного состояния контейнера. Следствием этого является все еще значительное количество случаев разгерметизации полости высокого давления под давлением, особенно в процессе нагрева

Следствием указанных недостатков контейнера является снижение технико-экономических показателей применения аппарата высокого давления и эффективности применения сложного и дорогого технологического оборудования.

В основу изобретения поставлена задача такого совершенствования контейнера аппарата для создания высокого давления и температуры, при котором за счет выбора свойств материала, который является основой по крайней мере одного элемента контейнера, обеспечивается схема наиболее оптимального напряженного состояния контейнера в процессе создания и поддержания давления в аппарате, снижение локальных экстремумов напряжений в контейнере, т.е. снижение неоднородности напряженного состояния, и, как следствие, повышение эффективности создания давления, расширение диапазона достигаемых давлений, что в итоге приводит к повышению надежности работы аппарата, снижению количества разгерметизаций полости высокого давления как при создании давления, так и при нагреве образца. Это влечет за собой повышение технико-экономической эффективности применения оборудования и расширение его технологических возможностей.

Эта задача решается тем, что в контейнере аппарата для создания высокого давления и температуры, содержащем корпус, выполненный из материала на основе известняка и имеющий центральное отверстие для размещения реакционной шихты, согласно изобретению, в качестве материала использован известняк с плотностью 2,55 - 2,85 г/см³.

В контейнере аппарата для создания высокого давления и температуры корпус может быть выполнен из материала, содержащего, по крайней мере, два известняка различной плотности, усредненная плотность которых составляет 2,55 - 2,85 г/см³.

Кроме того, контейнер аппарата для создания высокого давления и температуры может иметь составной корпус из двух охватывающих друг друга элементов, при этом по крайней мере один из них выполнен из известняка с плотностью 2,55 - 2,85 г/см³.

Научной основой предлагаемого изобретения являются выполненные нами моделирование и экспериментальные испытания аппарата для создания высокого давления и температуры с контейнерами различных конструкций, элементы которых были изготовлены из различных известняков.

Природные и искусственные известняки характеризуются очень широким разбросом своих физико-механических характеристик. В частности, нами испытывались материалы, имеющие плотность в диапазоне от 1,95 до 2,95 г/см³. С плотностью очень тесно взаимосвязаны и такие характеристики материала как пористость, напряжения сдвига (пластичность), предел прочности и др., причем в процессе проведенных исследований было установлено, что основополагающей характеристикой можно считать плотность материала, при этом наилучшие результаты достигаются при использовании для изготовления корпуса контейнера или по крайней мере одного его элемента, известняков с плотностью от 2,55 до 2,85 г/см³. При этом достигается наиболее широкий диапазон получаемых давлений, наиболее равномерное (с минимальными экстремумами) напряженное состояние контейнера, следствием чего является более высокая надежность работы аппарата для создания высокого давления и температуры и значительное повышение его технико-экономических показателей.

При этом указанные элементы корпуса контейнера могут быть изготовлены как точечной обработкой из блоков природного минерала, в качестве которого использовались, например, известняк Галущинского месторождения (Подволжский район Тернопольской области, Украина), так и прессованием шихты, содержащей в качестве наполнителя, по крайней мере один измельченный известняк с плотностью 2,55 - 2,85 г/см³ и связующее, при следующем соотношении компонентов шихты, мас. %:

наполнитель - 75,0 - 99,5

связующее - 0,5 - 25,0

причем в качестве связующего можно использовать бакелитовый лак, поливиниловый спирт, жидкое стекло и другие.

В этом случае шихта может дополнительно содержать термостабилизирующие добавки - окислы металлов, выбранных из группы кремний, алюминий, магний, цирконий или их смеси. Являясь очень устойчивыми при высоких температурах, эти окислы повышают устойчивость контейнера при длительных процессах нагрева образца. Количественное содержание термостабилизирующей добавки определяется условиями эксперимента.

В случае изготовления элементов корпуса контейнера прессованием, они могут изготавливаться из смеси по крайней мере двух известняков различной плотности, в том числе менее 2,55 г/см³ и более 2,85 г/см³, при условии, что усредненная плотность материала определяемая как

$$\rho = \frac{\sum_{i=1}^k \rho_i C_i}{\sum_{i=1}^k C_i}$$

где ρ_i - плотность i -го известняка,

C_i - его содержание в смеси, причем $\sum_{i=1}^k C_i = 1$, составляет 2,55 - 2,85 г/см³.

Экспериментально было установлено, что при плотности менее 2,55 г/см³ получали материал, которому были свойственны недостатки прототипа а при плотности более 2,85 г/см³ - очень значительные напряжения сдвига (низкая пластичность) и крайне низкую надежность работы аппарата при нагреве, причем указанные явления наблюдались как для одного известняка, так и для смеси, по крайней мере двух известняков: как в случае элементов корпуса контейнера, изготовленных из блочного материала, так и из изготовленных прессованием шихты.

На чертеже фиг. 1 и 2 показан общий вид контейнеров, наиболее широко применяемых на практике

На фиг 1 показан контейнер, корпус 1 которого состоит из одного элемента, хотя выполнен разъемным, состоящим из двух одинаковых по всем показателям частей для удобства помещения в центральное отверстие 2 реакционной шихты (обрабатываемого материала) Токоподводы 3 служат для нагрева реакционной шихты Корпус 1 контейнера изготовлен токарной обработкой или прессованием

На фиг 2 показан контейнер, корпус которого выполнен из двух элементов 1 и 4,

охватывающих друг друга Они образуют центральное отверстие 2 для размещения реакционной шихты, нагрев которой обеспечивается токоподводами 3, установленными в кольцевых шайбах 5 Вид и свойства материала, из которого изготавливаются элементы 1 и 4 корпуса контейнера зависят от поставленной задачи.

Необходимо отметить что доля объема

корпуса контейнера, занимаемая элементами, выполненными из материала на основе, по крайней мере, одного известняка с плотностью 2,55 - 2,85 г/см³, может колебаться в широких пределах в зависимости от требований решаемой задачи, так же как и форма и взаимное расположение элементов контейнера, обладающих различными свойствами.

Так, при массовом синтезе алмазов низкопрочных марок AC2-AC6, а также монокристаллов марок AC50-AC80 и кубического нитрида бора предпочтительным и наиболее технологичным является изготовление корпуса контейнера, состоящим из одного элемента прессованием шихты, содержащей один или два известняка, хотя вполне допустимо использование контейнера, корпус которого состоит из двух элементов - внутренней и внешней втулок, объемы которых соизмеримы, причем внутренняя втулка выполнена согласно данному изобретению (точечная из блока или прессованная из шихты), а внешняя может быть изготовлена из известняка с меньшей плотностью.

Для синтеза крупных высокопрочных монокристаллов предпочтительным и оправданным является контейнер с корпусом из двух элементов, как и в предыдущем случае, причем желательным является выполнение внутренней втулки точечной из известняка с плотностью 2,55 - 2,85 г/см³, а внешней - прессованной из шихты, в которой содержится или такой же известняк, либо материал с меньшей плотностью, причем соотношение объемов элементов составляет от 1,5 до 5:1

В физико-химических экспериментах при высоких давлениях возможна широкая гамма других конструкций с применением для изготовления отдельных элементов корпуса контейнера таких материалов, как тальк, пиррофиллит, поваренная соль и различными соотношениями объемов и взаимным расположением этих элементов корпуса контейнера. Все указанные факторы определяются в каждом случае строго индивидуально в зависимости от требований и особенностей конкретного планируемого эксперимента

Работа заявляемого контейнера состоит в следующем. Корпус 1 контейнера (фиг. 1) или его элементы 1,4 охватывающие друг друга (фиг. 2) вместе с токоподводами 3 (фиг. 1) или токоподводами 3, установленными в кольцевых шайбах 5, помещают в углубления аппарата высокого давления типа наковальни (на чертеже не показан), устанавливают под пресс и нагружают осевым усилием до достижения требуемого давления. После этого осуществляют нагрев реакционной шихты, предварительно помещенной в центральное отверстие 2 в течение заданного времени.

После отключения нагрева и охлаждения реакционной шихты давление в аппарате снижают и извлекают контейнер, после разрушения которого получают спеченный образец.

Во всех приводимых ниже примерах для изготовления корпуса контейнера использовали природный известняк украинских месторождений, а также материалы, получаемые химическим путем.

Часть элементов корпуса контейнера изготавливали токарной обработкой из глыб природного минерала.

Другую часть элементов корпуса контейнера изготавливали прессованием из шихты, которую готовили следующим образом.

Природный известняк с заявляемой плотностью, которую контролировали методом гидростатического взвешивания кусков породы с линейными размерами 50 - 70 мм (значения плотности горных пород, измеренные таким способом с точностью, необходимой и достаточной для геофизических, инженерных и геологических целей, соответствуют объемной массе агрегатных фаз пород), дробили в щековой дробилке до получения частиц с размером менее 1 мм, затем полученный порошок (или смесь порошков как указывалось выше) смешивали со связующим, полученную смесь сушили при комнатной температуре.

Из подготовленной таким способом шихты прессовали элементы корпуса контейнера, которые затем термообработывали при 140°C в течение 1 часа.

Применяли шихту следующего состава, мас. %:

а) известняк (известняки) - 90,0

связующее (бакелитовый лак) - 10,0;

б) известняк - 99,5

связующее (поливиниловый спирт) - 0,5.

Контейнеры, корпуса которых содержали элементы из известняков указанной плотности, испытывали при синтезе алмазов марки АС6. При испытаниях оценивали эффективность создания давления по степени

превращения графита в алмаз при фиксированном усилии прессовой установки, а также надежность работы аппарата по процентному количеству разгерметизаций полости высокого давления под давлением в процессе нагрева.

Пример 1. Корпус 1 контейнера состоит из одного элемента и выполнен токарной обработкой из блочного известняка плотностью 2,55 г/см³.

Среднее значение степени превращения графита в алмаз - 39,5 мас. %, количество разгерметизаций - 3,5 %.

Пример 2. Корпус 1 контейнера состоит из одного элемента и выполнен прессованием из шихты, содержащей один известняк плотностью 2,65 г/см³ и связующее - поливиниловый спирт.

Среднее значение степени превращения графита в алмаз - 40,2 мас. %, количество разгерметизаций - 3,1 %.

Пример 3. Корпус 1 контейнера выполнен прессованием из шихты, содержащей один известняк плотностью 2,85 г/см³ и связующее - бакелитовый лак.

Среднее значение степени превращения графита в алмаз - 39,7 мас. %, количество разгерметизаций - 3,8 %.

Пример 4. Корпус 1 контейнера выполнен из материала, полученного прессованием шихты, содержащей смесь двух известняков - одного с плотностью 2,90 г/см³ (50 мас. %) и другого с плотностью 2,20 г/см³ (50 мас. %) - с усредненной плотностью по приведенной выше схеме - 2,55 г/см³.

Среднее значение степени превращения графита в алмаз - 39,4 мас. %, количество разгерметизаций - 3,5 %.

Пример 5. Корпус контейнера выполнен из двух элементов 1,4 - внутренней втулки из точеного известняка с плотностью 2,72 г/см³ и внешней, изготовленной прессованием из шихты, содержащей известняк плотностью 2,50 г/см³ и связующее - бакелитовый лак (соотношение объемов элементов 1:1).

Среднее значение степени превращения графита в алмаз - 41,2 мас. %, количество разгерметизаций - 3,8 %.

Пример 6. Корпус 1 контейнера выполнен из одного элемента из материала, полученного прессованием шихты, содержащей известняк плотностью 2,90 г/см³ и связующее - бакелитовый лак.

Средняя степень превращения графита в алмаз - 34,2 мас. %, количество разгерметизаций - 11,9 %.

Пример 7. Корпус 1 контейнера состоит из одного элемента, изготовленного прессованием из шихты, содержащей известняк

плотностью $2,3 \text{ г/см}^3$ и связующее - поливиниловый спирт

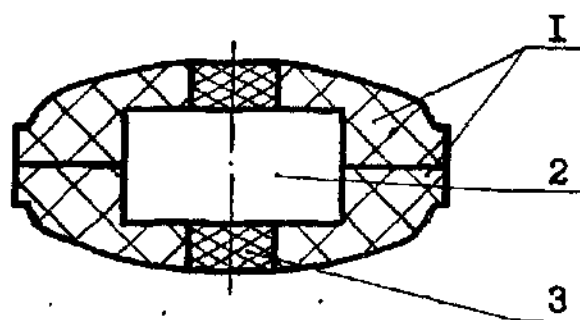
Среднее значение степени превращения графита в алмаз - 30,3 мас.%, количество разгерметизаций - 8,5%

Таким образом, как следует из результатов испытаний, применение контейнеров аппарата для создания высокого давления и температуры, содержащих корпус из одного или двух элементов, по крайней мере один из которых выполнен из известняка с плотностью $2,55 - 2,85 \text{ г/см}^3$, позволяет значительно повысить эффективность создания давления в аппарате, что обеспечивает при фиксированном усилии прессовой установ-

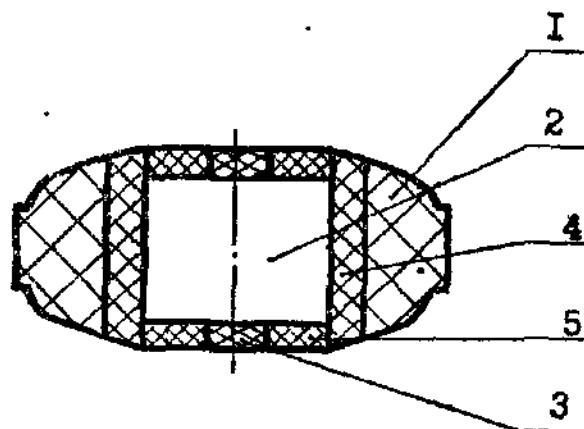
ки не менее, чем в 1,15 раза повышение производительности процесса, тем самым существенно расширяя технологические возможности оборудования.

Кроме того, снижение не менее, чем в 2,2 раза количества разгерметизаций полости высокого давления аппарата значительно увеличивает срок его службы, способствует повышению культуры производства.

Следовательно, данное изобретение позволит значительно расширить объемы производства синтетических сверхтвердых материалов, применяемых для изготовления различных видов инструмента.



Фиг. 1



Фиг. 2

Упорядник

Техред М.Моргентал

Коректор Л. Пилипенко

Замовлення 4536

Тираж

Підписне

Державне патентне відомство України,
254655, ГСП, Київ-53, Львівська пл., 8

Відкрите акціонерне товариство "Патент", м. Ужгород, вул.Гагаріна, 101

