



СОЮЗ СОВЕТСКИХ
СОЦИАЛИСТИЧЕСКИХ
РЕСПУБЛИК

ГОСУДАРСТВЕННЫЙ КОМИТЕТ СССР
ПО ДЕЛАМ ИЗОБРЕТЕНИЙ И ОТКРЫТИЙ

ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К АВТОРСКОМУ СВИДЕТЕЛЬСТВУ

(21) 2999396/23-26

(22) 01.09.80

(72) А.А.Шульженко и М.Я.Кацай

(71) Ордена Трудового Красного Зна-
мени институт сверхтвердых материа-
лов АН Украинской ССР

(53) 546.26.162(088.8)

(56) 1. Авторское свидетельство СССР
по заявке № 2964485/25,
кл. С 01 В 31/06, 17.08.80 (непуб-
лик.).

2. Патент США № 4128625,
кл. С 01 В 31/06, 1978 (прототип).

(54)(57) СПОСОБ СИНТЕЗА МОНОКРИСТАЛ-
ЛОВ АЛМАЗА, включающий послойное раз-
мещение в контейнере камеры высокого
давления металла или сплава-раствори-
теля, меди и графита и последующее
воздействие давления при температу-
ре в области термодинамической ста-
бильности алмаза, о т л и ч а ю -
щ и й с я тем, что, с целью повыше-
ния теплопроводности и уменьшения
количества включений в кристаллах,
слой меди размещают между слоями
растворителя при содержании ее 2-25%
от массы растворителя.

ОПУБЛИКОВАНО

Б. И. 13 95 16

ДЛЯ СЛУЖЕБНОГО ПОЛЬЗОВАНИЯ ЭКЗ. №

000134

(19) SU (11) 1016941 A

6 (5D) C 01 B 31/06

(19) SU (11) 1016941 A

РПФ-К

РПФ

Изобретение относится к области получения сверхтвердых материалов, в частности алмазов, и может быть использовано на предприятиях, производящих искусственные алмазы и инструменты из них.

Известен способ синтеза монокристаллов алмаза, включающий воздействие высокого давления и температуры на послойно расположенные в реакционном объеме графит и растворитель с увеличивающейся от слоя к слою по направлению от периферии к центру температурой плавления, причем в каждый из основных слоев растворителя дополнительно вводят разделяющую слой на две части прослойку растворителя с температурой плавления на $40-150^{\circ}\text{C}$ меньше, чем основной слой, в состав растворителя прослойки входят металлы VI-VIII групп и легирующие добавки в количестве $0,5-5 \text{ мас.}\%$, например медь [1].

Способ позволяет увеличить выход алмазов и повысить их механическую прочность по сравнению с алмазами, выращенными без легирующих добавок. Однако теплопроводность кристаллов составляет $400-600 \text{ Вт/м}\cdot\text{град К}$, что не позволяет использовать их в качестве, например, теплоотводов. Кроме того, кристаллы содержат по всему объему более $1,5 \text{ мас.}\%$ включений, в основном неориентированной формы.

Наиболее близким к предлагаемому является способ синтеза алмаза, включающий послойное размещение металла или сплава-растворителя, меди и графита и воздействие давления и температуры, лежащих в области термодинамической стабильности алмаза, причем слой меди размещают между каждым из 2 смежных слоев графита и растворителя, и он является разделительной перегородкой между последним и графитом в количестве $1,6 \text{ мас.}\%$. В процессе синтеза частичное плавление металлической перегородки из меди создает возможность для образования алмазных зародышей в отдельных участках с постепенным передвижением участков зародышеобразования по мере расплавления разделительного диска меди. Указанное расположение меди приводит к увеличению размеров получаемых алмазов с одновременным уменьшением количества кристаллов [2].

Недостатком данного способа синтеза является то, что он позволяет получать кристаллы алмаза несовершенной формы низкого качества с большим количеством неориентированных включений ($2,5-3,0 \text{ мас.}\%$) со значительными ступенями роста на гранях. Теплопроводность таких кристаллов около $300-400 \text{ Вт/м}\cdot\text{град К}$.

Целью изобретения является повышение теплопроводности монокристаллов алмаза и уменьшение количества включений в них.

Поставленная цель достигается тем, что, способ включает последовательное размещение в контейнере камеры высокого давления графита, металла или сплава-растворителя, слоя меди при содержании ее $2-25\%$ от массы растворителя, металла или сплава-растворителя, графита и последующее воздействие давления при температуре в области термодинамической стабильности алмаза.

Отличие способа состоит в том, что слой меди размещают между слоями растворителя при содержании ее $2-25\%$ от массы растворителя.

Слой меди в виде диска или порошка размещают в середине слоя растворителя углерода, между слоем растворителя и слоем графита осуществляется прямой контакт, что при воздействии высокого давления при высокой температуре в области термодинамической стабильности алмаза обеспечивает одновременное появление зародышей алмаза на границе контакта. На последующем этапе наращивания на зародышах происходит диффузия меди к границе контакта и разбавление растворителя медью, не растворяющей углерод, вследствие чего снижается скорость выделения алмазного углерода из расплава в области термодинамической стабильности алмаза и осаждения на зародышах. Вследствие уменьшения скорости роста количество примесей в получаемых кристаллах минимально, алмазы прозрачные с зеркальными гранями высокого качества с высокой теплопроводностью.

Механизм воздействия меди на процесс синтеза алмазов при указанном способе размещения слоя меди в реакционной смеси действует на любых растворителях углерода.

в качестве растворителей углерода предпочтительно использовать элементы, выбранные из группы Fe, Ni, Co, Mn, Cr в виде отдельных металлов, их смесей или сплавов-растворителей из-за их высокой способности растворять углерод в значительных количествах, позволяющих обеспечивать высокую степень превращения графита в алмаз в условиях термодинамической стабильности алмаза. В качестве растворителя углерода также могут быть использованы смеси или сплавы металлов с углеродом или карбидами с целью понижения параметров синтеза. Графиты могут быть использованы, например, марок С-3, МГ-ОСЧ, ГМЗ-ОСЧ, ЭГ-1.

Содержание меди 2-25 мас.% по отношению к массе металла или сплава-растворителя углерода определено экспериментально. При ином соотношении либо не достигается цель изобретения, либо снижается выход алмазов.

Пример. В цилиндрическое реакционное пространство контейнера с внутренним диаметром 15 мм, выполненного из литографского камня, помещают графитовый диск (графит марки МГОСЧ) диаметром 15 мм, толщиной 1,5 мм, весом 0,4 г, затем помещают слой стружки сплава-растворителя Ni-Mn-C (Ni 47 мас.%, C 0,9 мас.%, Mn остальное) в виде фракции 1000-500 мкм в количестве 0,6 г, слой меди в виде фольги весом 0,06 г, слой стружки сплава-растворителя, описанного выше, в количестве 0,6 г, затем графитовый диск диаметром 15 мм, толщиной 1,5 мм указанной марки весом 0,4 г. Содержание меди составляет 4,75 мас.%, содержание растворителя 95-25 мас.%.

Заполненный контейнер помещают в устройство высокого давления, затем в аппарат высокого давления и высоких температур и подвергают воздействию давления 40,5 кбар и температуры 1200°C в течение 20 мин.

Продукт синтеза представляет собой смесь металлов, алмаза и остаточного графита, последний удаляется окислением, например кислородом воздуха. Металлы удаляются растворителем, например, в азотной кислоте.

В результате превращения графита в алмаз составляет 40,6 мас.% от массы используемого графита.

Полученные алмазы светло-желтого цвета имели правильную кристаллографическую форму кубооктаэдров с зеркальными гранями. Партия представлена кристаллами без видимых под микроскопом включений при увеличении в 80 раз и ориентированными точечными включениями в виде прерывистых линий, сходящихся в центре кристалла. Содержание включений в алмазах менее 0,3 мас.% по всем зернистостям.

Содержание алмазов фракций 800/630-315/250 мкм, составляющих 66,2 мас.% от веса всей партии алмазного сырья, приведено в таблице.

Прочность алмазов фракции 400/315 мкм составляет 14,4 кг, т.е. в 2,5 раза выше прочности алмазов марки АСС.

Аналогично технологии, изложенной в примере, был осуществлен ряд опытов, результаты которых приведены в таблице.

Как следует из результатов, изложенных в таблице, способ синтеза позволяет получать прозрачные кристаллы алмаза с зеркальными гранями только с видимыми ориентированными включениями точечного типа в виде пересекающихся в центре кристалла прерывистых линий, либо без видимых с помощью микроскопа включений. Содержание включений в кристаллах алмаза менее 0,9 мас.%, т.е. в 2,5-3 раза ниже, чем по прототипу.

Теплопроводность алмазов ~ 1000-1200 Вт/м·град К, т.е. в 3-4 раза выше, чем по прототипу.

Полученные алмазы высокого качества могут быть использованы для изготовления бурового инструмента долот, буровых коронок, пил для распиловки твердых пород камня, карандашей для правки шлифовальных кругов и т.д., т.е. эти алмазы могут использоваться в инструментах на металлической связке, где всегда требуются высокие температуры для спекания алмазоносного слоя. Прочность получаемых алмазов в 2,5 раза превышает прочность алмазов марки АСС соответствующих зернистостей по ГОСТу 9206-70.

Т а б л и ц а 1.

Продолжение табл.1

Фракция, мкм	мас. %		Фракция, мкм	мас. %
		5		
800/630	0,83		160/125	7,1
630/500	8,34	10	125/100	4,59
500/400	23,3		100/80	2,5
400/315	20,4	15	80/63	1,67
315/250	13,3		63/50	1,25
250/200	8,34		50/40	0,42
200/160	9,6	20	40	2,3

Т а б л и ц а 2

№ п/п	Состав реакционной шихты		Состав раствори- теля, мас. %	Параметры процесса			Степень превраще- ния, мас. %	Содержа- ние включе- ний, мас. %	Фракцион. состав партий, мас. % (сумма фракций 800/630- 315/250 мкм)	Измерения прочнос- ти фрак- ции 400/315 мкм, кгс ГОСТ 9206 -70	Кристал- лографиче- ская форма алмаза	Характер включений
	Медь/ раствори- тель, мас. %	Графит мар- ка/г		P, кбар.	T, °C	t, мин						
1	10/90	МГОСЧ/0,8	Fe-Ni-C 65-32,3- 2,7	42	1300	15	39	0,5	56,4	13,7	Кубоок- таэдр	Точечн. ориентир. включения, кристаллы проз- рачн. есть без видимых включе- ний
2	2/98	33-1/1,2	Co 100	43,5	1370	10	38	0,8	45,8	12,8	Окта- эдр	Точечн. ориентир. включения, кристаллы проз- рачн.
3	25/75	ГМЗОСЧ/1,0	Ni-Cr 60-40	42,5	1310	20	42	0,7	54,1	13,9	Кубоок- таэдр	Точечн. неориен- тир. включения, кристаллы прозрачн.
4	12/88	C-3/0,6	Fe-Co-C 35-63-2	43	1330	20	40,5	0,8	60,7	12,4	Кубоокт. Октаэдр	Точечн. ориентир. включения, крист. прозрачн.
5	5/95	МГОСЧ/1,2	Co-Mn 62-38	41	1360	15	40	0,4	59,2	16,6	Кубоок- таэдр	Точечн. включ. ориент. есть крист. без ключ. прозрач.
6	15/85	C-3/1,2	Ni-Fe-Ti-C 60-37-1-2	42	1280	15	41	0,75	51,7	11,9	Кубоок- таэдр	Точечн. ориен- тир. включ., есть крист. без включен. прозр.
7	Прототип 1,6/98,4	МГОСЧ/0,8	Co 100	43,5	1400	10	41	2,8	58,8	7,3	Октаэд- ры	Неориент. включ. крист. непрозрачн. ступени роста

Составитель Н. Кирова
Редактор И. Курасова Техред О. Ващенко Корректор В. Бутяга

Заказ 1417/ДСП Тираж 299 Подписное
ВНИИПИ Государственного комитета СССР
по делам изобретений и открытий
113035, Москва, Ж-35, Раушская наб., д. 4/5

Филиал ИПИ "Патент", г. Ужгород, ул. Проектная, 4