

基于有限元法分析宝石级金刚石的合成腔体温度场*

韩奇钢¹⁾ 马红安¹⁾ 肖宏宇¹⁾ 李瑞²⁾ 张聪¹⁾ 李战厂¹⁾ 田宇¹⁾ 贾晓鹏^{1)†}

1) (吉林大学超硬材料国家重点实验室, 长春 130012)

2) (长春理工大学材料科学与工程学院, 长春 130012)

(2009 年 10 月 13 日收到; 2009 年 10 月 26 日收到修改稿)

以有限元法为理论分析手段模拟分析了温度梯度法合成宝石级金刚石大单晶的腔体温度场, 实现了对宝石级金刚石的合成腔体内各位置温度同时测量. 模拟结果表明: 在宝石级金刚石合成过程中, 其温度分布呈不均匀分布. 腔体内高温区分布在样品(碳源+触媒)边缘, 低温区分布在籽晶附近. 样品腔内热量的传递方式和样品腔内的碳源输运方式相同, 均由碳源的两侧向籽晶附近传输. 籽晶附近轴向温度梯度大于径向温度梯度, 导致单位时间内其轴向生长尺寸大于径向生长尺寸. 宝石级金刚石腔体温度场分析的理论模型的成功构建, 为新型宝石级金刚石腔体的研制提供了良好的设计基础, 对促进优质宝石级金刚石的生长技术具有指导意义.

关键词: 合成腔体, 温度场, 宝石级金刚石, 有限元法

PACC: 6110F, 6150C, 0735

1. 引 言

金刚石是一种用途广泛的极限性功能材料, 它可用于工业、科技、国防以及医疗卫生等诸多领域中, 尤其是宝石级金刚石 ($> 1 \text{ mm}$), 更是高科技技术发展中某些极限条件下必不可少的功能材料^[1-3]. 例如, 宝石级金刚石可用作高硬度材料的加工工具、金刚石对顶砧装置(DAC)中的高压顶砧、半导体激光器、高功率激光武器等的散热片以及红外分光用的窗口材料^[4-6]. 宝石级金刚石因其具有的商业价值和科技价值长期以来成为广大科技工作者的研究热点, 其研究对国家具有战略意义^[7-9].

1970 年, G. E. 公司的研究小组利用高温高压温差法成功生长出高纯优质宝石级金刚石单晶(1 carat(克拉)), 自此以来, 高温高压温差法便成为优质宝石级金刚石单晶合成的最为有效的一种方法^[10-12]. 通过温度梯度法生长宝石级金刚石的过程是以温度梯度为驱动力实现金刚石的溶解再析出的生长过程. 由于温度的不同导致金刚石在溶剂中浓度的差别, 金刚石将由高温处的高浓度区向低温处的低浓度区扩散, 并在低温处结晶析出生长.

宝石级金刚石腔体温度场分布对其合成质量起决定性作用. 因此, 研究宝石级金刚石腔体温度场分布具有现实意义^[13].

宝石级金刚石在合成过程中, 其腔体处在高温高压环境下(1350 °C, 5.5 GPa), 合成过程具有不可视性. 宝石级金刚石合成腔体内各位置温度的同时测量长久以来一直是个悬而未决的难题, 现有技术只能做到点测量, 这严重制约了对宝石级金刚石合成过程的研究^[14]. 本工作利用有限元法首次实现了对宝石级金刚石腔体内各位置温度同时测量, 成功建立了宝石级金刚石腔体温度场分析的理论模型, 对促进我国优质宝石级金刚石的生长技术具有指导意义.

2. 理论模型

本分析对象为国产六面顶压机高压腔体, 其合成条件为电压为 2.5 V, 腔体中心温度达到 1350 °C, 采用热-电耦合场进行稳态分析. 理论模型图如图 1(a)所示, 腔体组装图如图 1(b)所示. 本文分析考虑了六面顶压机大钢环内的循环水以及空气散热问题, 散热方式取为对流散热.

* 国家自然科学基金(批准号:50572032, 50731006, 50801030)资助的课题.

† 通讯联系人, E-mail: jiaxp@jlu.edu.cn

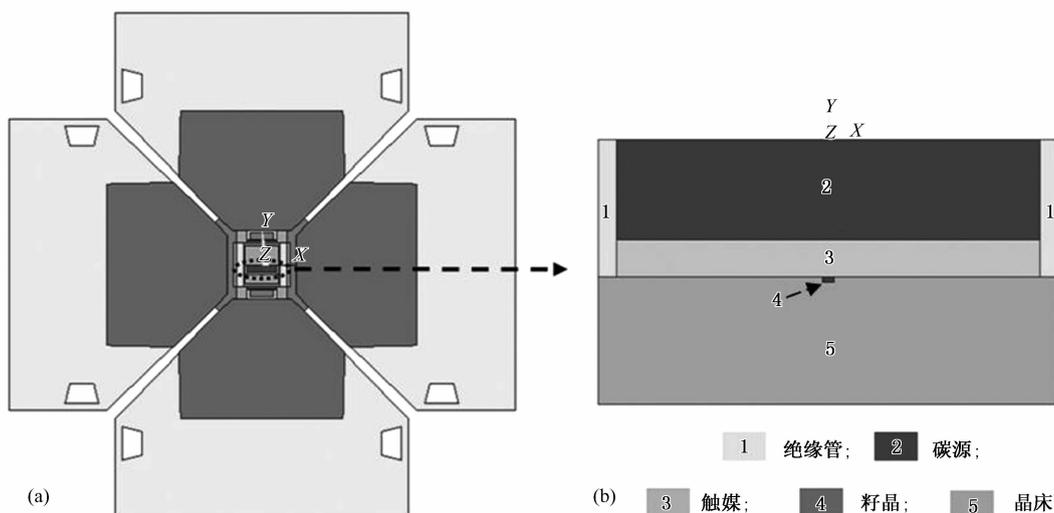


图 1 六面顶压机宝石级金刚石理论模型 (a)整体模型; (b)腔体组装图

3. 结果分析

宝石级金刚石腔体温度场分布如图 2 所示. 模拟结果表明在宝石级金刚石合成过程中, 温度成不均匀分布, 高温区分布在合成腔体内, 低温区分布在通水钢环上. 在上下加热顶锤锤面上温度达到 200 °C, 而侧锤锤面温度达到 150 °C, 二者差异达到

50 °C, 此现象得到了高压合成实验的证明(相同合成质量的顶锤, 受热应力越大, 寿命越低, 导致上下加热顶锤寿命低于侧锤)^[15]. 在通水钢环水管位置温度最低, 热量以循环水为媒介散失. 在腔体中心温度达到 1350 °C 时, 腔体温度峰值位于石墨管中部, 达到 1615 °C. 温度以此为中心, 进行传输, 使触媒和碳源形成熔融状态, 从而利用温度梯度法合成宝石级金刚石大单晶.

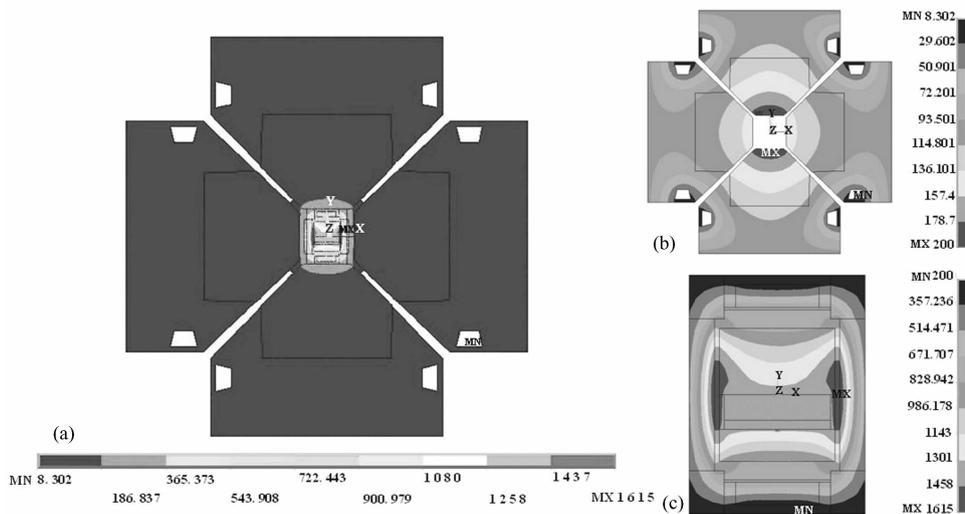


图 2 温度分布云图 (a)整体模型; (b)钢环和 WC 顶锤; (c)腔体

籽晶附近温度分布云图如图 3 所示. 模拟结果表明籽晶位置温度最低, 且较均匀, 此现象可归因为籽晶材质为金刚石, 其热导率较大. 在径向路径 1, 温度分布具有对称性, 高温分布在触媒片两侧, 即距离石墨管越近, 温度越高, 反之则降低. 在轴向路

径 2, 温度在碳源内缓慢降低(变化幅度较小), 但在触媒内温度急剧降低(变化幅度较大). 这是由于高温高压合成过程中, 碳源全部转化为金刚石. 籽晶附近轴向温度梯度大于径向温度梯度, 有利于以温度梯度为驱动力实现金刚石的溶解和再析出, 从而

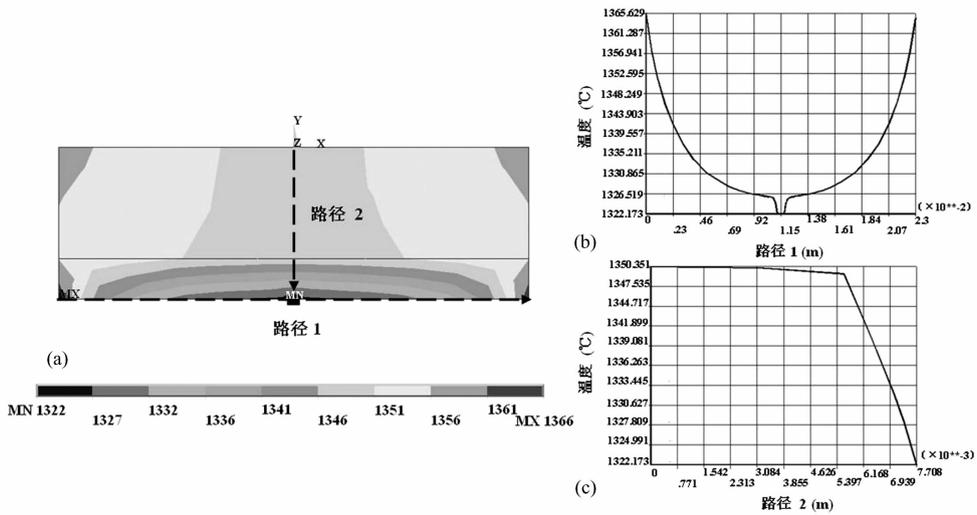


图3 籽晶附近温度分布云图 (a)籽晶+触媒+碳源；(b)路径1；(c)路径2

生长成宝石级金刚石大单晶。

籽晶附近热矢量云图如图4所示。模拟结果表明样品腔内热量的传递方式为由碳源两侧向籽晶附近传递，由温度梯度法生长宝石级金刚石原理知，由于温度的不同导致金刚石在溶剂中浓度的差别，金刚石将由高温处的高浓度区向低温处的低浓度区扩散，并在低温处结晶析出生长，故样品腔内热量的传递方式与样品腔内的碳源的运输方式相同。此结果得到了宝石级金刚石合成后所对应的再结晶石墨的形状的验证，即柱状碳源两侧消耗速度大于碳源中心，如图4(b)所示。籽晶附近热梯度云图如图5所示。模拟结果表明热梯度峰值分布在晶种正上方，由温度梯度法生长宝石级金刚石原理知，热梯度越大，其生长速度越大，即单位时间内其轴向生长尺寸大于径向生长尺寸。为了验证此结果，在高温高压条件下进行了宝石级金刚石的合成，其光学照片如图5(b)所示。晶体为金黄色I b型宝石级金刚石，晶体的轴向生长尺寸大于径向尺

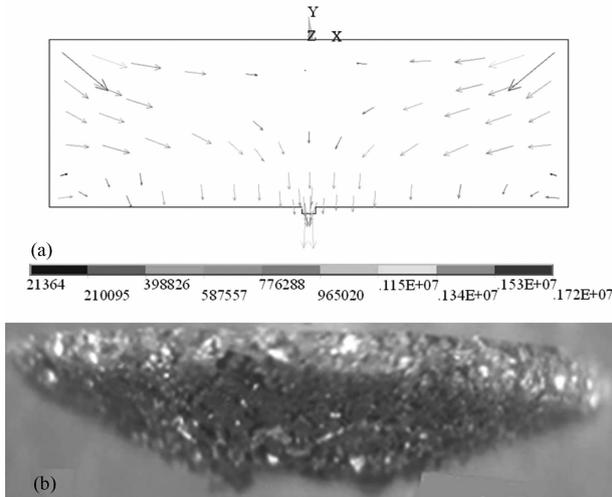


图4 籽晶附近热矢量云图 (a)籽晶+触媒+碳源；(b)实验后再结晶石墨形状

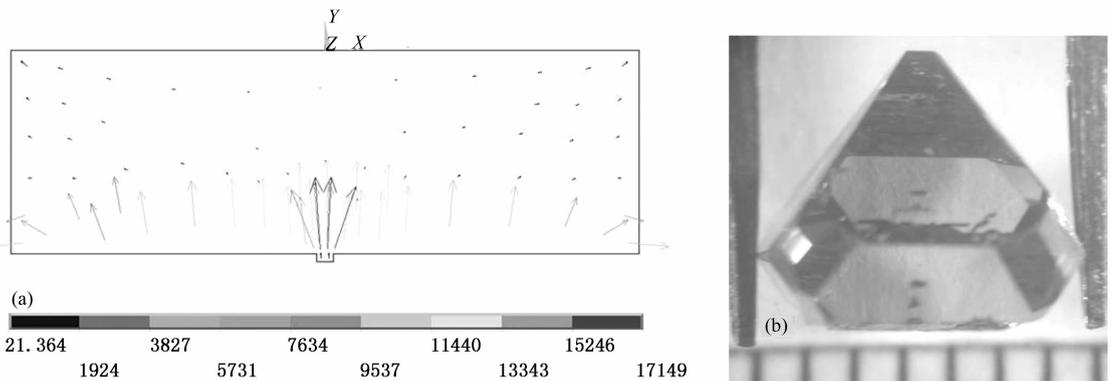


图5 晶种附近热梯度云图 (a)晶种+触媒+碳源；(b)晶体光学照片

寸. 宝石级金刚石合成结果与模拟结果相符, 再次验证了所构建模型的合理性. 理论上实现对晶体生长的动态模拟, 对更深入的理解晶体生长过程和合成机理有很大的促进作用. 根据理论模拟分析结果, 可以对合成实验各参数进行调整, 实现参数优化, 从而促进宝石级金刚石的合成水平, 推进我国宝石级金刚石行业的发展.

4. 结 论

运用有限元法成功构建了宝石级金刚石温度场分析的理论模型. 模拟结果表明: 在宝石级金刚

石合成过程中, 温度成不均匀分布, 高温区分布在合成腔体内, 低温区分布在通水钢环上. 在腔体中心温度达到 1350 °C 时, 腔体温度峰值位于石墨管中部, 达到 1615 °C. 腔体内径向温度分布为边缘高、中间低; 轴向温度分布为中心高、边缘低. 样品腔内热量的传递方式和样品腔内的碳源的输运方式相同, 均由柱状碳源的两侧向籽晶附近传输. 籽晶附近轴向温度梯度大于径向温度梯度, 导致单位时间内其轴向生长尺寸大于径向生长尺寸. 宝石级金刚石腔体温度场分析的理论模型的成功构建, 对促进我国优质宝石级金刚石的生长技术具有指导意义.

- [1] Sumiya H, Satoh S 1996 *Diamond and Related Materials* **5** 1359
- [2] Abbaschian Reza, Zhu Henry, Clarke Carter 2005 *Diamond and Related Materials* **14** 1916
- [3] Sumiya H, Nakamoto Y, Shimizu K, Kanda H 2008 *Applied Physics Letters* **93** 1101915
- [4] Wang J H, He D W 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 3397 (in Chinese) [王江华、贺端威 2008 物理学报 **57** 3397]
- [5] Zhou Z Y, Chen G C, Tang W Z, Lu F X 2006 *Chin. Phys.* **15** 980
- [6] Luo J F, Tang B C, Gao C X, Li M, Han Y H, Zou G T 2005 *Chin. Phys.* **14** 1770
- [7] Liu S C, Wang L J, Cheng X R, Sun G X, Li J L, Hu X D, Shen Z T 1977 *Acta Phys. Sin.* **26** 363 (in Chinese) [刘世超、王莉君、成向荣、孙帼显、李家璘、胡欣德、沈主同 1977 物理学报 **26** 363]
- [8] Pan B C, Xia S D 1993 *Acta Phys. Sin.* **42** 320 (in Chinese)

[潘必才、夏上达 1993 物理学报 **42** 320]

- [9] Liu F B, Wang J D, Chen D R, Yan D Y 2009 *Chin. Phys. B* **18** 2041
- [10] Strong H M, Chrenko R M 1971 *J. Phys. Chem.* **75** 1838
- [11] Sumiya H, Satoh S 1996 *Diamond and Related Materials* **5** 1359
- [12] Burns R C, Hansen J O, Spits R A, Sibanda M, Welbourn C M, Welch D L 1999 *Diamond and Related Materials* **8** 1433
- [13] Cheng Y, Huang Q J, Liu X J 2008 *Chin. Phys. B* **17** 4273
- [14] Ma H A, Jia X P, Chen L X, Zhu P W, Guo W L, Guo X B, Wang Y D, Li S Q, Zou G T, Grace Zhang, Phillip Bex 2002 *J. Phys: Condens. Matter* **14** 11269
- [15] Han Q G, Jia X P, Ma H A, Li R, Zhang C, Li Z C, Tian Y 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 4812 (in Chinese) [韩奇钢、贾晓鹏、马红安、李瑞、张聪、李占厂、田宇 2009 物理学报 **58** 4812]

Finite element method study on the temperature distribution in the cell of large single crystal diamond *

Han Qi-Gang¹⁾ Ma Hong-An¹⁾ Xiao Hong-Yu¹⁾ Li Rui²⁾ Zhang Cong¹⁾
Li Zhan-Chang¹⁾ Tian Yu¹⁾ Jia Xiao-Peng^{1)†}

1) (*National Laboratory of Superhard Materials, Jilin University, Changchun 130012, China*)

2) (*Institute of Materials Science and Engineering, Changchun University of Science and Technology, Changchun 130012, China*)

(Received 13 October 2009; revised manuscript received 26 October 2009)

Abstract

The temperature distribution in the cell of single crystal diamond grown by the temperature gradient method has been studied, which is based on the finite element method. Our results show that the temperature distribution in the synthetic process of single crystal diamond is not uniform. The highest temperature in the cell is located at the outside of single carbon solvent, and the lowest temperature in the cell is located near the diamond seed. The heat transfer and the mass transport have a same direction (from outside of carbon source to diamond seed). The temperature gradient in the axial direction is higher than that in the radial direction, which explains why the size of synthetic single crystal diamond in the axial direction is larger than that in the radial direction. The model will be useful for the design of single crystal diamond grown by the temperature gradient method. Furthermore, this work will be hopeful to improve the cubic anvil type high pressure techniques for the synthesis of high quality diamond crystals.

Keywords: cell, temperature field, single crystal diamond, finite element method

PACC: 6110F, 6150C, 0735

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 50572032, 50731006, 50801030).

† Corresponding author. E-mail: jiaxp@jlu.edu.cn