

УДК: 661.657.1:539.89

ISSN 1729-4428 (Print)  
ISSN 2309-8589 (Online)

О.П. Людвіченко, О.О. Лещук, О.М. Анісін, М.П. Беженар

## Чисельне визначення термоелектричних параметрів двостадійного спікання зразків системи cBN–Al у кубічній комірці високого тиску

Інститут надтвердих матеріалів ім. В.М. Бакуля НАН України, Київ, [ludvial@ukr.net](mailto:ludvial@ukr.net)

Проведено попереднє чисельне моделювання зв'язаних електричних і теплових полів в шестипуансонному АВТ за реакційного спікання масивних зразків PCBN. Передбачалося, що спікання надтвердого композита здійснюється із шихти cBN–Al. Для вирішення стаціонарної задачі електро- і теплопровідності скористались методом скінченних елементів. Провідні властивості матеріалів комірки були відкориговані таким чином, щоб відповідати умовам її термобаричного навантаження. Отримані результати дозволяють визначати рівень термоелектричних параметрів двостадійного реакційного спікання і оцінювати вплив зміни провідних властивостей комірки на тепловий стан зразків PCBN.

**Ключові слова:** полікристалічний кубічний нітрид бору (PCBN), апарат високого тиску (АВТ), тепловий стан, моделювання.

Подано до редакції 14.10.2024; прийнято до друку 06.11.2025.

### Вступ

Полікристалічний кубічний нітрид бору (PCBN) широко використовують для виробництва інструментів, призначених для лезової обробки загартованих і легованих сталей, чавунів і інших важкооброблюваних матеріалів на основі заліза [1]. На сьогодні актуальним питанням є синтез габаритних зразків PCBN, які можна використовувати як конструкційний матеріал, зокрема, для виготовлення високонавантажених стискаючих елементів в апаратах високого тиску (АВТ) [2].

Один із методів отримання PCBN базується на реакційному двостадійному спіканні зразків системи cBN–Al в умовах високого тиску і температури [3]. Для генерації необхідних для спікання високого тиску і температури застосовують АВТ різних типів. В Інституті надтвердих матеріалів ім. В.М. Бакуля НАН України PCBN-композити спікають у АВТ типу «ковадл із заглибленнями» і «тороїд», що забезпечують величину тиску у 5–7 ГПа і температури у 1500–2000 °С. Однак в таких апаратах неможливо

отримати достатньо великі зразки через обмежені розміри комірки. Для вирішення актуальної задачі отримання габаритних зразків надтвердих PCBN-композитів можна використовувати шестипуансонний АВТ. Кубічна комірка такого апарата з розміром ребра до 100 мм дозволяє забезпечити необхідні для спікання  $p$ ,  $T$ -параметри (4–5 ГПа, 1600–1800 °С).

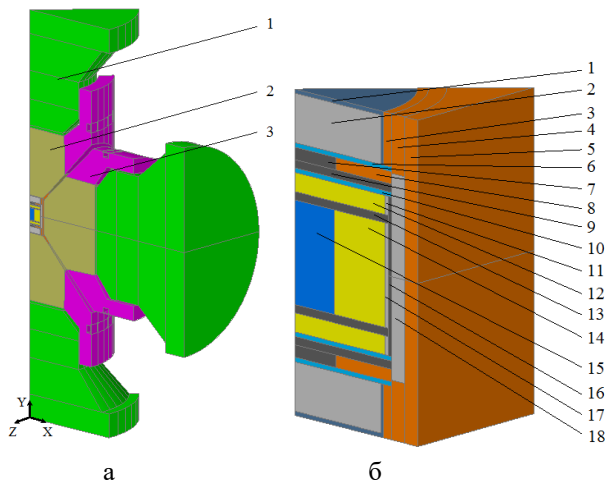
Відомо [4, 5], що розподіл температури в реакційному об'ємі АВТ визначально впливає на структуру і властивості PCBN-зразків під час їх реакційного спікання. Для проектування комірок АВТ і забезпечення в них необхідних теплових умов попередньо використовують комп'ютерну симуляцію. Це дає можливість визначення термоелектричних параметрів зовнішньої дії на АВТ і, відповідно, оптимізації полів напруги, щільності струму, джерел джоулевого тепла, температури в елементах комірки. Внесенням змін в конфігурацію і провідні властивості елементів електрорезистивного ланцюга комірки вдається досягти необхідних теплових умов у її реакційному середовищі. Таким чином, попереднє моделювання дозволяє скоротити час і строки

проведення проектувальних робіт і отримати більш ефективний і якісний проект реакційної комірки. Тепловий стан для різних типів АВТ детально змодельовано, зокрема, в роботах [6–12].

Метою роботи є попереднє визначення з використанням комп'ютерного моделювання теплового стану комірки і відповідних термоелектричних параметрів дії на шестипуансонний АВТ на різних стадіях реакційного спікання композита системи 90 % cBN–10 % Al (за масою). В якості програмного забезпечення використовували академічну версію програмного комплексу ANSYS.

## I. Постановка задачі

Розрахункова схема пресової установки і комірка для спікання PCBN-композитів (1/8 частина в стисненому стані) наведені на рис. 1. Реакційний об'єм 15 обмежений дисками 13 і циліндром 14 (див. рис. 1, б).



**Рис. 1.** а – загальна схема шестипуансонного АВТ: 1 – опорні плити (сталь), 2 – пуансон (твердий сплав), 3 – система водяного охолодження (сталь); б – схема комірки високого тиску: 1 – стакан (нержавіюча сталь), 2 – диск (доломіт), 3, 4, 8 – кільця (пірофіліт), 5 – кубічний контейнер (пірофіліт), 6, 10 – диски (титан), 7, 9 – диски (графіт), 11 – кільце (доломіт), 12, 14 – диск і циліндр (оксид алюмінію), 13 – диск (графіт), 15 – досліджувані зразок 90 % cBN–10 % Al (за масою), 16 – нагрівач (графіт), 17, 18 – втулки (доломіт).

Електрорезистивне нагрівання комірки відбувається за рахунок виділення джоулевого тепла в її графітових елементах. В цьому випадку тепловий стан моделюється розв'язанням зв'язаної задачі електро- і теплопровідності. В припущенні про відсутність електричних зарядів такий процес описують системою нелінійних рівнянь

$$\operatorname{div}[\gamma(T)\operatorname{grad}U] = 0, \quad (1)$$

$$\operatorname{div}[\lambda(T)\operatorname{grad}T] + \gamma(T)|\operatorname{grad}U|^2 = 0, \quad (2)$$

де  $\gamma$  – коефіцієнт електропровідності;  $T$  – температура;  $U$  – потенціал електричного поля;  $\lambda$  – коефіцієнт теплопровідності;  $\gamma|\operatorname{grad}U|^2$  – питома потужність джерел джоулевого тепла. Рівняння (1) і (2) доповнюють граничними умовами

$$U_{S_U} = U(\mathbf{r}), \quad (3)$$

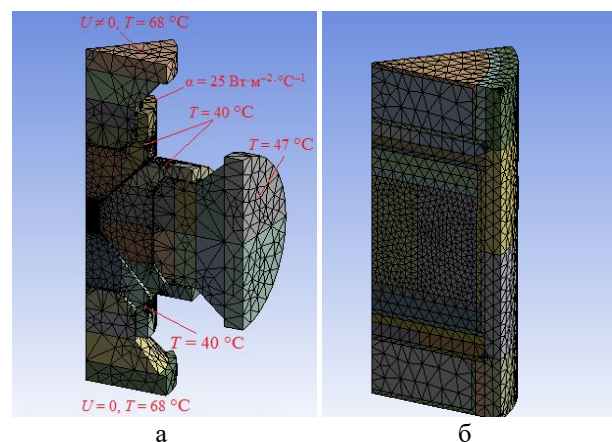
$$T_{S_T} = T(\mathbf{r}), \quad (4)$$

$$h_{S_\alpha} = \alpha(\mathbf{r})[T - \Theta(\mathbf{r})] = -\mathbf{n} \cdot \lambda(T)\operatorname{grad}T, \quad (5)$$

де  $S_U$ ,  $S_T$ ,  $S_\alpha$  – відповідно граничні поверхні АВТ з радіусом-вектором  $\mathbf{r}$ , на яких задають значення напруги  $U(\mathbf{r})$ , температури  $T(\mathbf{r})$  і умову конвективного теплообміну з коефіцієнтом тепловіддачі  $\alpha(\mathbf{r})$  та температурою зовнішнього середовища  $\Theta(\mathbf{r})$ ;  $h$  – проекція вектора теплового потоку на зовнішню нормаль  $\mathbf{n}$  до  $S_\alpha$ .

Електро- і теплофізичні властивості матеріалів складових частин АВТ брали з публікацій [12–15] з урахуванням залежності провідних властивостей від температури.

На рис. 2 зображено сітку елементів для шестипуансонного АВТ і його комірки з відповідними граничними умовами. Значення електротягу (3) на торцевих поверхнях верхньої і нижньої опорних плит варіювали, виходячи з необхідності отримання відповідної температури в реакційному об'ємі. Температуру (4) на торцевих поверхнях опорних плит визначали вимірюванням. Для моделювання примусового охолодження АВТ задавали температуру (4) у 40 °С на внутрішніх поверхнях охолоджуючих каналів. На поверхнях, що контактують з повітрям, задавали умову конвективного теплообміну (5) ( $\alpha = 25 \text{ Вт} \cdot \text{м}^{-2} \cdot ^\circ\text{C}^{-1}$  [9],  $\Theta = 40^\circ\text{C}$ ).



**Рис. 2.** Скінченно-елементні сітки 1/8 частин АВТ (а) і комірки високого тиску (б).

Розрахунки проводили для випадку переходу досліджуваного зразка із ізоляційного стану у провідний і навпаки, тобто враховували плавлення алюмінію із просочуванням шихти в процесі реакційного спікання і реакційну взаємодію алюмінію з кубічним нітридом бору з утворенням неелектропровідних фаз – нітриду і боридів алюмінію та твердих розчинів. Спочатку визначали потужність

струму нагрівання АВТ за умов, коли зразок cBN–Al є ізолятором за максимальної температури  $\sim 900^\circ\text{C}$  і тиску 2 ГПа (задача 1). Наступний етап – зразок cBN–Al набув провідних властивостей після плавлення алюмінію, потужність нагрівання співпадає з попередньо визначеною (задача 2). Ці дві задачі відносяться до першої стадії реакційного спікання. Другу стадію спікання проводять за температури  $\sim 1400^\circ\text{C}$  і тиску 4,2 ГПа, коли зразок також може набувати як провідних, так і ізоляційних властивостей. Тому було визначено необхідні значення потужності струму нагрівання комірки і проаналізовано її тепловий стан за максимальної температури зразка у  $1400^\circ\text{C}$  при його ізоляційному (задача 3) і провідному (задача 4) станах.

## II. Результати та їх обговорення

*Задача 1* – дослідити тепловий стан композита системи 90 % cBN–10 % Al для схеми нагрівання, що відповідає ізоляційному стану зразка ( $\rho = 10^5 \text{ Ом}\cdot\text{м}$ ,  $p = 2 \text{ ГПа}$ ,  $T_{\text{max}} = 900^\circ\text{C}$ ). На рис. 3–6 наведено розраховані поля напруги, щільності струму, щільності джерел джоулевого тепла та температури в елементах комірки.

Згідно із запропонованою схемою нагрівання реакційного об'єму для спікання PCBN на основі

порошкової суміші 90 % cBN–10 % Al, коли максимальна температура в зоні спікання становить  $900^\circ\text{C}$ , максимальний перепад температури не перевищує  $3^\circ\text{C}$  (див. рис. 6), що задовільно впливає на формування однорідної структури і властивостей зразка в цілому.

*Задача 2* – дослідити тепловий стан композита 90 % cBN–10 % Al для схеми нагрівання, що відповідає провідному стану зразка за  $p = 2 \text{ ГПа}$  та потужності струму нагрівання  $W = 6,59 \text{ кВт}$ , розрахованої для ізоляційного стану зразка, нагрітого до  $T = 900^\circ\text{C}$ .

На рис.7 наведено поля температури у зразку, що суттєво відрізняються від попередніх. У випадку плавлення алюмінію зразок стає провідним і стабілізація потужності на рівні 6,6 кВт, необхідної для нагрівання непровідного зразка до  $900^\circ\text{C}$  за тиску 2 ГПа, призводить до збільшення перепаду температури в ньому з 3 до  $14^\circ\text{C}$ , а також збільшення струму нагрівання і, відповідно, зменшення напруги. Таким чином, за рахунок реєстрації вольт-амперних характеристик процесу спікання PCBN можливо контролювати зміну фазового стану матеріалу в реакційному об'ємі комірки.

*Задача 3* – дослідити тепловий стан композита 90 % cBN–10 % Al для схеми нагрівання, що відповідає ізоляційному стану зразка ( $\rho = 10^5 \text{ Ом}\cdot\text{м}$ ,  $p = 4,2 \text{ ГПа}$ ,  $T_{\text{max}} = 1400^\circ\text{C}$ ).

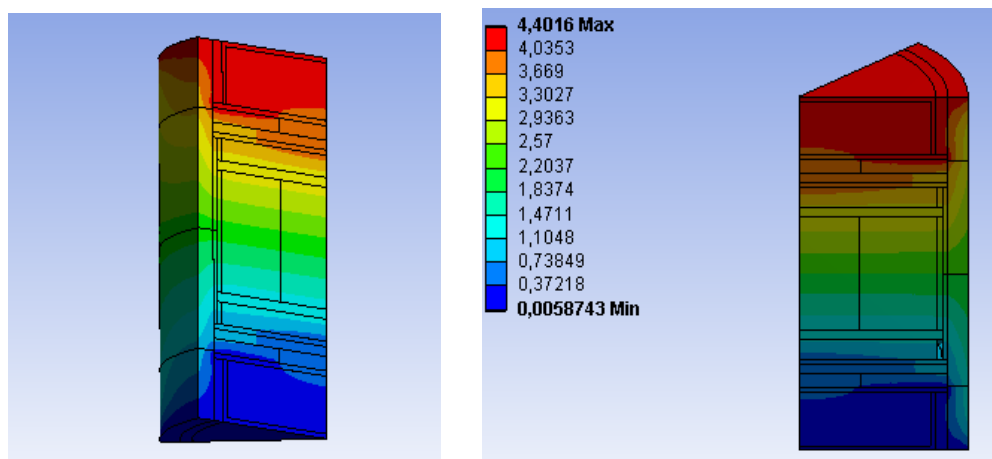


Рис. 3. Поля напруги у діагональному та фронтальному перерізах комірки, В.

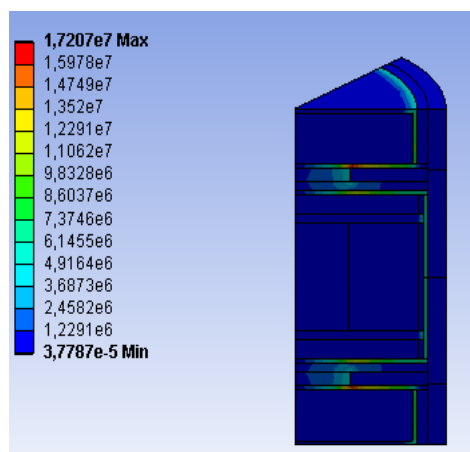


Рис. 4. Поле щільності струму, А/м².

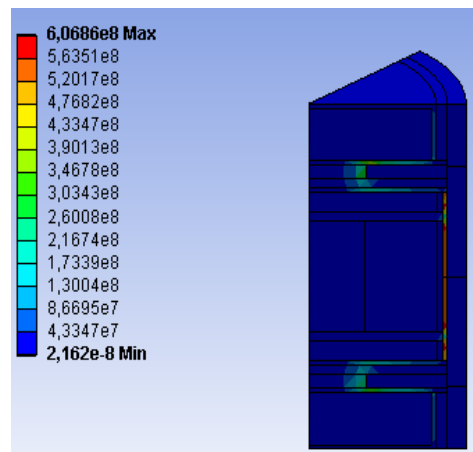


Рис. 5. Поле щільності джерел тепла, Вт/м³.

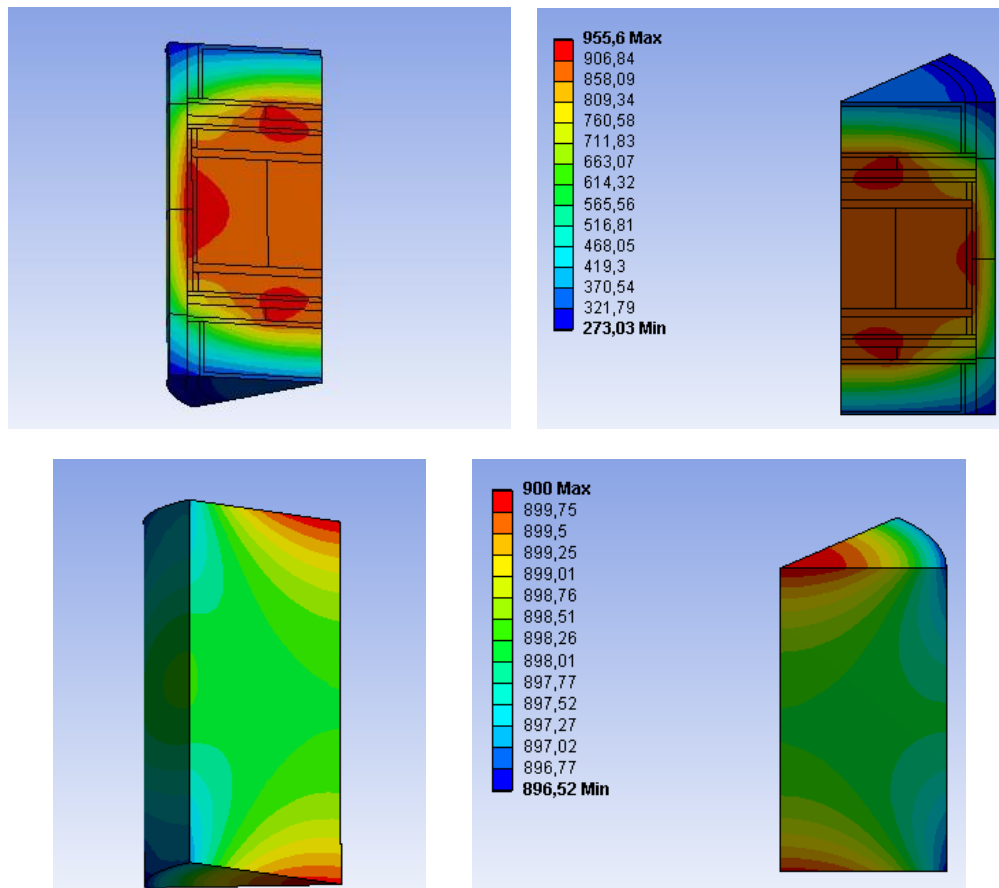


Рис. 6. Поля температури в діагональному і фронтальному перерізах комірки і реакційного об'єму, °С

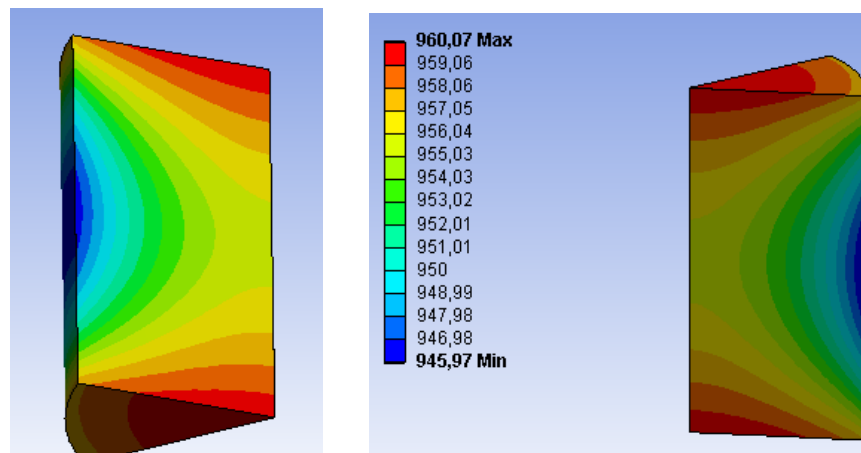


Рис. 7. Поля температури в діагональному і фронтальному перерізах реакційного об'єму, °С.

На рис. 8 наведено розраховані поля температури у зразку PCBN. Визначений тепловий стан для схеми нагрівання реакційного об'єму, коли максимальна температура в зоні спікання становитиме 1400°C за тиску 4,2 ГПа, характеризується максимальним перепадом температури у 5°C, що підтверджує ефективність вибраної схеми нагрівання комірки АВТ.

**Задача 4** – дослідити тепловий стан композита 90 % cBN–10 % Al для схеми нагрівання комірки, що відповідає провідному стану зразка при  $p = 4,2$  ГПа і потужності струму нагрівання 10,59 кВт, розрахованої для ізоляційного стану зразка, нагрітого до  $T = 1400^\circ\text{C}$ .

На рис. 9 наведено розраховані поля температури

у зразку. У випадку плавлення алюмінію зразок стає провідним і стабілізація потужності на рівні 10,59 кВт, необхідної для нагрівання непровідного зразка до 1400 °С за тиску 4,2 ГПа, призводить до збільшення перепаду температури в ньому з 5 до 23 °С, збільшення струму нагрівання і, відповідно, до зменшення напруги. Проте, і за такого перепаду температури маємо достатньо однорідні умови термобаричної дії в об'ємі PCBN-матеріалу.

В узагальнюючій табл. 1 наведено значення тиску і розраховані параметри спікання (екстремуми температури, напруга, сила струму, потужність) в реакційному об'ємі для чотирьох схем спікання.

Вищенаведені дані отримані для двох крайніх значень опору зразка cBN–Al (ізоляційного і провідного). Для аналізу впливу опору зразка на зміну термоелектричних параметрів спікання провели їх розрахунки і побудували графіки залежності напруги  $U$ , сили струму  $I$  в АВТ і перепаду температури  $\Delta T$  у зразку від його опору (рис. 10). Розрахунки проводили для двох етапів нагрівання: за умови незмінної потужності струму нагрівання  $W = 6,59$  кВт (перший етап) і  $W = 10,59$  кВт (другий етап). Для моделювання переходу зразка cBN–Al від ізоляційного до провідного стану задавали значення його питомого

опору в інтервалі  $10^5$ – $10^{-5}$  Ом·м з логарифмічним кроком -1.

Як видно з графіків, за значення опору зразка  $\sim 10^{-3}$  Ом·м відбувається різке зростання сили струму нагрівання АВТ і перепаду температури у зразку з одночасним падінням напруги в апараті. Величина розрахованого перепаду температури у зразку у  $14^\circ\text{C}$  на першому і  $23^\circ\text{C}$  на другому етапі спікання за його опору у  $10^{-5}$  Ом·м забезпечує доволі однорідний тепловий стан зразка за його реакційного спікання.

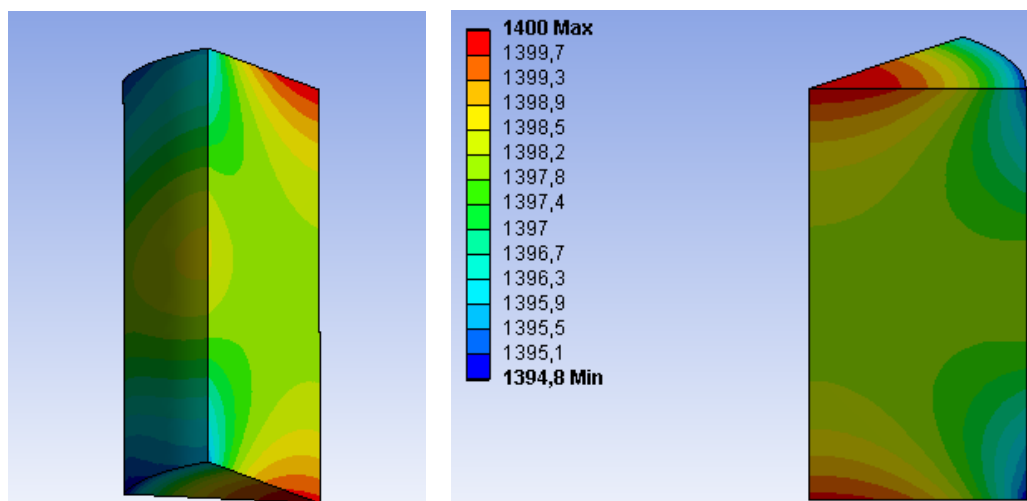


Рис. 8. Поля температури в діагональному і фронтальному перерізах комірки і реакційного об'єму,  $^\circ\text{C}$ .

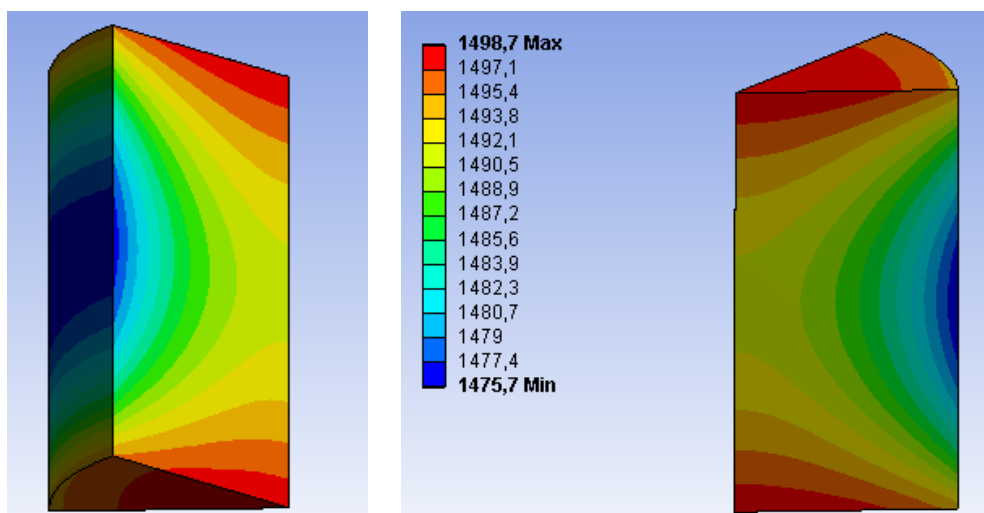


Рис. 9. Поля температури в діагональному і фронтальному перерізах комірки і реакційного об'єму,  $^\circ\text{C}$ .

Таблиця 1.

Параметри спікання PCBN-зразка 90 % cBN–10 % Al

| Схема №                   | $T, ^\circ\text{C}$                                | $p, \text{ГПа}$ | $U, \text{В}$ | $I, \text{кА}$ | $W, \text{кВт}$ |
|---------------------------|----------------------------------------------------|-----------------|---------------|----------------|-----------------|
| 1<br>(зразок – ізолятор)  | $T_{\text{max}} = 900$<br>$T_{\text{min}} = 897$   | 2               | 4,4075        | 1,495          | 6,59            |
| 2<br>(зразок – провідник) | $T_{\text{max}} = 960$<br>$T_{\text{min}} = 946$   | 2               | 4,018         | 1,642          | 6,60            |
| 3<br>(зразок – ізолятор)  | $T_{\text{max}} = 1400$<br>$T_{\text{min}} = 1395$ | 4,2             | 5,8732        | 1,803          | 10,59           |
| 4<br>(зразок – провідник) | $T_{\text{max}} = 1499$<br>$T_{\text{min}} = 1476$ | 4,2             | 5,345         | 1,981          | 10,59           |

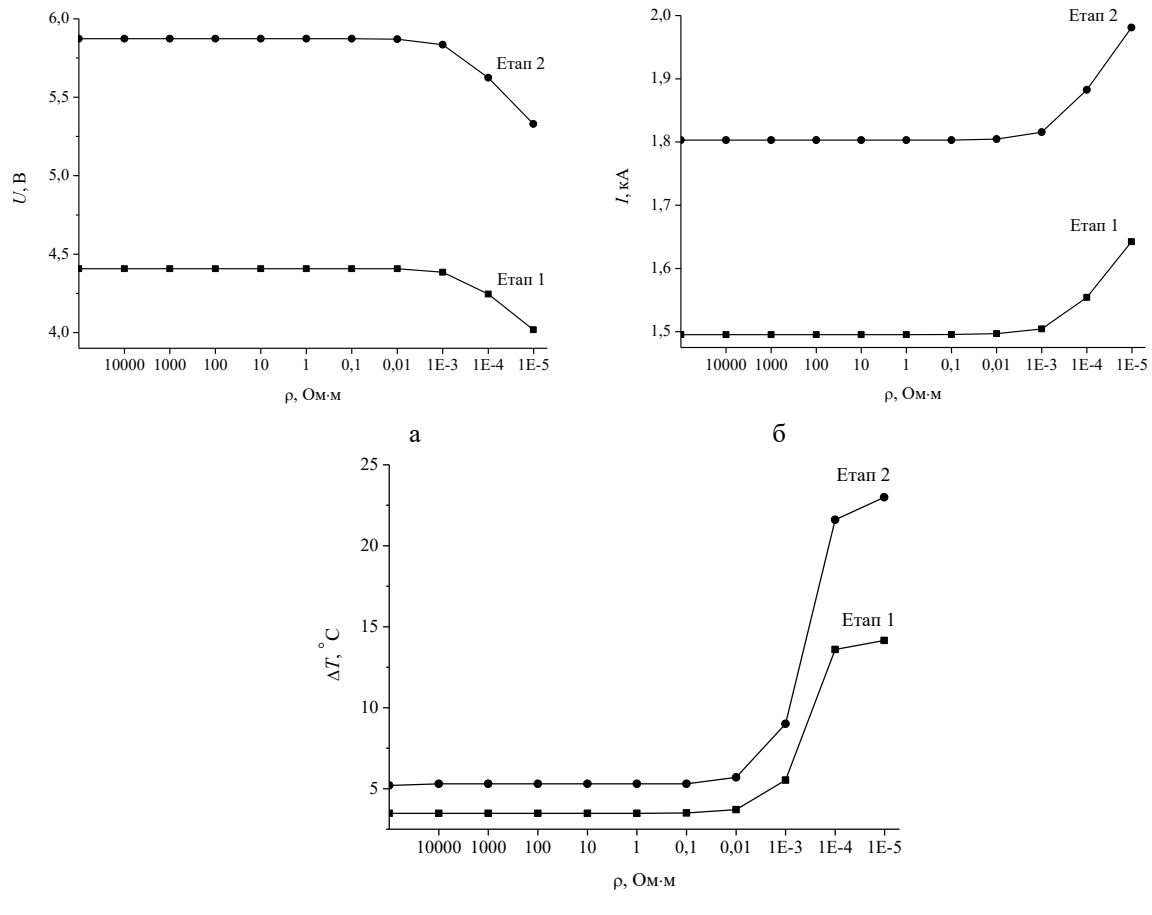


Рис. 10. Динаміка зміни термоелектричних параметрів в АВТ в процесі просочування розплавом Al зразка PCBN на першому і другому етапах реакційного спікання відповідно за потужності у 6,59 і 10,59 кВт.

## Висновки

1. Розроблена методика моделювання електрорезистивного нагрівання шестипуансонного АВТ в процесі двостадійного реакційного спікання PCBN-композита системи cBN–Al дозволяє визначати зв'язані термоелектричні поля напруги, щільності струму, джерел джоулевого тепла і температури. Відповідне моделювання проведено з урахуванням залежності провідних властивостей матеріалів складових елементів АВТ від температури і тиску. Визначено термоелектричний стан кубічної комірки АВТ за умови ізоляційного і провідного стану досліджуваного зразка 90 % cBN–10 % Al (за масою).

2. Розрахунки показали, що за тиску у 2 ГПа та потужності струму нагрівання у 6,6 кВт для ізоляційного стану досліджуваного зразка максимальний перепад температури  $\Delta T_{\text{max}}$  у ньому становить 3 °C, для провідного стану – 14 °C. За тиску у 4,2 ГПа та потужності струму нагрівання у 10,6 кВт  $\Delta T_{\text{max}} = 5$  °C і  $\Delta T_{\text{max}} = 23$  °C відповідно для ізоляційного і провідного стану зразка. Таким чином, перехід від ізоляційного до провідного стану досліджуваного зразка призводить до зростання максимального перепаду температури у ньому, разом з тим температурні умови залишаються досить

однорідними і прийнятними для проведення реакційного спікання.

3. Встановлено, що при переході зразка від діелектричного до провідного стану в результаті плавлення алюмінію термоелектричні параметри спікання починають змінюватися за опору зразка  $\sim 10^{-3}$  Ом·м, що характеризується падінням напруги з одночасним зростанням величини струму і температури за однакової потужності струму нагрівання АВТ.

**Людвіченко Олексій Петрович** – доктор філософії (механічна інженерія), науковий співробітник відділу фізико-механічних досліджень та нанотестування матеріалів;

**Лещук Олександр Олександрович** – доктор технічних наук, старший науковий співробітник, завідувач відділу фізико-механічних досліджень та нанотестування матеріалів;

**Анісін Олександр Михайлович** – молодший науковий співробітник відділу фізико-механічних досліджень та нанотестування матеріалів;

**Беженар Микола Павлович** – доктор технічних наук, старший науковий співробітник, провідний науковий співробітник відділу створення надтвердих матеріалів при високих тисках.

- [1] N.V. Novikov (Ed.), *Tools made from superhard materials*. (Mashinostroenie, 2005).
- [2] M.P. Bezhenar, S.A. Bozhko, T.O. Harbuz, & S.M. Konoval, *Composites of cubic boron nitride strengthened by refractory borides*, *Rock Destruction and Metal-Working Tools – Techniques and Technology of the Tool Production and Applications*, ISM im. V.N. Bakulia, NAN Ukrainy, 12, 223 (2009).
- [3] S.M. Konoval, T.O. Harbuz, M.P. Bezhenar, S.A. Bozhko, P.A. Nahorny, N.M. Biliavyna, & V.Ya. Markiv, *Reactive sintering of cubic boron nitride with aluminum and refractory compounds at high pressure*, *Ibid*, 235 (2009).
- [4] N.V. Novikov (Ed.), *Synthesis, sintering and properties of superhard materials: coll. sci. Papers*, (ISM im. V.N. Bakulia NAN Ukrainy, 2005).
- [5] N.V. Novikov, *Synthetic superhard materials: in 3 vol. Vol. 1: Synthesis of superhard materials*, (Nauk. dumka, 1986).
- [6] O. Lyeshchuk, *Computational modeling of superhard materials synthesis*, *Comp. Mater. Sci.*, 49 (1S), S85 (2010); <https://doi.org/10.1016/j.commatsci.2010.01.047>.
- [7] R. Li, G. Zheng, Y. Liu, M. Wang, P. Chen, M. Chen, & Q. Zhang, *Finite element design of a temperature field for high-pressure diamond synthesis*, *Diam. Relat. Mater.*, 69, 133 (2016); <https://doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2017.12.021>.
- [8] Y. Li, C. Wang, N. Chen, L. Chen, L. Guo, X. Jia, & H. Ma, *Significant improvement of multi-seed method of diamond synthesis by adjusting the lateral cooling water temperature*, *Cryst. Eng. Comm.*, 19, 6681 (2017); <https://doi.org/10.1039/c7ce01685a>.
- [9] T.S. Panasyuk, O.O. Lyeshchuk, V.V. Lusakovs'kyi, V.A. Kalenchuk, & O.O. Zanevs'kyi, *Modeling of temperature fields in the growth volume of the high-pressure cell of the six-punch high pressure apparatus in growing of diamond crystals by T-gradient method*, *J. Superhard Mater.*, 39 (6), 390 (2017); <https://doi.org/10.3103/s1063457617060028>.
- [10] R. Li, M. Ding, & T. Shi, *Finite element design for the HPHT synthesis of diamond*, *J. Cryst. Growth*, 491, 111 (2018); <https://doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2017.12.021>.
- [11] V.A. Dutka, A.L. Maystrenko, O.I. Borymskyi, V.G. Kulich, & T.O. Kosenchuk, *Modeling the temperature field in a high-pressure apparatus during the sintering of large-sized products based on boron carbide*, *J. Superhard Mater.*, 42 (4), 240 (2020); <https://doi.org/10.3103/s1063457620040048>.
- [12] O.P. Liudvichenko, O.O. Lyeshchuk, & I.A. Petrusha, *Effect of the concentration of components and the size of heaters on the thermal state of a high-pressure cell to study the solubility of gallium nitride in iron*, *Ibid*, 45 (2), 83 (2023); <https://doi.org/10.3103/s1063457623020077>.
- [13] W. Chen, & D.L. Decker, *Pressure dependence of the thermal conductivity of pyrophyllite to 40 kbar*, *J. Appl. Phys.*, 71 (6), 2624 (1992); <https://doi.org/10.1063/1.351056>.
- [14] O.V. Savitskyi & V.V. Lysakovskiy, *Electrical conductivity of resistive heating graphite parts made by pressing*, *Rock Destruction and Metal-Working Tools – Techniques and Technology of the Tool Production and Applications*, ISM im. V.N. Bakulia, NAN Ukrainy, 21, 295 (2018); <http://jnas.nbu.gov.ua/article/UJRN-0001084522>.
- [15] E. Solfiti & F. Berto, *A review on thermophysical properties of flexible graphite*, *Procedia Struct. Integrity*, 26, 187 (2020); <https://doi.org/10.1016/j.prostr.2020.06.022>.

O.P. Liudvichenko, O.O. Lyeshchuk, O.M. Anisin, M.P. Bezhenar

## Numerical determination of thermoelectric parameters for two-stage sintering of cBN–Al system samples in a high-pressure cubic cell

Bakul Institute for Superhard Materials of the National Academy of Sciences of Ukraine, Kyiv, Ukraine, [ludvial@ukr.net](mailto:ludvial@ukr.net)

Preliminary numerical modeling of coupled electric and thermal fields in a six-punch HPA during reaction sintering of massive samples of PCBN has been performed. It was assumed that the sintering of the superhard composite is carried out from the cBN–Al charge. The FEM code was used to solve the steady problem of electro- and thermal conductivity. The conductive properties of the cell materials were adjusted to meet the conditions of its thermobaric loading. The obtained results allow us to determine the level of thermoelectric parameters of two-stage reaction sintering and evaluate the effect of changes in the conducting properties of the cell on the thermal state of PCBN samples.

**Keywords:** polycrystalline cubic boron nitride (PCBN), high-pressure apparatus (HPA), thermal state, modeling.