

基于铰链式六面顶压机的二级 6-8 型大腔体静 高压装置^{*}

王福龙 贺端威[†] 房雷鸣 陈晓芳 李拥军 张伟 张剑 寇自力 彭放

(四川大学原子与分子物理研究所, 成都 610065)

(2007 年 12 月 18 日收到, 2008 年 1 月 17 日收到修改稿)

报道了一种新型二级 6-8 型大腔体静高压装置. 该装置是以国产 DS6 × 800T 铰链式六面顶压机为构架, 在其六面体压腔中直接放入二级 6-8 模(球分割)增压装置以产生 10 GPa 以上的压力, 还实验了不同规格的预密封边和不同密度的叶蜡石对压力产生效率的影响. 在室温下用 Bi I - II (2.55 GPa), III - V (7.7 GPa) 和 Sn I - II (9.4 GPa) 在高压下的相变对 14/8 面体传压介质(边长/8 面体压腔边长)规格压腔进行了压力标定. 实验结果表明, 该系统可以在加载压力(油压)约为 3×10^6 N (~42 MPa) 的情况下产生约 10 GPa 的压力, 样品尺寸可以达到 3—4 mm³.

关键词: 铰链式六面顶压机, 6-8 型球分割大腔体静高压装置, 压力标定

PACC: 0735, 0630N

1. 引 言

大腔体(样品体积 > 1 mm³)静高压装置始于上世纪初 Bridgman 等发展的高压技术, 包括两面顶与多面体压腔装置^[1]. 两面顶压腔主要有凹曲面压腔、年轮式压腔、柱塞式压腔等, 其所能产生的最高压力约为 12 GPa^[2-4]. 多面体压腔装置包括四面体压机、6 面体/顶压机及 8 面体压机(又称球分割高压装置), 其中 4 面体压腔已基本不再使用. 6 面顶压机又分为铰链式和拉杆式两种, 如采用 WC 作为超高压部件, 6 面体及 8 面体压腔目前所能达到的最高压力约为 15—30 GPa^[5,6].

目前国际上运行良好的大腔体静高压实验室中, 其拥有的球分割大腔体静高压装置通常可获得 15—25 GPa 的高压条件, 此类装置一般是在六面体压腔中放入一套八面体增压单元, 成为二级 6-8 面体高压腔^[5-11], 如使用 WC 作为二级 8 面体增压单元材料, 最高压力可达约 30 GPa^[5,6]. 国外的 8 面顶压机主要是拉杆式, 结构复杂, 且造价高^[1], 因此目前运行的 8 面体压腔均基于两面顶压机机构架, 采用滑块式组装转变为 6 面体压腔, 再内置 8 面体二级增压单元成为基于两面顶压机机构架下的二级 6-8 模

大腔体静高压装置^[5-11]. 采用滑块式组装将两面顶压机机构架转变为 6 面体压腔时, 由于滑块与系统之间摩擦会消耗一部分加载, 因而影响传递到样品上的压力效率, 而且对滑块材料的质量及加工精度要求严格, 使得此类装置的制造和使用成本都很高.

我国目前有十个左右的大腔体静高压实验室, 其装置基本上为国产铰链式 6 面顶压机. 国产铰链式 6 面顶压机有结构简单、造价低、安装方便等优点, 但目前所能达到的最高压力一般仅为 6 GPa. 本文结合二级 6-8 型大腔体静高压装置和国产铰链式 6 面顶压机的优点, 设计出了基于 6 面顶压机机构架下的二级 6-8 型大腔体静高压装置^[12], 并在室温下用 Bi 和 Sn 进行了压力标定. 实验观测到 Bi 的 I - II, III - V 相变点(对应实际压力分别为 2.55 GPa, 7.7 GPa)^[6,9,13,15]在加载压力为 56(对应系统油压为 8 MPa), 202t(对应系统油压为 28.7 MPa)时出现, Sn 的 I - II 相变点(对应实际压力约 9.4 GPa)^[13-18]在加载压力为 284(对应系统油压为 40.3 MPa)时出现. 本实验表明, 二级 6-8 模增压装置可以突破两面顶压机机构架的限制, 能直接在 6 面顶压机上集成, 并且有结构简单、安装方便、成本低、产生压力效率高等优点. 一整套此类装置包括安装费用仅为目前通用的、基于两面顶压机机构

^{*} 国家自然科学基金(批准号 50572067)资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: duanweihe@yahoo.com

架下的二级 6-8 模大腔体静高压装置(约 450 万人民币)的四分之一,因此能够使二级 6-8 型大腔体静高压装置在高压科学与技术领域内得到进一步推广和应用,特别是对提高我国相关实验室的实验条件有重要意义。

2. 实验设计原理与设备构造

2.1. 实验设计原理

如不考虑材料强度及其他因素的影响,高压装置所能产生压强的大小是由加载压力和腔体受力面积所决定的(压力/受力面积),因此要提高压强,就只有提高压力或减小受力面积(腔体几何尺寸)。二级 6-8 型大腔体静高压装置就是在系统加载压力不能进一步提高的情况下,通过减小受力面积而提高腔体内的压强的。目前世界范围内高压领域中大于 10 GPa 的二级 6-8 模大腔体静高压装置一般基于两面顶压机构架,采用滑块式组装转变为 6 面体压腔,再内置 8 面体二级增压单元,成为基于两面顶压机构架下的二级 6-8 模大腔体静高压装置^[5-11]。此类基于两面顶压机构架下的大腔体静高压装置,由于滑块自身及与系统之间摩擦作用会消耗一部分加载压力,因而产生压力的效率比较低。本文对本实验室现有的国产铰链式 6 面顶压机的油路系统和控制系统进行了改造,可以实现升、卸压速度的无级变速可调。我们通过对现有国产 6 面顶压机的改造,设计出一种基于 6 面顶压机构架下的二级 6-8 型大腔体静高压装置,把目前国际上二级 6-8 型大腔体静高压装置中通用的二级 6-8 型增压单元直接放入 6 面顶压机压腔中,构成本文设计的基于 6 面顶压机构架下的二级 6-8 型大腔体静高压装置,如图 1 所示。因此基于 6 面顶压机构架下的此类装置是一级压腔的 6 个顶锤直接作用在二级增压单元的 6 个面上,减少了基于两面顶压机构架下由两面顶向 6 面顶转换过程中由于系统摩擦而损耗的压力。同时,由于国产铰链式 6 面顶压机具有良好的自调整对中性,有利于提高对二级增压单元的加载速率,并在超高压发生过程中以较短的时间形成均匀的传压介质密封边,以保障系统在高压下的稳定性。

2.2. 设备构造

本文设计的大腔体静高压装置主要由二级 6-8

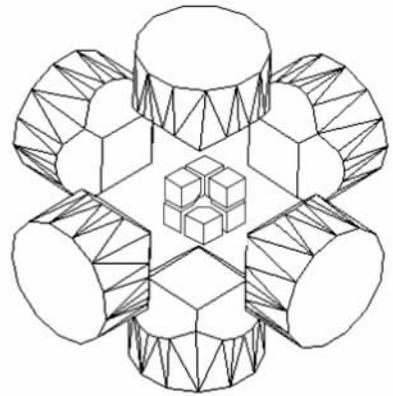


图 1 二级 6-8 模球分割大腔体静高压装置原理示意图

模球分割压腔和 8 面体传压介质两部分构成。

二级 6-8 模球分割压腔由一级 6 面体压腔和二级 8 面体增压单元组成。我们对一级 6 面体压腔所用顶锤的材料和尺寸进行了重新设计和改造,使之与第二级 8 面体增压单元的几何结构相匹配(如图 1)。二级 8 面体增压单元由切去一个角的 8 个小正方体组成(如图 2)^[6-8,11,13]。本文中设计的二级 8 面体增压单元中的每一个小正方体的边长为 18 mm,小正方体切去一个角并打磨成边长为 8 mm 的正三角形截面(如图 3)。如图 2 所示,8 个相同尺寸的切角小正方体组成第二级的 6-8 模增压单元^[6-8,11,13]。由于内置 8 面体传压介质形成的密封边有限,所以我们在每相邻两个切角小正方体空隙之间,靠近正三角形截面的部位放置叶蜡石预密封边,并有聚四氟乙烯包裹^[6-8,11,13],以防在增压开始时叶蜡石预密封边的脱落。最后在相邻正方体之间用与预密封边高度相同的木块支撑,使二级 6-8 模增压单元平稳固定,便于组装。

目前国际上此类装置中 8 面体传压介质的边长和增压单元中切角正三角形的边长(密闭时 8 面体高压腔的边长)一般相差约 6 mm^[6-8,9,11],结合本文中的小正方体切角三角形的边长为 8 mm,因此我们在本实验中设计的 8 面体传压介质的边长为 14 mm,如图 2。

3. 压力标定

一些金属如 Bi, Sn, 在高压下会发生相变并伴随有电阻的突变,这些电阻突变时对应的实际压力已经被前人标定^[6,9,13,15-18],因此可以根据这些金属在高压下的电阻突变,来标定高压装置腔体中样品

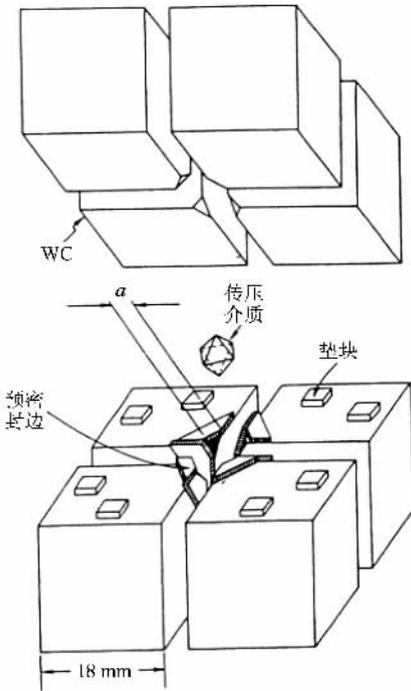


图 2 二级 6-8 模增压单元构成图

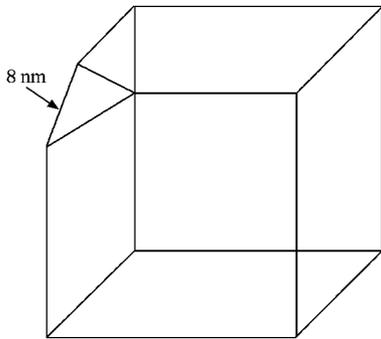


图 3 增压单元中的切角小正方体

的实际压力与加载压力(油压)的对应关系。

本实验在油路及控制系统经过改造的国产铰链式 6 × 800T 6 面顶压机上进行。改造过的控制系统可以使压机在增压和卸压过程中实现油压的无级变速可调,在增压和卸压过程中实际油压和设定油压可以保持 ± 0.01 MPa 的控制精度,并可长期保压 (> 30 h)。系统油压的无级变速可调可以使传压介质在增压过程中缓慢均匀地形成密封边,避免由于预密封边不均匀而造成放炮现象的发生。另外,该控制系统在超压之前有一个暂停连通充液的过程,可以保证一级压腔的 6 个顶锤同时加载在二级增压单元的 6 个面上,使 8 个小正方体受力均匀,也有利于

形成均匀的密封边及系统的自调整对中。

我们实验了成分相同而密度不同的叶蜡石传压介质及不同规格尺寸的预密封边对传压效率的影响。如图 4 所示,一组直接用普通粉压叶蜡石块在多用磨床上加工成边长为 14 mm 的正 8 面体,中间放入标压用的 Bi,Sn 丝,并由铜泊引入恒定电流及引出电压信号,以测量高压下标压物质的电阻变化。另一组的叶蜡石块先在 6 面顶压机上经过 ~ 2 GPa 的预压处理,然后同样加工成边长为 14 mm 的正 8 面体传压介质,在中间放入标压用的 Bi,Sn 丝,进行压力标定。

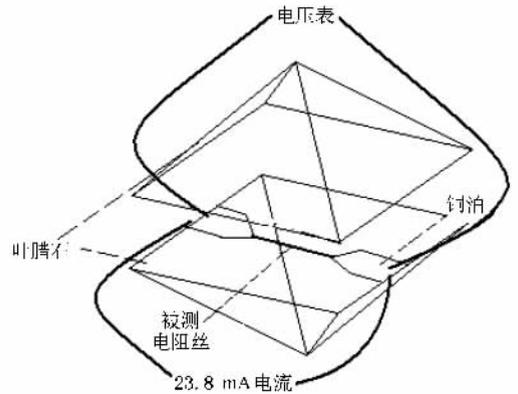


图 4 测量标压物质电阻变化的电路连接示意图

在本实验中,我们用高纯(99.99%)Bi,Sn 丝做标压材料,实验时的油压及电压信号由 AX-104-1-3 型多通道记录仪同时显示并记录。每一次实验都在室温下用 3 h 使系统加载油压由 0 缓慢增加到 45 MPa(315t)。经过一系列实验,我们发现采用尺寸合适的预密封边及用预压处理过的叶蜡石作为传压介质时,腔体实际压力可以在加载为 284 (40.3 MPa) 时达到 10 GPa 左右。图 5、6 是采用规格合适的预密封边及用预压处理过的叶蜡石作为传压介质时的油压与标压物质电阻变化的对应关系曲线。

4. 实验结果与讨论

在本装置中,我们实验了不同规格的预密封边以及不同密度的叶蜡石传压介质对压力产生效率的影响。实验结果显示,预密封边的尺寸和叶蜡石的密度对压力的产生效率都有很明显的影 响。表 1 和图 7 分别给出了不同规格的预密封边及不同密度的叶蜡石对系统加载与样品实际压力关系的影响。

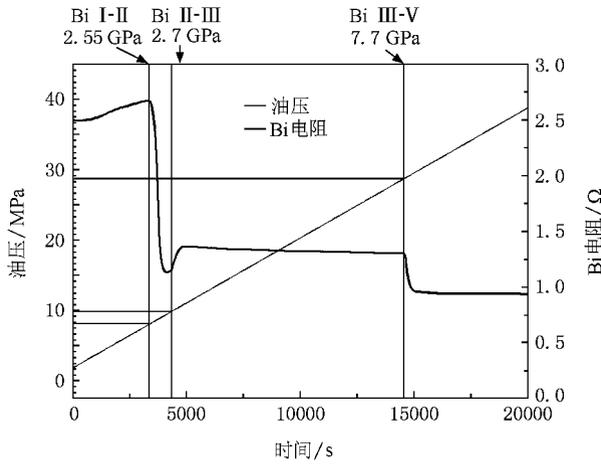


图 5 Bi 的电阻变化与系统油压对应曲线

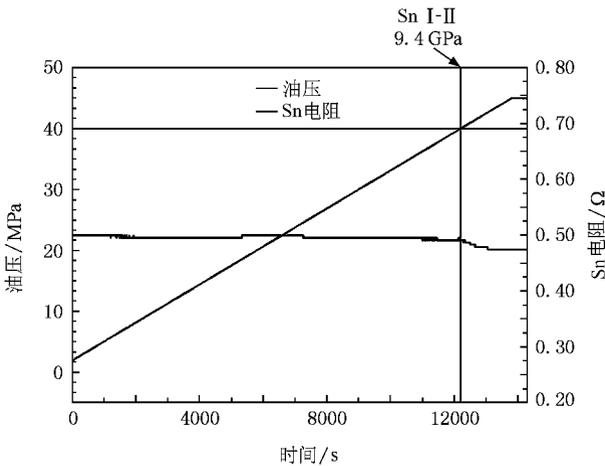


图 6 Sn 的电阻变化与系统油压对应曲线

表 1 不同规格预密封边对压力产生效率的影响

相变点压力/GPa	预密封边规格/mm	
	4.85 ^{a)} × 5.3 ^{b)}	4.5 ^{a)} × 3.5 ^{b)}
相变出现时的 加载/t	B(2.55) B(2.7) B(7.7)	70 99 没出现*
		58 77 291

* 实验中的最高加载压力为 315t, 本次实验用叶蜡石没有经过预压处理. a) 预密封边高度 b) 预密封边宽度.

从表 1 中可以看出, 不同规格的预密封边对压力产生效率有很明显的影响, 预密封边的规格只有在既能起到密封高压腔体, 又能使腔体与增压单元空隙最小时, 系统产生压力的效率才最高. 从实验后的组件看, 4.85 mm × 5.3 mm 规格的预密封边能很好地密封高压腔体, 但已经充满相邻两个小正方体之间的整个空隙, 而另一种规格预密封边也能很

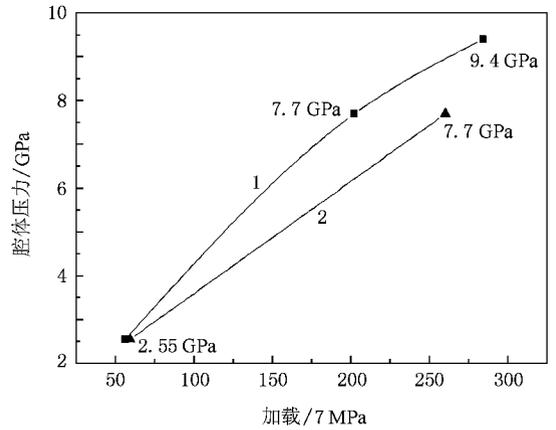


图 7 不同密度的叶蜡石对压力产生效率的影响(此实验中最大加载加为 315t, 所用预密封边规格为 4.5 mm × 3.5 mm. ■为经过 ~ 2 GPa 预压处理过的叶蜡石传压介质, 密度为 2.68 g/cm³; ▲为没有经过预压处理的叶蜡石, 密度为 2.5 g/cm³)

好地密封腔体, 但只充满了相邻两个小正方体之间空隙的一半, 如图 8 所示. 前者虽然能够起到很好的密封作用, 但是由于在小正体之间的空隙被完全充满, 使得小正体之间进一步前进挤压传压介质的阻力增大, 导致相当一部分的加载压力被预密封边所吸收, 以克服预密封边对小正体前进时产生的阻力, 而另一种规格的密封边由于没有充满整个空隙, 在加载时预密封边施以较小的压力就可以延展变薄, 这就有利于小正体进一步前进挤压腔体中传压介质, 从而提高腔体的实际压力.

如图 7 所示, 在超高压下叶蜡石传压介质的密度对压力的产生效率亦有很明显的影响. 在高压下预压过的叶蜡石与没有经过预压处理的叶蜡石相比, 产生压力的效率会提高 15% 以上^[19]. 这是因为传压介质的传压效果一般与传压介质的强度和传压介质与顶锤之间的摩擦系数有关. 相同成分的叶蜡石, 其与顶锤之间的摩擦系数相同, 传压效果主要取决于本身的强度. 其密封边的强度可以由公式 $\gamma = h \frac{dp}{dl}$ 表示, 其中 γ 是密封边的强度, h 是密封边的厚度, $\frac{dp}{dl}$ 是密封边的压力梯度. 在预密封边的尺寸不变的情况下, 所形成的密封边的厚度是一定的, 即 γ 是一个定值. 在本次实验中我们在高压下预压叶蜡石提高其密度, 密度的增加使得叶蜡石内的空隙减少, 强度提高, 在 γ 不变的情况下 $\frac{dp}{dl}$ 必然变大, 也就是说在形成的密封边上压力梯度变大, 就可能封住

更高的压力.实验发现在预压压力为 1 GPa 以下,叶蜡石的传压效果随压力的增加有明显提高^[18].这是因为在预压压力小于 1 GPa 时,叶蜡石密度随压力的增加有明显的提高,密度的增加使得叶蜡石内的

空隙减少,强度提高,进而传压效果也会提高.而在预压压力大于 1 GPa 时,叶蜡石的密度随压力增加趋于一个稳定值,叶蜡石强度不再有明显的进一步提高.

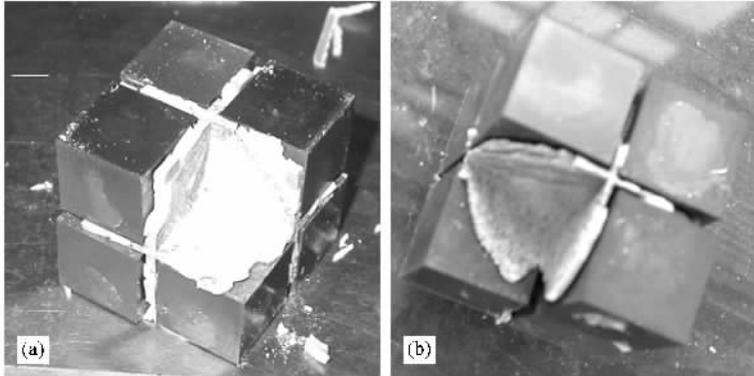


图 8 两种不同规格预密封边在高压实验后所形成的密封边照片 (a)(b)分别 4.85 mm × 5.3 mm 4.5 mm × 3.5 mm 规格的预密封边在高压实验后所形成的密封边

基于 6 面顶压机构架下的本装置与基于两面顶压机构架下的同类装置相比,由于减少了由两面体压腔向 6 面体压腔转换的过程而减少了系统间的摩擦力,进而产生压力的效率要高,详细结果见图 9.

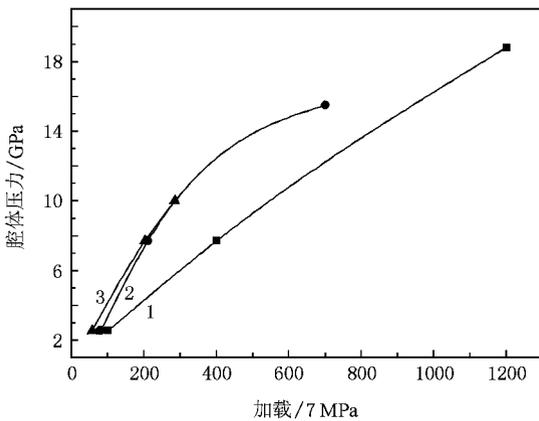


图 9 不同二级 6-8 模球分割大腔体静高压装置的压力产生效率比较 (■为文献 9 中的实验结果(传压介质为 MgO,所用腔体规格为 14/8);●为文献 6 结果(传压介质为 MgO,所用腔体规格为 14/7.5);▲为本文结果(传压介质为叶蜡石,所用腔体规格为 14/8))

下一步我们将在此基础上设计不同规格和不

同材料的二级 8 面体高压腔,并对本实验室现有的 6 × 2500t 铰链式 6 面顶压机进行改造,在其上集成二级 6-8 型大腔体静高压装置,希望最终设计集成出可以产生 50 GPa、样品尺寸可以达到 3 mm³ 的基于 6 面顶压机构架下的二级 6-8 型大腔体静高压装置.

5. 结 论

上述实验结果表明,大腔体静高压技术中的二级 6-8 型增压装置完全可以去掉由两面体压腔向 6 面体压腔转换的过程,直接在 6 面顶压机上集成.与基于两面顶压机构架下的此类装置相比,基于铰链式 6 面顶压机的二级 6-8 型大腔体静高压装置有结构简单、产生压力效率高、成本低等优点.实验结果显示,预密封边的尺寸会影响系统的压力产生效率,成分相同而密度不同的叶蜡石也会对压力效率有明显的影响.

感谢四川大学原子与分子研究所高压科学与技术实验室的老师与同学对本实验的帮助.

[1] Sung C M 1997 *High Temp. - High Pressures* **29** 253

[2] Khvostantsev L G 1984 *High Temp. - High Pressures* **16** 165

- [3] He D W , Zhao Y S , Daemen L L , Qian J , Lokshin K , Shen T D , Zhang J , Lawson A C 2004 *J. Appl. Phys.* **95** 4645
- [4] Zhao Y S , He D W , Jiang Q , Pantea C , Lokshin K A , Zhang J Z , Daemen L L 2005 TAP-98 , in the HiPPO diffractor , in *Advances in High-pressure technology for Geophysical Applications* (Elsevier B. V.) p461
- [5] Wang Y B , Durham William B , Getting Ivan C , Weidner Donald J. *Rev. Sci. Instrum.* **74** 3002
- [6] Liebermann Robert C , Wang Y B 1992 *High-Pressure Research : Application to Earth and Planetary Sciences* (Washington DC : AGU) p19
- [7] Tomoo K , Ken-ichi F , Atsushi K , Norimasa N , Yoshinori T , Sueda Y , Tomoaki K , Wataru U 2004 *Phys. Earth Planet. Int.* **143-144** 497
- [8] Reza A , Henry Z , Carter C 2005 *Dia. Relat. Mater.* **14** 1916
- [9] Frost D J , Poe B T , Trønnes R G , Liebske C , Duba A , Rubie D C 2004 *Phys. Earth Planet. Int.* **143-144** 507
- [10] Naoto Kawai , Shoichi Endo 1970 *Rev. Sci. Instrum.* **41** 1178
- [11] Cordier P , Rubie D C 2001 *Mater. Sci. Engineering A* **309-310** 38
- [12] He D W , Wang F L , Kou Z L , Peng F *Chinese patent* (application No. 200710048839.2) [贺端威、王福龙、寇自力、彭 放、中国专利 (申请号 200710048839.2)]
- [13] Liebermann Robert C , Prewitt Charles T , Weidner Donald J 1985 *EOS* **66** 138
- [14] Bean V E , Akimoto S , Bell P M , Block S , Holzapfel W B , Manghnani M H , Nicol M F , Stishov S M 1986 *Physica B* **138&140** 52
- [15] Andersson G , Sundqvist B , Bäckström G 1989 *J. Appl. Phys.* **65** 3943
- [16] Stager R A , Balchan A S , Drickamer H G 1962 *J. Chem. Phys.* **37** 1154
- [17] Dean B J , Bean Vern E , Tracy H H 1966 *J. Appl. Phys.* **37** 875
- [18] Corkill Jennifer L , Garcia Alberto , Cohen Marvin L 1991 *Phys. Rev. B* **43** 9251
- [19] Fang L M , He D W , Chen C , Ding L Y , Luo X J 2007 *High Pressures Research* **27** 367

Design and assembly of split-sphere high pressure apparatus based on the hinge-type cubic-anvil press^{*}

Wang Fu-Long He Duan-Wei[†] Fang Lei-Ming Chen Xiao-Fang Li Yong-Jun Zhang Wei
Zhang Jian Kou Zi-Li Peng Fang

(Institute of Atomic and Molecular Physics , Sichuan University , Chengdu 610065 , China)

(Received 18 December 2007 ; revised manuscript received 17 January 2008)

Abstract

A new split-sphere large-volume high pressure apparatus has been developed to generate high pressure above 10 GPa. The apparatus is based on a domestic hinge-type cubic-anvil press known as the DS6 × 800T press. In this work , the split-sphere parts are directly placed in the cubic-anvil cell , and the effect of the gasket dimension and phyrophyllite density on pressure transmitting efficiency has been investigated. The relationship of cell pressure versus press load was calibrated at room temperature for the 14/8 (octahedral edge-length/anvil truncation edge-length , in millimeters) cell assembly using the phase transitions of Bi I - II (2.55 GPa) , III - V (7.7 GPa) , and Sn I - II (9.4 GPa). The experimental results show that the cell pressure can reach about 10 GPa with a sample volume of 3—4 mm³ under an applied load of 290 ton.

Keywords : hinge-type cubic-anvil press , split-sphere large volume high pressure apparatus , pressure calibration

PACC : 0735 , 0630N

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 50572067).

[†] Corresponding author. E-mail : duanweihe@yahoo.com