

金属 Bi 的卸载熔化实验研究*

谭叶 俞宇颖 戴诚达[†] 于继东 王青松 谭华

(中国工程物理研究院流体物理研究所, 冲击波物理与爆轰物理重点实验室, 绵阳 621900)

(2012年6月26日收到; 2012年8月28日收到修改稿)

在火炮上利用金属铋 (Bi) 直接撞击单晶 LiF 窗口, 开展了金属 Bi 反向碰撞的冲击加载 - 卸载实验研究, 实验采用激光位移干涉测试系统, 获得了金属 Bi 在 11—16 GPa 压力范围内完整的卸载粒子速度剖面. 实验结果结合特征线方法计算表明, 金属 Bi 经冲击加载进入体心立方相, 并在 11—16 GPa 冲击压力作用下发生了卸载熔化, 界面粒子速度剖面的卸载拐点, 对应着金属 Bi 经冲击加载后发生的卸载熔化, 而这一结论同 Cox 的理论计算及一维流体力学程序计算结果基本一致. 本文报道的金属 Bi 卸载波剖面解读技术, 对于认识冲击加载下其他相似材料相变具有实用价值.

关键词: 冲击相变, 反向碰撞法, 卸载熔化, 铋

PACS: 64.70.D-, 62.50.Ef, 61.82.Bg

DOI: 10.7498/aps.62.036401

1 引言

冲击作用下材料的相变特性是地球物理、材料科学甚至武器物理等领域的重要研究内容^[1-3], 与材料的动态响应也密切相关^[4-6]. 通过相变特性的研究, 能够获得材料在相转变时各物理量 (如温度、密度等) 随加载压 (应) 力的变化^[7]; 材料的相变参数也是构建、校验材料多相物态方程的重要数据^[8]. 对于材料的多形相变, 一般可以通过精确的冲击压缩线 (Hugoniot) 测量、动高压加载下界面或自由面加载粒子速度剖面测量进行初步确定; 但对于材料的熔化相变, 由于发生冲击熔化时体积变化一般较小而难以观察到指示熔化的冲击压缩线间断或粒子速度加载剖面上的拐折. 对于卸载过程中发生的熔化, 上述这两种方法更难有效加以诊断. 因而就冲击熔化而言, 需要进行沿 Hugoniot 状态的声速测量才能确定, 而对于卸载熔化, 则需要通过卸载路径测量才有可能加以识别.

金属 Bi 由于存在复杂的相变序列^[9], 且熔点较低, 是一种典型的冲击相变研究材料, 对于加深我们对复杂金属的多形相变、熔化及凝固相变的

认识, 了解材料的物态方程、熔化特性, 促进相关实验技术的发展等具有重要的作用. 在关于金属 Bi 的相变研究中, 前期的研究主要采用电探针等方法^[10], 发现并测定了金属 Bi 各固相之间的相边界, 而关于固-液熔化相变的研究甚少; 后期主要采用发展形成的激光速度干涉测试技术 (VISAR)^[11,12], 通过粒子速度剖面的测量研究金属 Bi 的冲击相变, 获得了金属 Bi 多个多形相变以及弹塑性对这些相变影响的基本认识, 但对金属 Bi 的熔化与凝固, 尤其是卸载熔化与凝固等相变几乎没有涉及. 此外, Johnson 等^[13] 和 Hayes^[14] 通过平衡态计算与实验粒子速度剖面的对比, 初步揭示了相转变过程存在的动力学效应, 并利用相转变率方程描述了该动力学过程; 之后 Wetta 和 Pelisser^[15,16] 和 Cox^[17] 通过理论计算构建了金属 Bi 的多相物态方程, 并勾勒了金属 Bi 的高压熔化曲线和冲击 Hugoniot, 但缺少实验数据的支撑, 相互间计算结果差异较大.

近年来发展的基于反向碰撞实验的卸载粒子速度剖面测量技术^[18], 因其较简单的波系作用而利于获得精细的卸载粒子速度剖面. 本研究工作采用这一技术, 结合新发展形成的激光位移干涉测试技术 (DISAR)^[19,20], 探索通过反向碰撞下样品/窗口

* 中国工程物理研究院双百人才工程 (批准号: ZX01115)、国防基础科研项目 (批准号: B1520110001) 和国家自然科学基金 (批准号: 10972206) 资助的课题.

[†] 通讯作者. E-mail: cddai@caep.ac.cn

界面粒子速度剖面测量获得卸载路径的方法. 基于金属 Bi 的 Hugoniot 和样品/窗口界面卸载粒子速度剖面, 采用特征线法经逐步递推计算得到了沿粒子速度剖面的卸载路径, 研究表明了卸载熔化的发生.

2 实验方法

实验装置如图 1(a) 所示, 实验以金属 Bi 样品为飞片直接撞击单晶 LiF 窗口, 界面粒子速度剖面采用单点 DISAR 测量, 飞片速度 W 采用磁测速系统测量, 同时对窗口碰靶面进行镀膜和贴箔处理 [18]. 在拉格朗日坐标系中 (如图 1(b)), 碰撞发生时产生的左、右行冲击波将分别向样品和窗口内传播, 而左行冲击波与样品后界面相互作用后立即反射追赶稀疏波, 并分别以速度 D_s 和 C_L 传播, 该追赶稀疏波到达样品/窗口界面时由于界面两侧的阻抗差异会再次发生反射, 最终使样品和窗口中的压力、粒子速度等状态由初始的 $p_{0s}, u_{0s}, p_{0w}, u_{0w}$ 突变为 p_s, u_s, p_w, u_w .

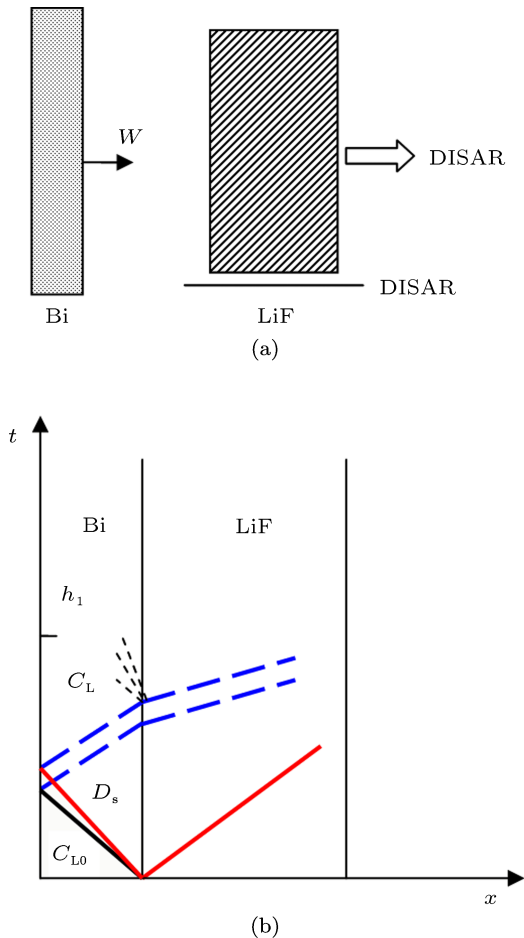


图 1 反向碰撞法示意图 (a) 实验装置; (b) 波系传播

由于阻抗不匹配而形成样品/窗口界面处复杂的相互作用, 基于 DISAR 测试系统得到的 Bi/LiF 界面的粒子速度剖面, 是阻抗不匹配形成的卸载稀疏波后状态, 因而为了获得样品中的原位粒子速度, 需要对实验获得的粒子速度剖面进行修正. 该修正主要包括: 1) 冲击压致或温致窗口折射率变化 [20,21]; 2) 测量的界面粒子速度由于样品/窗口阻抗不匹配, 并非样品中未受到界面反射前的原位粒子速度 [22]. 因此为了获得沿着卸载路径的原位粒子速度, 除了粒子速度剖面的折射率修正, 还需要结合特征线理论和阻抗匹配法 [23], 基于特征线公式:

$$\begin{aligned} du_s &= \frac{1}{2} \left[du_w + \frac{d\sigma_w}{(\rho_0 C_L)_s} \right], \\ d\sigma_s &= \frac{1}{2} \left[d\sigma_w + (\rho_0 C_L)_s du_w \right], \end{aligned} \quad (1)$$

由实测界面粒子速度反向递推获得样品中原位粒子速度 (如图 2). 其中, 窗口中的应力 σ_w 和粒子速度 u_w 的关系为

$$\sigma_w = \rho_{0w}(C_{0w} + \lambda_w u_w)u_w, \quad (2)$$

下标 s, w 分别对应着样品、窗口内的状态, ρ_0 为初始密度. 而样品内的拉格朗日声速 C_L 则可以利用公式

$$C_L = \frac{h_s}{\Delta t - h_s/D_s} \quad (3)$$

获得, 其中 Δt 为冲击波及反射稀疏波在金属 Bi 样品内的传播时间, h_s 为金属 Bi 样品厚度, D_s 为冲击波在金属 Bi 样品内的传播速度. 若金属 Bi 样品内弹性前驱波波速大于冲击波速度时, 碰撞后弹性前驱波会先于冲击波到达金属 Bi 样品后界面, 因而声速的计算需考虑弹性前驱波作用, 此时金属 Bi 样品内的拉格朗日纵波声速 C_L [24] 为

$$C_{SL} = \frac{h_s - h_1}{\Delta t - (h_s + h_1)/C_{L0}}, \quad (4)$$

C_{L0} 为弹性前驱波速度, $h_1 = h_s \frac{C_{L0} - D_s}{C_{L0} + D_s}$.

根据基本 (1) 式和 (2) 式, 卸载路径的计算方法可以概括如下:

- 1) 由实验测定的界面粒子速度剖面 $u_w(t)$, 由 (4) 式计算得到金属 Bi 样品内的拉格朗日声速 $C_L(t)$;
- 2) 基于拉格朗日声速 $C_L(t)$, 界面粒子速度 $u_w(t)$ 和窗口材料应力 $\sigma_w(t)$, 由 (1), (2) 式计算得到金属 Bi 样品内的应力 $\sigma_s(t)$, 原位粒子速度 $u_s(t)$;

3) 由拉格朗日声速 $C_L(t)$ 和原位粒子速度 $u_s(t)$ 计算金属 Bi 样品内的比容 $V_s(t)$;

4) 由比容 $V_s(t)$ 及金属 Bi 的冲击 Hugoniot (T_H - P 关系), 基于界面温度的等熵卸载模型 $T_R = T_H \exp \left[- \int_{V_H}^{V_R} \frac{\gamma}{V} dV \right]$, 计算得到金属 Bi 的卸载温度, γ 为 Gruneisen 系数, H 对应于冲击加载的初态.

其中, 根据声速定义:

$$C^2 = -V_0^2 \frac{d\sigma}{dV} = -V_0^2 \frac{\rho_0 C du}{dV} = -\frac{C du}{\rho_0 dV}, \quad (5)$$

可计算得到沿着卸载粒子速度剖面的样品比容 $V_s(t)$

$$dV_s(t) = -\frac{du_s(t)}{\rho_0 C_L}. \quad (6)$$

对上式两边进行积分得到沿着卸载过程任一状态 R 时的比容 V_R :

$$V_R - V_C = \int_{u_R}^{u_C} \frac{du_s(t)}{\rho_0 C_L}, \quad (7)$$

其中, 下标 C 和 R 分别对应卸载起始点和卸载过程任一状态.

3 实验结果及分析

实验在中国工程物理研究院流体物理研究所的 $\phi 37$ mm 火炮上进行. 实验利用火炮将密度为 9.808 g/cm^3 的圆片状金属 Bi 飞片 (样品) 发射至稳定的终点弹道速度 W , 并撞击 LiF 单晶窗口 ($\rho_0 = 2.638 \text{ g/cm}^3$, $C_0 = 5.148 \text{ km/s}$, $\lambda = 1.353$)^[25].

共进行了 3 发冲击实验, 实验获得了高信噪比的反向碰撞卸载粒子速度剖面 (如图 3), 压力范围为 11—16 GPa, 实验参数见表 1. 从图 3 可以看出, 采用反向碰撞法获得的粒子速度剖面上升前沿较陡, 接着是一个较正向碰撞历时更长的平台^[22], 当样品内反射波的波头到达样品/窗口界面时, 界面处发生明显的卸载现象, 对应的界面粒子速度剖面表现出明显的弹性卸载特征^[22], 表明金属 Bi 在该冲击压力范围内没有发生冲击熔化. 同时, 当冲击压力为 11.1 GPa 时, 粒子速度剖面卸载段中出现了一定程度的转折; 当冲击压力为 13.4 GPa 和 15.7 GPa 时, 粒子速度剖面经卸载而出现拐点, 并随着压力的增大拐点逐渐明显.

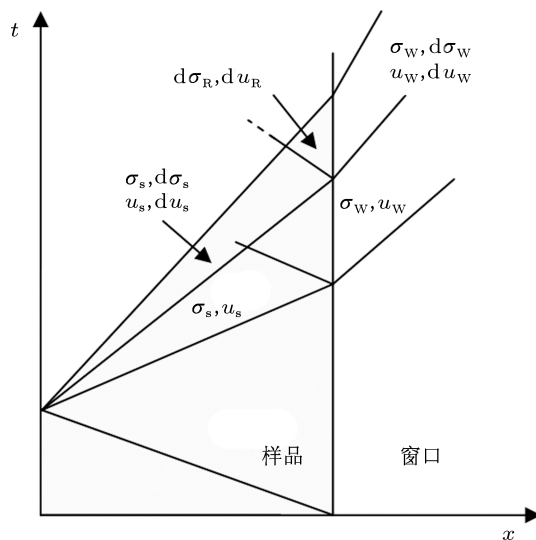


图 2 反向碰撞法中纵波在样品/窗口界面反射的特征线分析

表 1 反向碰撞实验参数及结果

No.	h/mm	$W/\text{km}\cdot\text{s}^{-1}$	$u_w/\text{km}\cdot\text{s}^{-1}$	$C_L/\text{km}\cdot\text{s}^{-1}$	P_S/GPa
1	2.065 ± 0.002	1.216 ± 0.006	0.689 ± 0.007	2.883 ± 0.4	11.1 ± 1.1
2	2.095 ± 0.002	1.404 ± 0.007	0.812 ± 0.008	3.334 ± 0.5	13.4 ± 1.3
3	2.095 ± 0.002	1.577 ± 0.008	0.927 ± 0.009	3.409 ± 0.6	15.7 ± 1.6

注: h -样品厚度; W -弹丸击靶速度; u_w -飞片 (样品)/窗口界面粒子速度; C_L -纵波声速; P_S -冲击压力.

为了描述金属 Bi 的冲击熔化, Cox^[17] 对 Johnson 等^[13] 的热力学物态方程进行了优化, 延伸了相图的压力和温度范围. Cox 的理论模型表明, 冲击作用下金属 Bi 在 10—16 GPa 压力范围内会发生卸载熔化. 为了验证这一推断, 我们以 Johnson 等和 Cox 的研究为基础, 基于金属 Bi 各相 Helmholtz

自由能构建其热力学多相物态方程及 VI 相 (BCC) 的冲击 Hugoniot 线, 如图 4 所示. 当金属 Bi 样品沿等熵线卸载时, 其任一时刻的卸载温度 T_R 为

$$T_R = T_H \exp \left[- \int_{V_H}^{V_R} \frac{\gamma}{V} dV \right], \quad (8)$$

其中, H 和 R 分别对应于初始冲击压缩状态及卸载

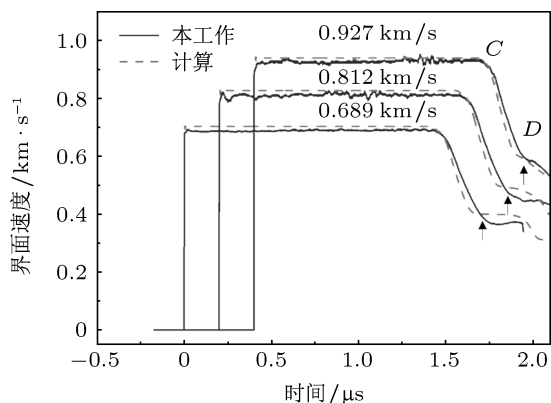


图3 反向碰撞法样品/窗口界面卸载粒子速度剖面

过程中某一状态, γ 为 Gruneisen 系数, $\frac{\gamma_0}{V_0} = \frac{\gamma}{V}$. 基于多相物态方程计算得到金属 Bi 冲击 Hugoniot 的 T_H - P 关系, 以粒子速度剖面 (图 3) 中卸载起始点 C 点为起点, 利用 (1)–(7) 式通过数值迭代计算得到金属 Bi 样品沿等熵线卸载的 P - V 关系, 并结合 (9) 式可求得的 BCC 相等熵卸载线 (逆相变) 如图 4, 图中黑点表示对应粒子速度剖面 (图 3) 的起始点 C 和拐点 D , 其中 $\gamma_0 = 1.31$ ^[17].

从图 4 可以看出, 金属 Bi 经 11–16 GPa 压力冲击加载后进入 BCC 固相区, 经等熵卸载跨越固-液混合相边界, 并进入液相区. 在冲击压力为 11.1, 13.4, 15.7 GPa 时, 初始冲击 Hugoniot 温度分别从 800, 930, 1070 K 卸载至 570, 731, 941 K, 对应的压力分别为 3.8, 4.7, 6.7 GPa, 而卸载粒子速度剖面拐点 D 则正好对应着卸载时发生的固-液相变, 但有一定偏移, 这是由于实验的非平衡相变特性引起的. 该结果同 Mabire 和 Hereil^[26] 发现的 Sn 的卸载熔化相变一致, 表明了金属 Bi 在 11–16 GPa 冲击压力作用下发生了卸载熔化, 而该现象是与 Cox 的理论预估相一致的. 同时, 基于两相平衡的一维流体力学计算程序^[27] 模拟得到了各冲击压力下卸载粒子速度剖面 (参见图 3), 模拟得到的卸载拐点 (图 3

中 D 点) 表征着金属 Bi 的卸载熔化, 该结论同本文实验获得的结论一致, 但较实验获得的粒子速度剖面拐点略高, 这主要是由于动高压相变的非平衡相变特性及弹塑性等因素与其理论描述的近似性之间的差异引起的.

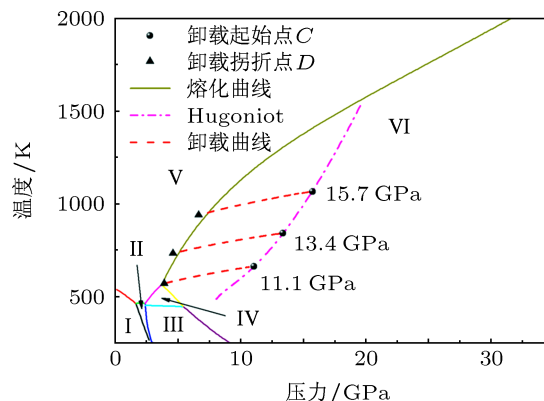


图4 金属 Bi 的 T - P 卸载曲线

4 结论

本文获得了反向碰撞作用下金属 Bi 在 11–16 GPa 冲击压力范围内的卸载粒子速度剖面. 基于实验剖面及特征线数值计算得到了单一固相区 (BCC) 相内的卸载熔化路径, 结果表明粒子速度剖面的卸载拐点对应着金属 Bi 的卸载熔化相变, 该结果与 Cox 的理论计算及一维流体力学程序模拟的结果基本一致, 且类似于 Mabire 和 Hereil 发现的 Sn 的卸载熔化相变. 发展形成的冲击卸载波剖面解读技术, 对于认识冲击加载下其他相似材料相变具有实用价值.

感谢鲜海峰、王为、叶素华、翁继东、王翔等在火炮运行、实验测试和数据分析中给予的帮助.

[1] Duvall G E, Graham R A 1977 *Rev. Mod. Phys.* **49** 523
 [2] Bass J D, Ahrens T J, Abelson J R, Tan H 1990 *J. Geophys. Res.* **95** 21767
 [3] Hu J B, Zhou X M, Tan H, Li J B, Dai C D 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 111905
 [4] Hu J B, Zhou X M, Dai C D, Tan H, Li J B 2008 *J. Appl. Phys.* **104** 083520
 [5] Bastea M, Bastea S, Becker R 2009 *Appl. Phys. Lett.* **95** 241911
 [6] Ma W, Zhu W J, Zhang Y L, Jing F Q 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 066404

(in Chinese) [马文, 祝文军, 张亚林, 经福谦 2011 物理学报 **60** 066404]
 [7] Brown J M, Fritz J N, Hixson R S 2000 *J. Appl. Phys.* **88** 5496
 [8] Liu X, Zhou X M, Li J, Li J B, Cao X X 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 5626 (in Chinese) [刘勋, 周显明, 李俊, 李加波, 操秀霞 2010 物理学报 **59** 5626]
 [9] Tonkov E Y, Ponyatovsky E G 2005 *Transformations of Elements under High Pressure* (Florida: CRC PRESS) p148
 [10] Duff R E, Minshall S 1957 *Phys. Rev.* **108** 1207

- [11] Asay J R 1974 *J. Appl. Phys.* **45** 4441
 [12] Asay J R 1977 *J. Appl. Phys.* **48** 2832
 [13] Johnson J N, Hayes D B, Asay J R 1974 *J. Phys. Chem. Solids* **35** 501
 [14] Hayes D B 1975 *J. Appl. Phys.* **46** 3438
 [15] Wetta N, Pelissier J L 2001 *Physica A* **289** 479
 [16] Pelissier J L, Wetta N 2001 *Physica A* **289** 459
 [17] Cox G A *Shock Compression of Condensed Matter-2007* Hawai'i, America, June 24–29, 2007 p151
 [18] Hu J B, Zhou X M, Tan H 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 2347 (in Chinese) [胡建波, 周显明, 谭华 2008 物理学报 **57** 2347]
 [19] Weng J, Tan H, Wang X, Ma Y, Hu S L, Wang X S 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 111101
 [20] Li X M, Yu Y Y, Li Y H, Zhang L, Ma Y, Wang X S, Fu Q W 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 2691 (in Chinese) [李雪梅, 俞宇颖, 李英华, 张林, 马云, 汪小松, 付秋卫 2010 物理学报 **59** 2691]
 [21] Ma Y, Li Z R, Hu S L, Li J B, Wang X S, Chen H, Weng J D, Liu J, Yu Y Y, Song P, Xiang Y M 2007 *Chinese Journal of High Pressure Physics* **21** 397 (in Chinese) [马云, 李泽仁, 胡绍楼, 李加波, 汪小松, 陈宏, 翁继东, 刘俊, 俞宇寅, 宋萍, 向曜民 2007 高压物理学报 **21** 397]
 [22] Tan H 2006 *Introduction to Experimental Shock-Wave Physics* (Beijing: National Defense Industry Press) p162 (in Chinese) [谭华 2006 实验冲击波物理导引 (北京: 国防工业出版社) 第 162 页]
 [23] Yu Y Y, Tan H, Dai C D, Hu J B, Chen D N 2005 *Chin. Phys. Lett.* **22**(7) 1742
 [24] Duffy T S, Ahrens T J 1995 *J. Geophys. Res.* **100**(B1) 529
 [25] Carter W J 1973 *High Temp.-High Press.* **5** 316
 [26] Mabire C, Hereil P L 1999 *Shock Compression of Condensed Matter-1999* Utah, America, June 27–July 2, 1999 p93
 [27] Resséuier T D, Hallouin M 2008 *Phys. Rev. B* **77** 174107

Release melting of bismuth *

Tan Ye Yu Yu-Ying Dai Cheng-Da[†] Yu Ji-Dong Wang Qing-Song Tan Hua

(Laboratory for Shockwave and Detonation Physics, Institute of Fluid Physics, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China)

(Received 26 June 2012; revised manuscript received 28 August 2012)

Abstract

Reverse-impact experiments are performed on bismuth (Bi) to probe into the release melting from shock pressures in a pressure range of 11–16 GPa. A displacement interferometer system for any reflector (DISAR) is employed to measure the particle velocity history at the impact interface of LiF window with Bi flyer. The obtained experimental data, together with the results from characteristic formulations and one-dimensional hydrodynamic simulations, indicate that bismuth is converted into the body-center-cubic phase under shock loading, and then melted with the releasing of state from the initial shock (Hugoniot). The inflexion on the release wave profiles is attributed to the release melting. The proposed method and extracted results are of importance for developing the phase-change diagnostics and understanding phase-transition behavior of Bi and its analogues.

Keywords: shock-induced phase transition, reverse-impact geometry, release melting, bismuth

PACS: 64.70.D–, 62.50.Ef, 61.82.Bg

DOI: 10.7498/aps.62.036401

* Project supported by the Dual Hundred Talent Project of CAEP (Grant No. ZX01115), the National Defense Basic Scientific Research Program of China (Grant No. B1520110001) and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10972206).

[†] Corresponding author. E-mail: cddai@caep.ac.cn