

目 次

第四代高能同步辐射光源 HEPS 及高压相关线站建设	李晓东,袁清习,徐伟,郑黎荣
上海同步辐射光源高压相关线站概述	杨科,蒋升,闫帅,周春银,李爱国
同步辐射高压衍射技术	刘景
CMRR 中子科学平台的高压中子衍射技术及应用	
… 房雷鸣,陈喜平,谢雷,贺端威,胡启威,李欣,江明全,孙光爱,陈波,彭述明,李昊,韩铁鑫	
球弧式纵向剖分超高压模具	李胜华,李金良
内爆驱动式超高速发射技术的初步研究	王马法,HIGGINS Andrew J,焦德志,黄洁,柳森
炸药内爆驱动多层密绕螺线管的压缩稳定性	刘亿,李建明,周中玉,彭辉,宋振飞,谷卓伟
方形爆炸抛撒装置结构优化	李建平,刘思琪
太帕压力下声速连续测量的高精度靶制备	
… 张红平,张黎,罗斌强,李建明,王峰,谭福利,李牧	
PVDF 压电传感器及敏感单元设计关键技术	
… 张旭,覃双,杨舒棋,彭文杨,赵峰,于君,钟斌	
钝感炸药冲击起爆反应过程的 PDV 技术	
… 杨舒棋,张旭,彭文杨,舒俊翔,刘寿先,覃双,钟斌	
利用电磁法研究 HMX 与 TATB 混合钝感炸药的冲击起爆特性	
… 杨舒棋,张旭,彭文杨,舒俊翔,覃双,钟斌	
《高压物理学报》2020 年虚拟主题专刊名录	《高压物理学报》编辑部



官方网站: www.gywlxb.cn

官方邮箱: gaoya@caep.cn

联系电话: 0816-2490042



《高压物理学报》2020年虚拟主题专刊名录

- ❖ 高压物性实验研究
- ❖ 高压物性的计算与模拟
- ❖ 高压地球科学
- ❖ 高压实验技术
- ❖ 高压下材料动态响应实验研究
- ❖ 高压下材料动态响应的计算与模拟
- ❖ 复合材料与结构的动态响应计算与模拟
- ❖ 高压科学应用——水下爆炸
- ❖ 高压科学应用——侵彻与防护
- ❖ 高压科学应用——气相爆炸

★ 获取地址：<http://www.gywlxb.cn/topics>

第四代高能同步辐射光源 HEPS 及 高压相关线站建设

李晓东, 袁清习, 徐 伟, 郑黎荣

(中国科学院高能物理研究所, 北京 100049)

摘要:作为国家重大科技基础设施“十三五”规划重点建设的项目之一, 目前, 高能同步辐射光源已经在北京怀柔科学城开始建设, 项目目标是建设具有极低发射度、重点覆盖高能区(约300 keV)的第四代同步辐射光源。新的高能光源将为科学研究提供光斑更小、亮度更高、相干性更好的X射线探针。同步辐射光源已经帮助科研人员在高压科学的研究的诸多领域取得了丰硕的成果。反过来, 应高压研究更高的需求, 也在促进同步辐射实验技术的不断发展与进步。本文旨在对高能同步辐射光源首批线站中能够开展高压研究的高压光束线站、吸收谱学线站、高分辨谱学线站和显微成像线站的建设方案进行介绍, 一方面有助于用户更好地了解相关设施, 另一方面也希望结合用户需求完善后续线站的建设工作, 共同推进高压学科在同步辐射领域的发展。

关键词:高能光源; 高压; 光束线站

中图分类号:O434.19; O521.3

文献标识码:A

压力作为热力学的重要基本参数之一^[1], 几乎对材料的化学、结构、机械、电子、磁性、声子等所有属性^[2-3]均可以产生影响, 因此在物理^[4]、化学^[5]、材料科学^[6]及地球科学^[7]等多个研究领域都得到了广泛应用。利用金刚石对顶砧压腔(Diamond anvil cell, DAC)产生的高压研究样品的性质是实验室最常用的高压研究手段之一。在金刚石压砧的作用下, DAC样品腔内可以达到几十万甚至几百万大气压的极高压力^[8-9], 压腔内的微量样品能够发生多次物性变化。然而, 受DAC的结构及样品材料等的限制, 高压研究必须在窗口有限、样品尺度微小且X射线能够穿过环境材料(如金刚石压砧、传压介质)等条件下进行。这些限制使得具有能量范围宽、通量高、准直性好、能量带宽可调、有时间结构及相干性好等特性的同步辐射装置在高压研究中发挥了重要作用。

自20世纪80年代以来, 同步辐射技术与DAC技术相结合, 为探索高压条件下的材料物性提供了丰富的研究手段^[2-3,10]。例如: 高压X射线衍射(X-ray diffraction, XRD)方法可用于确定晶体或非晶材料的结构、密度、应力应变和择优取向等信息^[11]; X射线吸收谱学(X-ray absorption spectroscopy, XAS)可以针对材料中特定元素进行结构表征, 获得感兴趣元素的局域结构信息(价态、构型、配位数、键长及无序度等)^[12-13]; X射线核共振散射谱学(Nuclear resonance scattering, NRS)可提供时域的Mössbauer超精细结构谱学信息以及声子投影态密度^[14]; X射线拉曼散射(X-ray raman scattering, XRS)可探测轻元素(C、N和O等)在高压条件下的化学键变化^[15]; X射线成像(X-ray imaging, XRI)可以研究样品在高压条件下的物态方程、相演变及其动力学过程^[16]。

同步辐射光源技术的不断发展, 也在推动高压科学的不断进步。近年来, 国际主要高能光源, 如美

* 收稿日期: 2020-04-29; 修回日期: 2020-05-12

基金项目: 高能同步辐射光源国家重大科技基础设施项目(发改高技〔2017〕2173号)

作者简介: 李晓东(1975—), 男, 博士, 副研究员, 主要从事同步辐射高压实验技术研究.

E-mail: lixd@ihep.ac.cn

国先进光子源(APS)^[17]、欧洲同步辐射光源(ESRF)^[18]、日本的 Spring-8 光源^[19]和德国的 PETRA III 光源^[20]，都在积极实施或推进升级具有准衍射极限环的第四代同步辐射光源计划。高能同步辐射光源(High energy photon source, HEPS)^[21-22]作为我国“十三五”期间建设的、为国家重大战略需求和前沿基础科学研究提供技术支撑平台的国家重大科技基础设施，于 2017 年 12 月获得国家发展改革委批复立项，并于 2019 年 6 月在北京怀柔奠基启动建设，计划将于 2025 年完成建设并投入使用。作为第四代同步辐射光源，HEPS 光源具有极小的发射度，能够提供比现有第三代同步辐射光源亮度高 100 倍以上的同步辐射光，实验站也更容易获得微米和亚微米(纳米)尺度的聚焦光斑。同时，低发射度光源具有的相干性优势也将极大地促进相干谱学、相干成像等实验技术的发展。这些优异的性能可以为高压科学在更高压力范围、更小时间或空间尺度等条件下开展研究提供重要支撑，例如：极高压(太帕量级)条件下的物性研究、压力(或温度)快速加载条件下的时间分辨研究、极高压条件下的局域变化及不均匀性研究、地球(行星)深部温压条件下的物质研究等^[3]。

高压科学的研究将是 HEPS 建成后的一个重要应用方向。本文的主要目的是向高压领域相关科研工作者介绍 HEPS 一期建设过程中与 DAC 高压实验技术相关的线站设计。一方面，有助于用户更多地了解 HEPS，为将来在 HEPS 上开展高压研究工作做一些初步的准备；另一方面，也希望得到用户对目前线站设计方案的反馈，包括对未来二期、三期线站布局中高压光束线站规划的意见与建议。

1 第四代高能同步辐射光源 HEPS

HEPS 是具有极低发射度的第四代高能同步辐射光源，于 2019 年 6 月 29 日在北京市怀柔区动工，并计划于 2025 年底完成验收。HEPS 的设计亮度大 $10^{22} \text{ phs} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{mm}^{-2} \cdot \text{mrad}^{-2} \cdot (0.1\% \text{B.W.})^{-1}$ ，自然发射度为 34.2 pmrad，具体参数见表 1。HEPS 建成后能够对微观结构从静态构成到动态演化，提供多维度、实时、原位表征，解析物质结构生成及演化的全周期全过程，揭示微观物质结构的生成演化机制，剖析微观物质构成，为物质调控提供基础，从而推动材料科学、化学工程、能源环境、生物医学等领域的科学的研究。

表 1 HEPS 储存环的主要参数^[22]

Table 1 Main parameters of the HEPS storage ring^[22]

Energy/ GeV	Circumference/ m	Number of straight sections	Beam current/ mA	Natural emittance/ pmrad	Injection	Bunch number
6	1360.4	48	200	34.2	Top-up	680/63

HEPS 建成后将具备 90 条以上高性能光束线站的容量，其中一期建设的线站共 14 条(另外包括一条测试束线)。图 1 所示为 HEPS 一期线站布局，其中以 ID 开头的线站是在直线节安装插入件的引出线站，以 BM 开头的线站为弯铁引出线站。3 条延伸到实验大厅以外的长光束线能在纳米聚焦、相干、时间分辨到高能等方面充分发挥新光源优势。HEPS 一期线站的规划主要是在考虑体现新光源高能、高亮度等优势，满足国内用户群体需求及“衍射极限光源先进的实验方法在实验站全覆盖”等原则基础上完成的。

限于篇幅，本文将重点介绍 HEPS 一期建设线站中与高压学科最为相关的若干线站，分别是：X 射线显微成像线站(ID30)、高压线站(ID31)、硬 X 射线高分辨谱学线站(ID33)和 X 射线吸收谱学线站(ID46)。其中，高压线站是高压 X 射线衍射专用实验站，其他线站可以通过优化设计兼容高压实验方法。图 2 所示为这些线站建成后插入件的“能量-亮度”谱，其中：HPS 表示高压线站，H²O 表示硬 X 射线高分辨谱学线站，XAS 表示 X 射线吸收谱学线站，TXM 表示 X 射线显微成像线站。

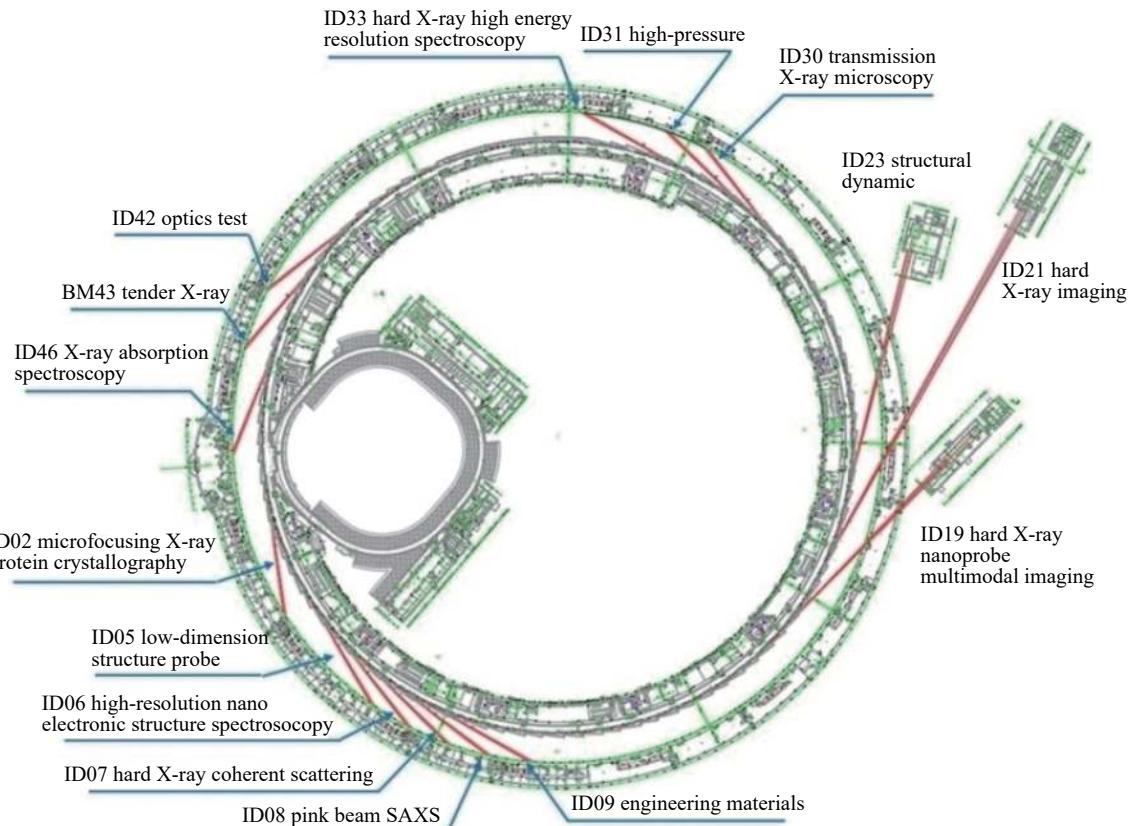


图1 HEPS一期光束线站布局
Fig. 1 Beamlines layout of HEPS phase I

2 HEPS 高压相关线站介绍

2.1 高压光束线站

高压光束线站(High-pressure beamline, HPB)从HEPS储存环插入件ID31引出,是开展以高压XRD实验为主的专用高压线站。实验站将以XRD方法为基础建立多种高压研究手段,包括粉末XRD、单晶XRD、径向XRD、时间分辨以及对分布函数(Pair distribution function, PDF)测量等方法,同时还将结合激光加热、电阻加热、低温、压力建载等样品环境,建立多种原位条件的XRD实验方法。线站建成后,将与国际上主要高能同步辐射光源升级后的高压线站(如APS的GSECARS^[23]和HPCAT^[24]线站、ESRF的ID27^[25]线站、Spring-8的BL10XU^[26]线站和PETRA III的P02.2^[27]线站等)具备同等水平的实验及数据分析条件。

在应用同步辐射技术的高压科学研究中,XRD是最基础、最常用的实验方法之一。单晶、多晶/粉晶、纳米晶体以及非晶体或液体都可以成为高压XRD的实验样品,它能够准确提供样品在高压条件下的结构信息。利用高压XRD方法,也能够对样品的状态方程、晶体结构、相转变、弹性和晶格应变等开展研究。利用第四代衍射极限同步辐射光源提供的小尺寸(小于1 μm)、高通量X射线光斑,利用高压XRD方法还可以开展超高压(大于500 GPa)、局部结构变化、压力或温度动态加载条件下的结构变化等研究工作。

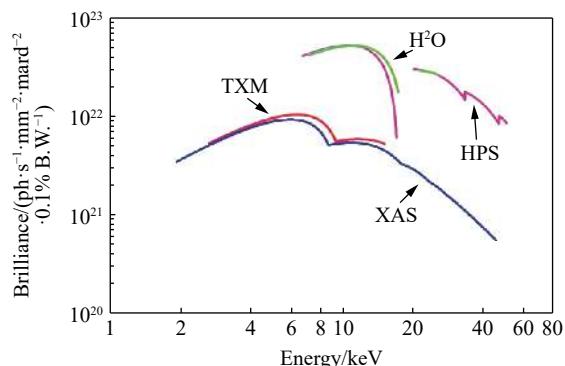


图2 线站插入件的亮度谱
Fig. 2 Brilliance curves of different IDs

2.1.1 HPB 线站的主要技术指标

HPB 建成后可以为用户提供 20、30、40 和 50 keV 5 种能量点的 X 射线光源, X 射线聚焦光斑尺寸为十几微米到亚微米(约 150 nm), 样品处的光子数大于 10^{13} ph/s。根据用户需要, 也可以提供大尺寸(约 200 μm)的聚焦光斑。实验站还可以实现 4~4 000 K 温度范围的原位高压 XRD 实验。

结合压力动态加/卸载以及脉冲激光加热技术, 实验站还可以为用户提供曝光小于 10 微秒每帧的动态实验条件。在压力动态加载实验中, 压力的加载速率可以达到 150 TPa/s 以上。

2.1.2 HPB 线站设计

HPB 光学布局如图 3 所示, X 射线从储存环的低 β 直线节 ID31 引出。真空中波荡器(IVU)的磁周期长度为 19.9 mm, 总周期数 201, 插入件总长度 4 m, 设计最小磁场间隙 5.2 mm。经过单色器选取指定能量的单色光后, 由聚焦元件聚焦到样品位置。水平反射的 channel-cut 单色器(HCCM)采用液氮冷却, 不仅能承受高热负荷, 还可以提供高稳定性的单色光输出, 对提高样品点位置 X 射线聚焦光斑的稳定性有很大帮助。通过两种不同聚焦元件获得 X 射线聚焦光斑: 利用复合折射透镜(Compound refractive lens, CRL)获取微米聚焦光斑, 利用多层膜 K-B 聚焦镜(Multilayer K-B mirrors, MK-B)获取亚微米聚焦光斑。

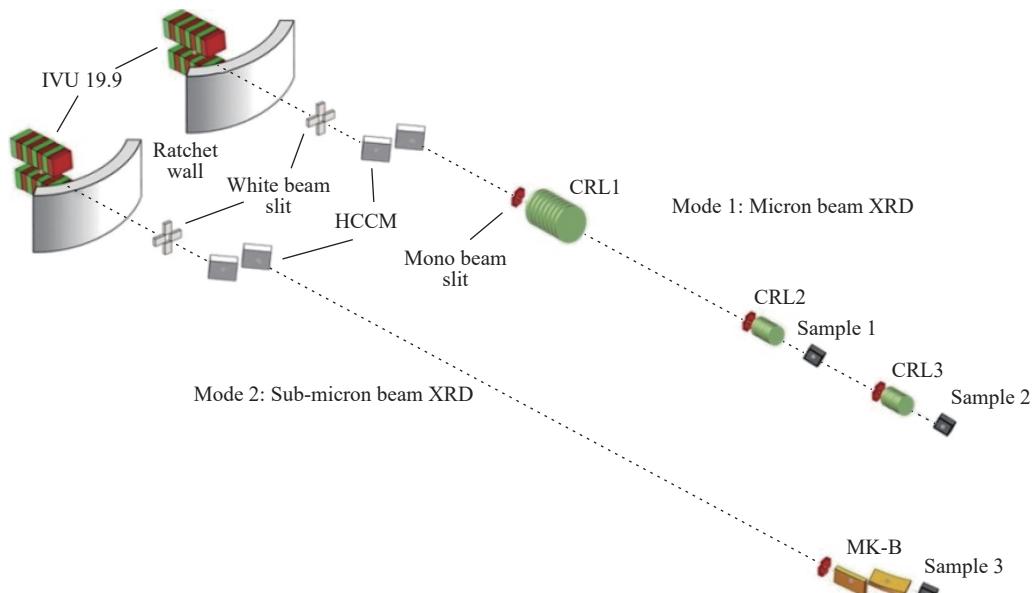


图 3 高压光束线站光学布局

Fig. 3 Optical layout of high-pressure beamline

高压光束线站有两个微米聚焦样品点, 分别位于距光源点 84 m 的 Sample 1 及距光源点 89 m 的 Sample 2。通过两级 CRL 对 X 射线顺序聚焦获得微米光斑, CRL1+CRL2 完成 Sample 1 处 X 射线聚焦, CRL1+CRL3 完成 Sample 2 处的聚焦。Sample 1 和 Sample 2 的光斑半高宽一般为 2 μm 左右, 如果需要更大的光斑, 可以通过移动 CRL2 和 CRL3 的位置实现。亚微米聚焦光斑位于距光源点 95 m 的 Sample 3 处, 可由 MK-B 直接聚焦获得。亚微米聚焦光斑的半高宽约为 150 nm, 从聚焦镜后端到样品的工作距离大于 100 mm, 可以满足大多数原位高压 XRD 实验的需求。

高压光束线实验站由两个棚屋组成, 上游为微米 XRD 棚屋, 下游为亚微米 XRD 棚屋。如图 4(a) 所示, 微米 XRD 棚屋内有两个实验平台, 分别为通用衍射平台(General purpose table, GPT)和激光加热专用平台(Laser heating table, LHT)。GPT 除了完成常规的粉末、单晶、多晶以及径向 XRD 等实验, 还可以开展原位(电阻加热)高/低温以及压力动态加载 XRD 等实验。LHT 可以为用户提供红外波长(约为 1 064 nm)的连续或脉冲激光加热实验条件, 未来还可以提供 CO_2 激光加热的实验条件。为满足实

验设备及环境的稳定性要求,亚微米XRD实验平台(图4(b))搭建在实验站末端的专用亚微米XRD棚屋内,除了可以提供小光斑完成以XRD为基础的实验,未来还会逐步提供成像、相干等实验手段。

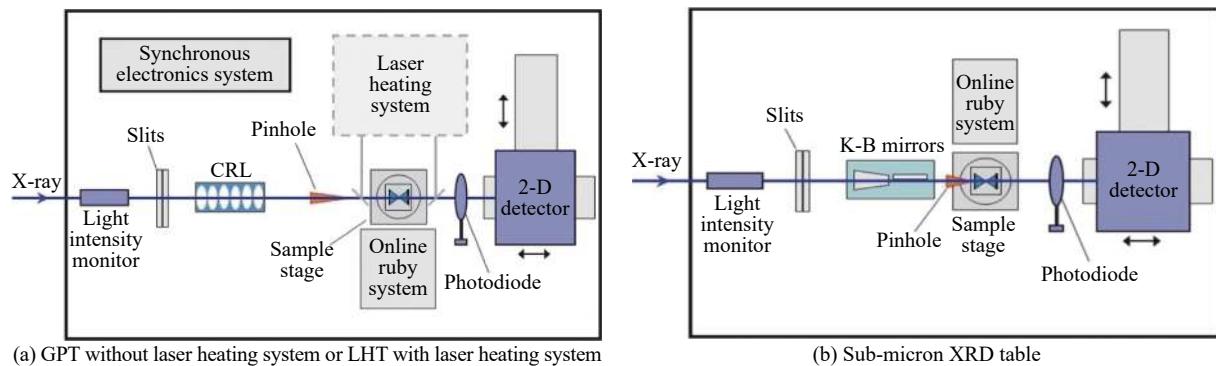
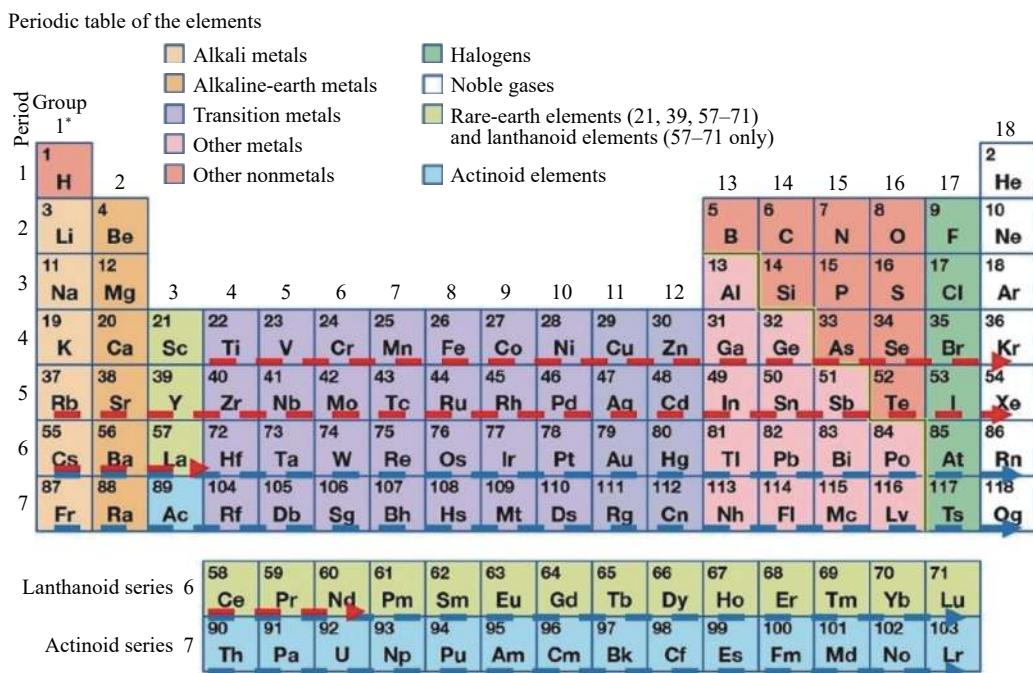


图4 高压光束线站实验平台

Fig. 4 Schematics of experimental tables

2.2 X射线吸收谱学线站

X射线吸收谱学(X-ray absorption spectroscopy, XAS)线站从HEPS储存环插入件ID46引出,是一条以XAS及相关衍生实验方法为主进行优化设计的高性能硬X射线光束线。XAS线站设计的基本目标是打造一个通用性强、能量覆盖范围大,同时具有高通量、高亮度的X射线吸收精细结构(X-ray absorption fine structure, XAFS)实验系统,为用户提供可靠、稳定、操作简便的XAS实验平台。该平台具备XAS的常规实验方法,具备时间分辨和空间分辨能力,能够探测微区、表面、界面结构。同时线站还将为用户提供多种原位样品环境,并结合XRF、XRD、FTIR、质谱等实验方法,提供更丰富的样品信息。XAS线站设计能量覆盖范围为4.8~45 keV,如图5所示,设计能量能够覆盖化学元素周期表中22号元素Ti到60号元素Nd的K边XAFS能量范围,以及55号元素Cs以后的L边能量范围。



*Numbering system adopted by the International Union of Pure and Applied Chemistry (IUPAC).

©Encyclopaedia Britannica, Inc.

图5 X射线吸收谱学线站的元素覆盖示意图(红色虚线表示K边能量范围,蓝色虚线表示L边能量范围)

Fig. 5 Schematic of element coverage of XAS (The red and blue dotted lines are energy ranges of K-edge and L-edge, respectively)

在高压研究中, XAS 可以对样品中特定元素的价态、局域结构(如键长、配位数、空间构型)进行表征, 可以为高压相变路径的确认提供与 XRD 相互补充的结构信息。

2.2.1 XAS 线站主要技术指标

XAS 线站的设计能量范围为 $4.8 \sim 45 \text{ keV}$, 最小聚焦光斑尺寸 $350 \text{ nm} \times 350 \text{ nm}$ 。工作能量在 10 keV 时, X 射线大光斑(尺寸约为 $2 \text{ mm} \times 1.5 \text{ mm}$)的光通量在 10^{13} ph/s 水平, 亚微米光斑(尺寸约为 $350 \text{ nm} \times 350 \text{ nm}$)的光通量在 10^{12} ph/s 。亚微米光斑由 K-B 镜组获得, 其工作距离约为 140 mm , 可以满足常用 DAC 实验的空间要求。XAS 线站的主要设计指标见表 2。

表 2 X 射线吸收谱线站的主要设计指标

Table 2 Main parameters of XAS beamline

Energy range/keV	Energy resolution($\Delta E/E$)	Flux/($\text{ph} \cdot \text{s}^{-1}$)	Spot size / ($\mu\text{m} \times \mu\text{m}$)	Methods
4.8–45	$2 \times 10^{-4} \text{ Si (111)}$	$5 \times 10^{13} @ 10 \text{ keV}$ (non-focus)	0.35×0.35 (focus)	XAFS/XRD/XRF/FTIR/Mass spectra
	$4 \times 10^{-5} \text{ Si (311)}$	$5 \times 10^{12} @ 10 \text{ keV}$ (focus)	0.35×0.35 (focus)	Time resolution: 25 ms/spectra Detection limit of trace element $> 1 \times 10^{-7}$

2.2.2 XAS 线站设计

XAS 线站光学元件布局如图 6 所示, X 射线从储存环插入件 ID46 引出。真空外插入件(IAU)的磁周期长度为 35 mm , 总周期数 141, 设计最小 gap 值为 11 mm 。X 射线通过白光压弯镜、双晶单色器(Double crystal monochromator, DCM)、快扫单色器(25 毫秒每谱)、谐波镜组、垂直聚焦镜等主要光学元件后进入实验站, 利用 K-B 聚焦镜组将 X 射线聚焦到样品点。实验站还配有后分析晶体及硅漂移探测器(SDD), 主要用于高能量分辨吸收谱(HERFD-XAS)以及后续有待开发的低分辨发射谱(XES)。实验平台布局见图 7。

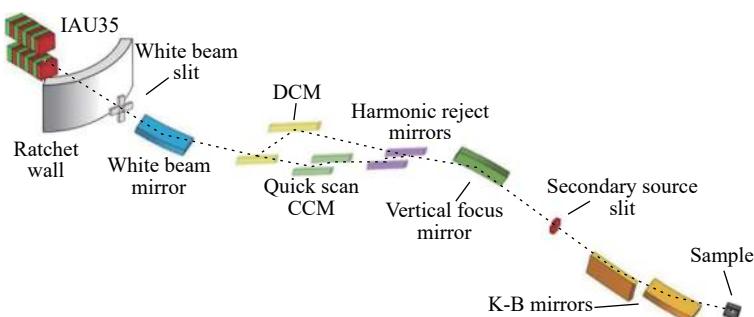


图 6 XAS 线站光学布局

Fig. 6 Optical layout of XAS beamline

2.3 硬 X 射线高分辨谱学线站

硬 X 射线高分辨谱学(Hard X-ray high energy resolution spectroscopy, H²O)线站从储存环 ID33 插入件引出。该线站侧重于发展高分辨谱学实验方法, 为用户提供具有高能量分辨率的核共振散射和 X 射线拉曼散射等实验手段, 为凝聚态物理、化学、材料学、地学、环境等学科前沿研究提供有力工具^[28]。线站建成后, 将与世界上主要同步辐射光源的高分辨谱学站(如 PETRA III 的 P01 线站、Spring-8 的 BL09XU 线站、ESRF 的 ID18 和 ID20

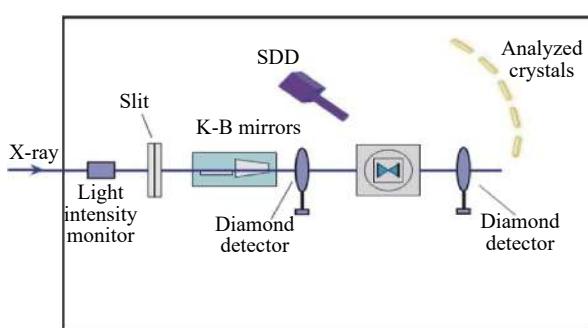


图 7 XAS 实验平台

Fig. 7 Layout of XAS experimental table

线站以及 APS 的 3ID、20ID 线站等)具有同等水平的实验和数据分析条件。

核共振散射^[14]和 X 射线拉曼散射^[15]能够与 XRD 等实验技术互补, 在电子结构及晶格动力学方面给出独特的样品结构信息, 尤其在高压研究领域具有举足轻重的作用。利用高压核共振散射方法可以获得关键热力学参数^[29]、地球化学演化中的动力学行为^[30]、地球深部的磁场信息^[31]以及高压超导的物理机制^[32-35]。X 射线拉曼散射可以获得高压下轻元素 C、N、O 的吸收谱, 是高压水^[36]、二氧化碳^[37]和二氧化硅^[38]等谱学研究的利器, 此外由于其具有非偶极跃迁的探测本领, 还是开展稀土金属高压体积坍缩引起电子结构变化^[39]等研究的重要工具。

2.3.1 H²O 线站的主要技术指标

HEPS 光源有两种注入模式: 一种是 63 个束团的高电荷模式, 相邻束团间隔为 72 ns; 另一个是 680 束团的高亮度模式, 束团间隔为 7 ns。针对 HEPS 光源的注入束团模式, H²O 线站将采用分时运行模式, 以满足不同用户群体对高分辨谱学方法的需求。在高电荷模式下, 可以实现⁵⁷Fe 的核共振散射实验, 以及¹¹⁹Sn、¹⁵¹Eu 等核同位素的向前散射实验和非弹性散射实验; 在高亮度模式下, 可以提供 X 射线拉曼实验条件。表 3 所示为 H²O 主要实验方法及相关技术指标。

表 3 H²O 线站实验方法及技术指标
Table 3 Specification of methods at the H²O beamline

Method	Energy range/keV	Energy resolution/meV	Inject mode	Spot size/(μm × μm)	Flux/(ph·s ⁻¹)
Nuclear resonant scattering	14.4 (⁵⁷ Fe)	2, 1	63-bunches	2 × 2	About 1.5 × 10 ¹⁰
X-ray Raman scattering	10	800	680-bunches	3 × 3	About 3 × 10 ¹³

2.3.2 H²O 线站设计

由于高分辨同步辐射光能量带宽极窄、散射截面小等原因, 高分辨谱学线站多被称为“光子饥渴型”线站, 因而需要获得极高的光子通量。为了实现高光子通量的设计目标, H²O 线站选用真空内永磁波荡器插入件(IVU)作为光源。波荡器长 4 m, 周期长度为 18.6 mm, 最小磁间隙为 5.2 mm, 磁性材料为 NdFeB。插入件基波能量覆盖 7~17 keV, 3 次谐波可以覆盖 21~51 keV, 确保了⁵⁷Fe 核能级位于基波且保持较高的光子通量, 同时确保 Si(660) 分析晶体背散射能量 9.7 keV 处的高通量, 而 3 次谐波也将覆盖¹¹⁹Sn、¹⁵¹Eu、¹⁶¹Dy 等常用同位素的核共振能级。

H²O 线站光学元件布局如图 8、图 9 所示。从插入件引出的 X 射线经前端区后被第 1 个水平偏转的白光反射镜反射, 并吸收部分热量。白光反射镜下游的 DCM 将同步辐射光单色化(能量带宽 10⁻⁴~10⁻⁵)。对于核共振散射模式(图 8), 经过 DCM 的 X 射线需要再进入高分辨单色器, 进一步单色化至 10⁻⁷量级以满足实验要求。DCM 下游的 CRL 工作能量为 14.4 keV, 用于光路准直, 以提高下游高分辨单色器和 K-B 镜对 X 射线的接收效率。X 射线经 K-B 镜聚焦后可以获得微米尺寸的聚焦光斑, 用于高压实验。在核共振散射实验中, 部分研究需要极高的能量分辨率(如 1 meV), 但可以接受光通量减小, 这时只需切换不同的高分辨单色器, 并适当调整 K-B 镜和样品的位置即可。X 射线拉曼散射实验模式光学布局如图 9 所示, X 射线经 Si(111)/Si(311) DCM 单色化后通过 K-B 镜聚焦, 到达拉曼散射谱仪完成实验。

如图 10、图 11 所示, H²O 实验站棚屋内有两个实验台。图 10 为核共振散射实验的光学平台, 在该平台上 K-B 镜的工作距离可达 1 m, 并将搭载原位测压系统。核共振非弹性散射实验采用 3 个雪崩光电二极管 APD 探测器, 分别位于 DAC 压砧的侧面; 而时域穆斯堡尔谱的超精细结构谱学研究则采用透射模式, 只采用单个 APD 探测器。该探测器移出后, 可以将成像板探测器移入, 采集样品的高压衍射信号。

X 射线拉曼散射实验光学平台布局如图 11 所示, 在一个纵向尺寸为 4 m 的拉曼散射谱仪上完成, 图中省略了谱仪的详细设计图。可以看出, 拉曼散射谱仪 K-B 镜的工作距离可达 1.2 m, 以确保拉曼散射可以采集到散射角大于 150° 时的高动量转移信息, 这部分信息与电子的非偶极跃迁有关, 从而可以提供丰富的电子结构信息。谱仪主要是由分析晶体和探测器组成, 结构复杂, 不再赘述。

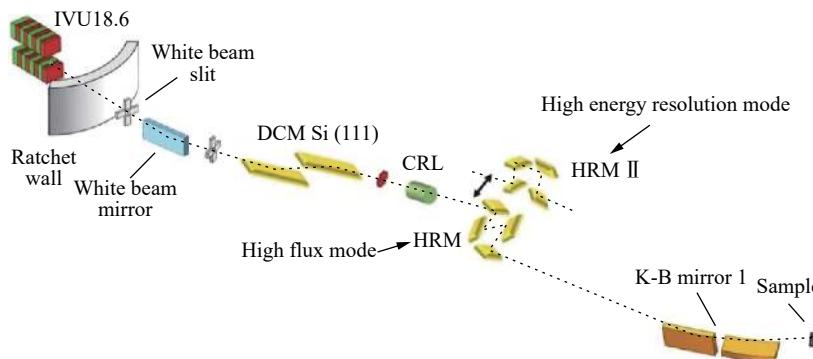


图8 硬X射线高分辨谱学线站核共振散射模式的光学布局

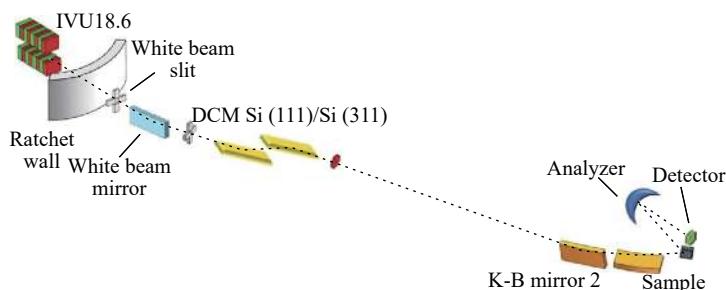
Fig. 8 Optical layout of nuclear resonant scattering of the H_2O beamline

图9 硬X射线高分辨谱学线站X射线拉曼散射模式的光学布局

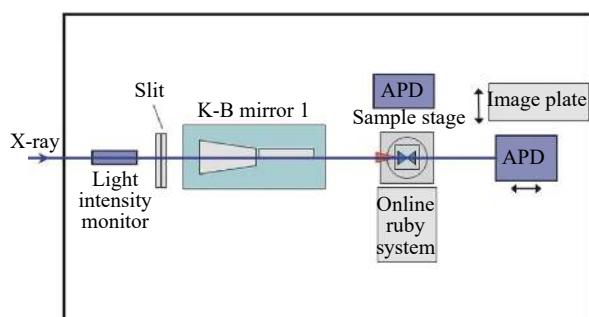
Fig. 9 Optical layout of X-ray Raman scattering of the H_2O beamline

图10 核共振散射实验平台

Fig. 10 Layout of nuclear resonant scattering experimental table

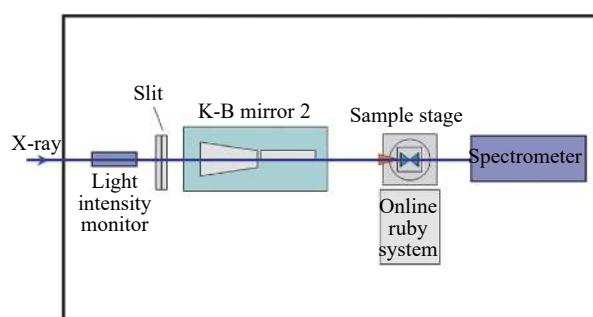


图11 X射线拉曼散射实验平台

Fig. 11 Layout of X-ray Raman scattering experimental table

2.4 X射线显微成像线站

X射线显微成像(Transmission X-ray microscopy, TXM)线站中, X射线从HEPS储存环插入件ID30引出,是开展基于波带片放大的全场成像实验方法为主的成像线站。TXM线站除可以开展全场吸收成像、泽尼克相衬成像外,还将重点发展近边谱学成像^[40]实验方法,在三维形貌结构信息的基础上获取三维的元素化学价态等近边谱学信息及其演变过程信息。线站建成后,将和世界上主要同步辐射光源的全场纳米成像线站(APS的32-ID-C线站、NSLS II的18-ID线站、SSRL的6-2c线站等)具有同等水平的实验及数据分析条件。

在高压研究中,X射线成像技术可以在诸多方面发挥作用:在物态方程测量中,X射线成像可以针对特定样品,尤其是非晶或无定形材料样品,为研究物质体积/密度对压力/温度的响应获取相应的信息^[41-45];在相变演化及其动力学过程研究中,可以利用X射线成像技术得到密度、元素、价态等信息空间分布的特点,观测相变核的分布和相变过程^[46-47];在地球科学相关机制的研究中,可以利用成像实验及相应的数据处理方法研究地幔中重要金属元素的输运机制^[48-49]等。

2.4.1 TXM 线站的主要技术指标

TXM 线站的设计能量范围为 5~15 keV, 最高空间分辨可达 20 nm, 成像视场大小根据具体空间分辨要求可在 13~60 μm 范围内变化, 能量为 8 keV 时样品点的光通量在 10^{12} ph/s 水平。

以最高 20 nm 空间分辨成像时, 受样品到波带片距离(波带片焦距约 20 mm)的限制, 成像用 DAC 的设计直径会受到一定的限制。此时, 成像单元的半径须小于 20 mm(15 mm 为佳)。

2.4.2 TXM 线站设计

TXM 线站光学布局如图 12 所示。同步辐射 X 射线从储存环插入件 ID30 引出, 通过白光反射镜、DCM、超环面镜聚焦镜等主要光学元件后进入实验站。实验站利用椭球毛细管聚焦镜(Capillary condenser)或光栅型聚焦镜(Beam shaper condenser)将 X 射线聚焦到样品点并照明波带片, 最后在探测器上获得样品的放大图像。

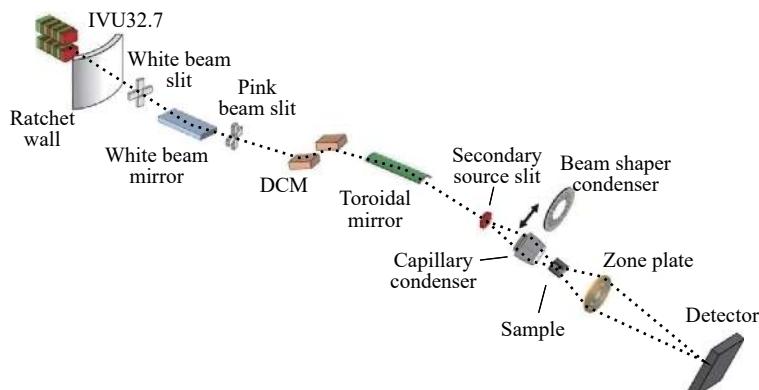


图 12 TXM 线站光学布局

Fig. 12 Optical layout of TXM beamline

ID30 插入件为真空外插入件(IAU), 周期长度为 32.7 mm, 总周期数 152, 设计最小 gap 值为 11 mm。因为波带片成像需要空心锥照明光束, 所以结合 HEPS 储存环的低发射度的特点, TXM 线站创新地采用了插入件红移照明设计^[50], 实现了空心锥照明的自然形成和插入件光子通量的最大化利用。

TXM 线站设计使用 Si(111)DCM 选取需要能量的 X 射线, 同时保证了适合近边谱学成像的能量分辨率。在 DCM 前设计了白光反射镜以缓解光束线的高热负载影响, 白光反射镜采用 Si 和 Rh 两种反射层以达到谐波抑制的目的。在 DCM 后设计超环面镜(Toroidal mirror)作为初级聚焦, 配合实验站的聚焦镜(Condenser)满足波带片成像所需的照明角度需求。

TXM 线站实验平台布局如图 13 所示。实验站选择毛细管聚焦镜(Capillary condenser)满足高分辨(小成像视场)成像需求, 以充分利用毛细管聚焦镜的高反射效率。同时, 实验站还配备光栅型聚焦镜(Beam shaper condenser)以满足更多的成像视场需求。实验站的聚焦镜、波带片和探测器等都有沿光路方向移动的运动自由度, 通过控制程序进行联动, 从而实现不同 X 射线能量下整体成像系统的放大倍数一致性。成像时, 样品的结构信息通过波带片放大后投射到探测器上, 利用波带片和透镜耦合探测器的光学放大可以将纳米级的样品结构细节放大到探测器可以分辨的微米级, 从而实现高分辨的全场成像。

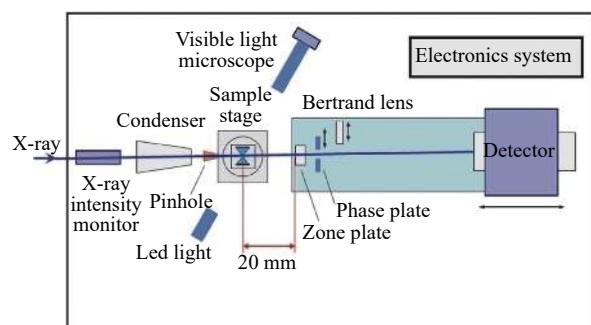


图 13 TXM 实验平台

Fig. 13 Layout of TXM experimental table

2.5 HEPS 高压实验辅助设施

HEPS 建有专用或兼用的光束线站向用户开放, 还配备了高压专用实验室, 提供高压实验和样品准备所需的多种辅助设施。高压实验室包括样品准备实验室和光学实验室。样品准备实验室除了配备高倍显微镜、液氮装填等常规设备, 还将配置脉冲激光打孔、手套箱、高压充气等配套设施, 未来计划添置机械手、样品切割等设备; 光学实验室将配置红宝石/拉曼测压、激光加热等设备。为了方便在非高压专用线站尽快建立适合高压实验所需的实验条件, 还将准备便携的红宝石测压系统、激光加热系统, 以及气膜加压等配套设备。如果有需要, 压力动态加载、低温杜瓦、电阻加热等设备也可以从高压光束线站移动至其他线站共享使用。

3 展 望

除了文中介绍的 4 条线站外, HEPS 的一期建设计划还包括生物大分子微晶衍射线站、低维结构探针线站、高分辨纳米电子结构线站、硬 X 射线相干散射线站、粉光小角线站、工程材料线站、硬 X 射线纳米探针线站、硬 X 射线成像线站、结构动力学线站和通用环境谱学线站 10 条光束线站, 以及 1 条主要用来进行同步辐射光学元件检测和实验技术发展的专用测试线站。在上述线站中, 硬 X 射线相干散射线站、粉光小角线站、工程材料线站和硬 X 射线纳米探针线站等经过改造, 也可以开展 DAC 高压相关实验研究, 如 XPCS、小角散射、PDF、超高压衍射等。限于篇幅, 本文不再多作介绍。

作为公益性的科研设施, HEPS 在考虑用户普遍需求的同时, 也兼顾了一些特殊需求, 致力于建设一个支撑多学科前沿研究和满足国家需求的重要实验设施。根据远景规划, HEPS 未来要完成近百条光束线站的建设工作, 其中将有 6 条专用的高压线站以及若干条可以开展高压实验的兼用线站。专用的高压线站中, 除了目前已经在建的 XRD 线站, 还包括另外两条衍射或散射线站和一条谱学线站, 以及两条混合方法线站。为了更好地完成高压相关线站的规划, 欢迎广大用户对后续的建设方案和方法选择提出意见和建议。HEPS 光束线站建设尤其是高压线站群的建设, 将为高压相关领域研究提供重要的支持手段。

感谢 HEPS 项目组光束线站部中高压光束线站系统、X 射线吸收谱学线站系统、硬 X 射线高分辨谱学线站系统和 X 射线显微成像线站系统工作人员的辛勤付出, 感谢线站部光学系统、光机系统、控制系统和通用机械系统等对设计工作的支持与配合。感谢上海光源、合肥光源、APS、SPring-8、ESRF、PETRA III 和 NSLS II 等光源相关线站科学家的支持和帮助, 感谢国内外高校及科研院所用户代表对项目建设初期的建议和支持。感谢 HEPS 国际顾问委员会对线站布局定位的意见和提议。

参 考 文 献:

- [1] HEMLEY R J. Effects of high pressure on molecules [J]. *Annual Review of Physical Chemistry*, 2000, 51: 763–800.
- [2] SHEN G Y, MAO H K. High-pressure studies with x-rays using diamond anvil cells [J]. *Reports on Progress in Physics*, 2017, 80(1): 016101.
- [3] MAO H K, CHEN X J, DING Y, et al. Solids, liquids, and gases under high pressure [J]. *Reviews of Modern Physics*, 2018, 90: 015007.
- [4] ASHCROFT N W. Condensed-matter physics: pressure for change in metals [J]. *Nature*, 2009, 458(7235): 158–159.
- [5] MCMILLAN P F. Chemistry at high pressure [J]. *Chemical Society Reviews*, 2006, 35(10): 855–857.
- [6] MCMILLAN P F. New materials from high-pressure experiments [J]. *Nature Materials*, 2002, 1(1): 19–25.
- [7] MAO H K, HEMLEY R J. The high-pressure dimension in earth and planetary science [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2007, 104(22): 9114–9115.
- [8] LI B, JI C, YANG W G, et al. Diamond anvil cell behavior up to 4 mbar [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences*

- of the United States of America, 2018, 115(8): 1713–1717.
- [9] JENEI Z, O'BANNON E F, WEIR S T, et al. Single crystal toroidal diamond anvils for high pressure experiments beyond 5 megabar [J]. *Nature Communications*, 2018, 9: 3563.
- [10] 徐济安, 毕延. 同步辐射X射线光源在高压科学中的应用 [J]. 物理, 2012, 41(4): 218–226.
- XU J A, BI Y. Application of synchrotron radiation X-ray sources in high pressure research [J]. Physics, 2012, 41(4): 218–226.
- [11] LIU J. High pressure X-ray diffraction techniques with synchrotron radiation [J]. *Chinese Physics B*, 2016, 25(7): 076106.
- [12] 王其武, 刘文汉. X射线吸收精细结构及其应用 [M]. 北京: 科学出版社, 1994: 32–35.
- WANG Q W, LIU W H. X-ray absorption fine structure and it's application [M]. Beijing: Science Press, 1994: 32–35.
- [13] CALVIN S. XAFS for everyone [M]. Boca Raton: Taylor & Francis, 2013: 20–21.
- [14] CHEN J H, DUFFY T S, DOBRZHINETS KAYA L F, et al. Advances in high-pressure technology for geophysical applications [M]. Amsterdam: Elsevier, 2005: 397–411.
- [15] STERNEMANN C, WILKE M. Spectroscopy of low and intermediate Z elements at extreme conditions: *in situ* studies of earth materials at pressure and temperature via X-ray raman scattering [J]. *High Pressure Research*, 2016, 36(3): 275–292.
- [16] 侯琪玥, 敬秋民, 张毅, 等. 基于同步辐射的X射线成像技术在静高压研究中的应用 [J]. *高压物理学报*, 2016, 30(6): 537–547.
- HOU Q Y, JING Q M, ZHANG Y, et al. Applications of synchrotron X-ray imaging techniques in high static pressure researches [J]. *Chinese Journal of High Pressure Physics*, 2016, 30(6): 537–547.
- [17] HETTEL R. The advanced photon source upgrade plan approved [J]. *Synchrotron Radiation News*, 2019, 32(2): 34–35.
- [18] DIMPER R, REICHERT H, RAIMONDI P, et al. ESRF upgrade programme phase II (2015 - 2022) technical design study [R]. France: ESRF, 2014.
- [19] TANAKA H, ISHIKAWA T, GOTO S, et al. SPring-8 upgrade project [C]//Proceedings of the 7th International Particle Accelerator Conference. Busan: INSPIRE, 2016: 2867–2870.
- [20] SCHROER C G, AGAPOV I, BREFELD W, et al. PETRA IV: the ultralow-emittance source project at DESY [J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 2018, 25: 1277–1290.
- [21] JIAO Y, XU G, CUI X H, et al. The HEPS project [J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 2018, 25: 1611–1618.
- [22] TAO Y. Groundbreaking ceremony at the high energy photon source in Beijing [J]. *Synchrotron Radiation News*, 2019, 32(5): 40.
- [23] SHEN G, PRAKAPENKA V B, ENG P J, et al. Facilities for high-pressure research with the diamond anvil cell at GSECARS [J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 2005, 12: 642–649.
- [24] SHEN G Y, CHOW P, XIAO Y M, et al. HPCAT: an integrated high-pressure synchrotron facility at the advanced photon source [J]. *High Pressure Research*, 2008, 28(3): 145–162.
- [25] ANDRAULT D, ANTONANGELI D, DMITRIEV V, et al. Science under extreme conditions of pressures and temperatures at the ESRF [J]. *Synchrotron Radiation News*, 2013, 26(5): 39–44.
- [26] HIRAO N, KAWAGUCHI S I, HIROSE K, et al. New developments in high-pressure X-ray diffraction beamline for diamond anvil cell at SPring-8 [J]. *Matter and Radiation at Extremes*, 2020, 5(1): 018403.
- [27] LIERMANN H P, KONÓPKOVÁ Z, MORGENTHROTH W, et al. The extreme conditions beamline P02.2 and the extreme conditions science infrastructure at PETRA III [J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 2015, 22: 908–924.
- [28] XU W. Nuclear resonant scattering program in China: opportunities and challenges at the high energy photon source in Huairou [J]. *Mössbauer Effect Reference and Data Journal*, 2017, 40: 213–218.
- [29] MAO H K, XU J, STRUZHIN V V, et al. Phonon density of states of iron up to 153 gigapascals [J]. *Science*, 2001, 292(5518): 914–916.
- [30] LIU J, HU Q Y, KIM D Y, et al. Hydrogen-bearing iron peroxide and the origin of ultralow-velocity zones [J]. *Nature*, 2017, 551(7681): 494–497.
- [31] KUPENKO I, APRILIS G, VASIUKOV D M, et al. Magnetism in cold subducting slabs at mantle transition zone depths [J]. *Nature*, 2019, 570(7759): 102–106.
- [32] WU J J, LIN J F, WANG X C, et al. Pressure-decoupled magnetic and structural transitions of the parent compound of iron-based 122 superconductors BaFe_2As_2 [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2013, 110(43): 17263–17266.

- [33] TROYAN I, GAVRILIUK A, RÜFFER R, et al. Observation of superconductivity in hydrogen sulfide from nuclear resonant scattering [J]. *Science*, 2016, 351(6279): 1303–1306.
- [34] BI W, SOUZA-NETO N M, HASKEL D, et al. Synchrotron x-ray spectroscopy studies of valence and magnetic state in europium metal to extreme pressures [J]. *Physical Review B*, 2012, 85(20): 205134.
- [35] BI W, LIM J, FABBRIS G, et al. Magnetism of europium under extreme pressures [J]. *Physical Review B*, 2016, 93(18): 184424.
- [36] CAI Y Q, MAO H K, CHOW P C, et al. Ordering of hydrogen bonds in high-pressure low-temperature H₂O [J]. *Physical Review Letters*, 2005, 94(2): 025502.
- [37] SHIEH S R, JARRIGE I, WU M, et al. Electronic structure of carbon dioxide under pressure and insights into the molecular-to-nonnuclear transition [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2013, 110(46): 18402–18406.
- [38] LEE S K, KIM Y H, YI Y S, et al. Oxygen quadclusters in SiO₂ glass above megabar pressures up to 160 GPa revealed by X-ray Raman scattering [J]. *Physical Review Letters*, 2019, 123(23): 235701.
- [39] CHEN B J, PARSCHEK E M, CHEN W C, et al. Probing cerium 4f states across the volume collapse transition by X-ray Raman scattering [J]. *The Journal of Physical Chemistry Letters*, 2019, 10(24): 7890–7897.
- [40] MEIRER F, CABANA J, LIU Y, et al. Three-dimensional imaging of chemical phase transformations at the nanoscale with full-field transmission X-ray microscopy [J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 2011, 18(5): 773–781.
- [41] LIU H Z, WANG L H, XIAO X H, et al. Anomalous high-pressure behavior of amorphous selenium from synchrotron x-ray diffraction and microtomography [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2008, 105(36): 13229–13234.
- [42] XIAO X H, LIU H Z, WANG L H, et al. Density measurement of samples under high pressure using synchrotron microtomography and diamond anvil cell techniques [J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 2010, 17(3): 360–366.
- [43] WANG J Y, YANG W G, WANG S, et al. High pressure nano-tomography using an iterative method [J]. *Journal of Applied Physics*, 2012, 111(11): 112626.
- [44] LIN Y, ZENG Q S, YANG W G, et al. Pressure-induced densification in GeO₂ glass: a transmission x-ray microscopy study [J]. *Applied Physics Letters*, 2013, 103(26): 261909.
- [45] ZENG Q S, KONO Y, LIN Y, et al. Universal fractional noncubic power law for density of metallic glasses [J]. *Physical Review Letters*, 2014, 112(18): 185502.
- [46] KATAYAMA Y, INAMURA Y, MIZUTANI T, et al. Macroscopic separation of dense fluid phase and liquid phase of phosphorus [J]. *Science*, 2004, 306(5697): 848–851.
- [47] LIU Y J, WANG J Y, AZUMA M, et al. Five-dimensional visualization of phase transition in BiNiO₃ under high pressure [J]. *Applied Physics Letters*, 2014, 104(4): 043108.
- [48] ZHU W L, GAETANI G A, FUSSEIS F, et al. Microtomography of partially molten rocks: three-dimensional melt distribution in mantle peridotite [J]. *Science*, 2011, 332(6025): 88–91.
- [49] SHI C Y, ZHANG L, YANG W G, et al. Formation of an interconnected network of iron melt at Earth's lower mantle conditions [J]. *Nature Geoscience*, 2013, 6(11): 971–975.
- [50] YUAN Q X, ZHANG K, HUANG W X, et al. Conceptual design of TXM beamline at high energy photon source [J]. *AIP Conference Proceedings*, 2019, 2054(1): 050002.

Introduction of Fourth-Generation High Energy Photon Source HEPS and the Beamlines for High-Pressure Research

LI Xiaodong, YUAN Qingxi, XU Wei, ZHENG Lirong

(*Institute of High Energy Physics, CAS, Beijing 100049, China*)

Abstract: The High Energy Photon Source (HEPS) located at Huairou's Science City in Beijing, one of the key projects listed in the “13th Five-year Plan for national major scientific and technological infrastructure”, has been under construction since 2019. HEPS will be a world-leading 4th generation high energy synchrotron radiation source featuring very low emittance, very high brilliance and high X-ray energy (about 300 keV). The new light source will provide X-ray probes with smaller size, higher brightness and better coherence for scientific researches. Synchrotron radiation technology has helped researchers achieve rich results in high-pressure research. In turn, the demand for high-pressure research is also promoting the development of synchrotron radiation experiment technology. In this paper, the design of the beamlines in the HPES phase I for high-pressure research are introduced, including a high-pressure beamline, an X-ray absorption spectroscopy beamline, a hard X-ray high energy resolution spectroscopy beamline and a transmission X-ray microscopy beamline. It is expected to help users well understand the functions of these beamlines, and further promote the development of synchrotron radiation high-pressure research together with the user community via seamless integration of techniques and users' various requirements for advancing high-pressure science.

Keywords: high energy photon source; high pressure; beamlines

上海同步辐射光源高压相关线站概述

杨 科, 蒋 升, 闫 帅, 周春银, 李爱国

(中国科学院上海高等研究院, 上海 201210)

摘要: 同步辐射X射线与基于金刚石对顶砧(DAC)和大体积压机(LVP)的静高压技术的结合推动了高压科学的发展。上海同步辐射光源(SSRF)是性能指标达到世界一流的中能第三代同步辐射光源,其中的硬X射线微聚焦及应用光束线站(BL15U1)具备高通量、能量可调的单色微束X射线,空间分辨达到微米至亚微米量级,在开展DAC高压研究方面有相当大的优势。自2010年对从事高压科学的研究的用户开放以来,国内外高压科学的研究者综合利用BL15U1线站高压实验方法取得了一系列有影响力的研究成果。此外,在建的上海光源二期线站工程中的超硬多功能线站(BL12SW)中配备200 t和2 000 t大压机,将成为开展LVP原位高压实验的有力平台。为促进用户对SSRF高压研究相关线站的了解,更好地利用相关平台开展研究工作,并为后续线站建设和实验方法发展提出宝贵建议,本文对BL15U1和BL12SW线站的布局、性能指标、实验站主要设施以及相关实验方法等进行了较为完整的介绍。

关键词: 上海同步辐射; 高压; 光束线站; 金刚石对顶砧; 大体积压机

中图分类号: O434.19; O521.3

文献标识码: A

压强是物质的基本热力学参数之一。高压可以有效改变物质内部的原子间距,调制相邻电子轨道的重叠、电子自旋以及电子与声子的相互作用,进而改变物质的电子状态、晶体结构、物理化学性质。在特定的高压条件下,半导体、绝缘体乃至分子固体材料均可以转化为金属态^[1-6]。高压下的物质科学揭示了许多普通环境中无法观测到的新现象,是深入认识物质结构、性质及其变化规律的有效途径之一^[7-10]。更进一步,高压技术结合高低温、磁场等原位条件为科学创新提供了更广阔的维度,有利于发现新现象、探索新问题、制备新材料^[11-15]。

能够产生高压环境的实验技术主要有两种:动态高压实验技术(简称动高压)和静态高压实验技术(简称静高压)。动高压是利用爆炸或者高速撞击产生的冲击波使样品经受瞬时高温高压环境条件的实验技术^[16],瞬时压力可以达到数千万大气压。静高压则是可以相对长时间维持较稳定的压力,目前最高压力可以达到数百万大气压。产生静高压的装置主要包括金刚石对顶砧(Diamond-anvil cell, DAC)^[17-20]和大体积压机(Large-volume press, LVP)^[21-26]。

DAC和LVP是高压实验研究中两种相辅相成、不可或缺的研究手段。每种技术均具有其独特的功能和应用范围。DAC能够产生几百万大气压的压力^[20, 27-28],结合激光加热可以实现6 000~7 000 K的高温。为了获得超过百万大气压的实验压力,DAC中的试样通常只有几个到几十微米大小,压力梯度和温度梯度比较大。LVP的试样体积要大得多(一般在毫米量级),并能够产生很高且均匀的温度(3 000 K以上),压力梯度也较小,但压力范围相对有限(目前最高可达120 GPa)。这些特征使LVP成为用大体积试样精细研究材料(尤其是多相系材料)物性的理想工具,也方便同时使用多种原位探测技术^[29-32]。

为了获得理想的高压条件,在实验中通常以减小样品体积为代价,而且将样品封闭在压腔内。这样能够有效保持试样与外界隔离,并保证了试样的纯度,同时要求与高压试样匹配的微探针。传统的

* 收稿日期: 2020-07-03; 修回日期: 2020-08-04

作者简介: 杨 科(1978—), 男, 博士, 研究员, 主要从事同步辐射实验技术研究. E-mail: yangke@zjlab.org.cn

实验室 X 射线光源受限于光强、能量及光斑尺寸, 很难直接对高压样品进行测试。高亮度、高能量、低发射度的同步辐射 X 射线源为研究高压下微小样品提供了强力探针, 并有效解决了在周围实验环境充满大量干扰物质的情况下探测微弱信号的问题^[33–35]。同步辐射 X 射线与高压技术结合是原位研究物质在高温高压下物性和行为的有力手段, 打开了高压研究领域的新纪元。

诸多基于同步辐射的 X 射线衍射实验方法中, 同步辐射 X 射线衍射(XRD)是高压研究的重要技术, 可用于测量单晶、多晶、纳米晶体和非晶材料的键长、密度、弹性及状态方程等诸多综合数据信息。与此同时, 同步辐射 X 射线光谱学研究取得了重大进展。近年来, 高压条件下的光谱分析技术逐渐成为一种重要的研究方法, 光谱技术与高压技术的成功结合为探索高压力下丰富的物理和化学现象提供了强有力的工具, 如: 利用 X 射线吸收谱(XANES、XAFS)研究价态变化和原子近邻结构变化, 利用成像方法研究形貌, 利用非弹性散射(IXS)研究电子结构、带隙变化等。

此外, 以同步辐射为基础的 XRD 及光谱学技术连同激光加热和低温技术一起, 为发现和拓展高压环境下的科学前沿问题提供了强有力的研究手段。最新发展的高分辨成像技术和快速时间分辨技术在高压 X 射线研究中发挥了越来越重要的作用。从原理上来讲, 只要探针比样品尺寸小, 同时探测效率比需要的时间分辨率高的情况下, 任何 X 射线技术都可以被用来成像和进行时间分辨探测。因此, 高压实验条件下探针大小和探测效率是设计中的关键。

目前, 世界上主要的同步辐射光源均有进行高压研究的专用同步辐射光束线站, 如: 欧洲同步辐射光源(ESRF)的 ID09A、ID27 线站^[36], 英国钻石光源(Diamond)的 I15 线站, 美国先进电子源(APS)的 3ID、13BM、16ID 线站^[37–38], 美国 NSLS II 光源的 X17C 线站^[39], 日本 SPring-8 光源的 BL04B1、BL10XU 线站等^[40]。我国同步辐射光源的高压研究应用始于 20 世纪 90 年代初期, 北京同步辐射装置(BSRF)的 4W2 线站为国内首批高压用户提供支持, 即使到了今天也依然满负荷运转, 为我国高压研究领域作出了重要贡献^[41]。2009 年, 作为世界先进的第三代同步辐射光源代表之一的上海同步辐射装置—上海光源(SSRF)建成开放, 其中的硬 X 射线微聚焦及应用光束线站 BL15U1 由于光斑小、通量高, 非常适合用于高压微束衍射实验。BL15U1 线站于 2010 年开始服务于高压科学研究, 目前超过一半的机时用于高压研究。近年来, 国内外高压科学研究人员综合利用该线站以及世界上其他先进光源取得了一系列重要研究成果^[42–45]。

BSRF 的 BL15U1 线站拥有高通量、能量可调的单色硬 X 射线微束, 空间分辨达到微米至亚微米量级, 非常适合开展 DAC 高压研究。在建的 SSRF 二期线站工程中的超硬多功能线站(BL12SW)配备了 200 t 和 2 000 t 的大压机, 能量范围覆盖 30~150 keV, 是开展 LVP 实验的理想平台。本文将分别介绍 SSRF 适于开展高压研究的硬 X 射线微聚焦及应用光束线站 BL15U1 以及即将建成的超硬多功能线站 BL12SW。

1 硬 X 射线微聚焦及应用光束线站(BL15U1)

1.1 BL15U1 线站介绍

硬 X 射线微聚焦及应用光束线站(Hard X-ray micro focusing beamline, HXMF)是开展高空间分辨、高灵敏的 μ -XRF、 μ -XAFS、 μ -XRD 实验及相应的二维 mapping 实验的综合性光束线站^[46]。该线站聚焦于硬 X 射线微束技术及应用, 在微米、亚微米光斑尺度下发展了多种实验方法, 在地球和环境科学、凝聚态物理、生命科学、材料科学、纳米技术和微电子等领域获得了广泛的应用。同步辐射硬 X 射线微聚焦光同时具有亮度高、光斑尺度小、穿透能力强的特点, 非常适用于 DAC 高压实验测试。

DAC 高压实验中, XRD 是最常用的实验方法。高压衍射可以提供样品的状态方程、晶体结构、相转变、弹性和晶格应变等信息, 是高压研究的基础手段。高压吸收谱实验作为衍射实验的补充, 可以对样品中特定元素的价态、局域结构(如键长、配位数、空间构型等)进行表征, 进一步确认高压相变路径。高压拉曼散射能够在电子结构到晶格动力学方面给出样品独特的结构信息, 是直接探测材料各种元激发性质的强有力工具。

1.1.1 主要技术指标

HXMF 线站 X 射线的能量范围为 5~20 keV, 可以使用 K-B 聚焦镜或者波带片聚焦。使用 K-B 镜聚焦时, 入射光能量在 5~20 keV 范围内连续可调, 聚焦光斑尺寸小于 $2 \mu\text{m} \times 2 \mu\text{m}$ 。在衍射常规的 20 keV 能量下, 样品处光子数大于 10^{10} ph/s 。使用波带片聚焦时, 入射光能量范围为 8~12 keV(将拓展至 16 keV), 聚焦光斑尺寸小于 $0.5 \mu\text{m} \times 0.5 \mu\text{m}$ 。HXMF 线站的主要技术指标见表 1。

表 1 HXMF 线站的主要指标
Table 1 Main parameters of HXMF beamline

Light source type	Energy/keV	Energy resolution ($\Delta E/E$)	Photon flux/[$\text{phs} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \mu\text{m}^{-2}$] (0.1% B.W.) $^{-1}$]	Beam size at sample/ ($\mu\text{m} \times \mu\text{m}$)	Divergence at sample/ (mrad \times mrad)
Undulator	5~20	$<2 \times 10^{-4}$ Si (111)	$>10^{12}$	$<2 \times 2$ (K-B mirrors)	$<2 \text{ (H)} \times 1.5 \text{ (V)}$ (K-B mirrors)

1.1.2 光束线布局

HXMF 线站分为光束线和实验站两部分。HXMF 光束线的布局如图 1 所示, 真空内平面波荡器 (IV-undulator) 出射的白光在水平方向经超环面镜预聚焦至次级光源狭缝, 在垂直方向准直为准平行光以提高单色光的能量分辨率, 经双晶单色器将白光单色化后引入实验站。单色 X 射线还可以使用光束线末端的四晶单色器进一步单色化, 实现更高的能量分辨。实验站配有 K-B 聚焦镜等聚焦元件, 可将单色 X 射线会聚并照射到样品点上。

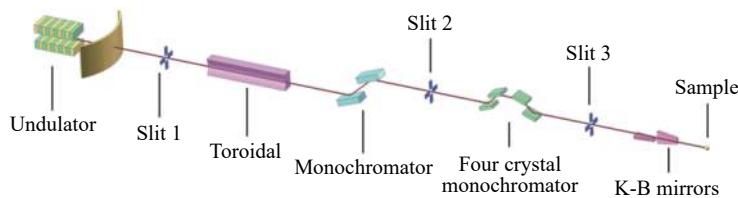


图 1 HXMF 光束线布局
Fig. 1 Schematic layout of HXMF beamline

1.1.3 实验站设计

HXMF 实验站配备两套聚焦系统: K-B 聚焦镜系统和波带片聚焦系统。K-B 聚焦镜系统的聚焦光能量在 5~20 keV 范围连续可调, 可实现最小聚焦光斑尺寸小于 $2 \mu\text{m} \times 2 \mu\text{m}$ 。焦点处配有六轴样品台、观测显微镜、荧光探测器和两台面型探测器。其中, 面型探测器为 Mar165 CCD, 该探测器的单像素点尺寸较小 ($80 \mu\text{m}$), 可用于高分辨衍射实验。另一台探测器是 Pilatus3S 1M, 该探测器具有较大的动态范围 (20 bits, 1 048 575 counts), 适合进行高压单晶衍射实验。当进行超高压实验需要更小的聚焦光斑时, 可以将探测器 Mar165 CCD 移至波带片聚焦系统使用。波带片聚焦系统的聚焦光斑尺寸小于 $0.5 \mu\text{m}$, 足以满足超高压实验对小尺寸 X 射线的需求。两套聚焦系统中, K-B 聚焦镜系统还可以进行高压吸收谱实验, 波带片聚焦系统未来可以进行高压拉曼散射实验。实验站设计图和照片分别如图 2 和图 3 所示。

1.2 HXMF 线站高压实验及设备

1.2.1 压力测量

金刚石对顶砧内压力标定通常有两种方法: 压力内标法及红宝石荧光标压法。压力内标法是将某种等温状态方程已知的物质与样品一起装入样品腔内, 测试压力下压标材料的衍射峰位变化, 反推样品腔内的压力。红宝石荧光标压法则是利用红宝石的荧光峰随压力升高发生红移, 测试偏移量得出样品腔内的压力^[47]。

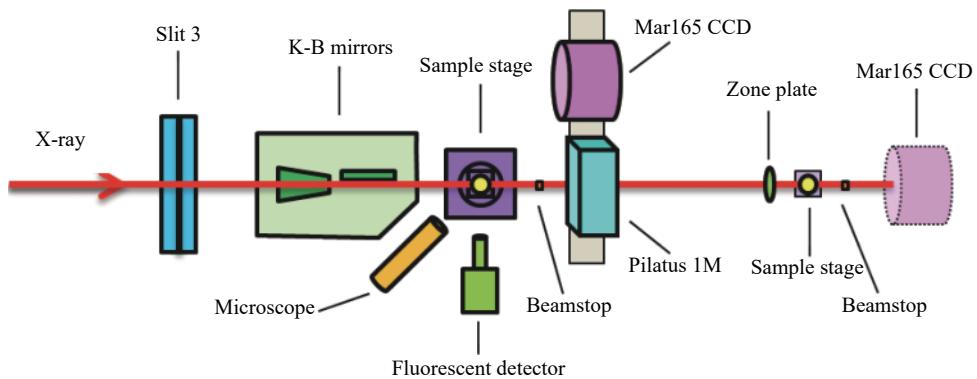


图2 HXMF实验站布局

Fig. 2 Schematic layout of HXMF experimental station

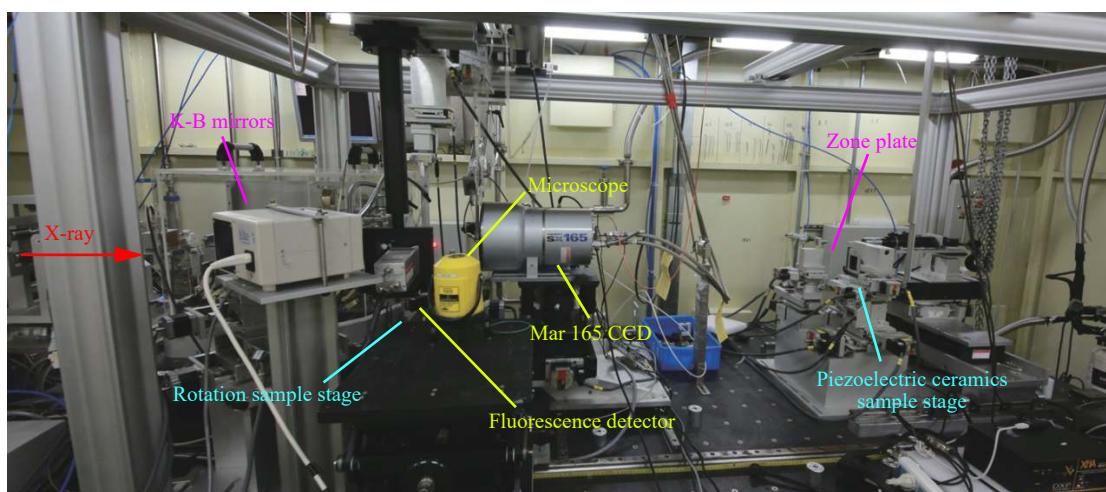


图3 HXMF实验站照片

Fig. 3 Photo of HXMF experimental station

红宝石荧光峰随压力升高发生的红移可表示为

$$p = A \{ [1 + (\Delta\lambda/\lambda_0)]^B - 1 \} / B \quad (1)$$

式中: p 为压力; λ_0 为红宝石荧光峰 R_1 在常压下对应的波长, 一般为 694.24 nm, 与 Cr^{3+} 的富集及结晶程度有关; $A = 1904 \text{ GPa}$; $B = 7.665$ (准静水压条件下) 或 $B = 5$ (非静水压条件下); $\Delta\lambda$ 表示 R_1 峰的红移量。实验中只要测出红宝石荧光峰 R_1 线的位置, 代入式(1)即可算出样品腔内的压力。

红宝石测压具有耗材少、装填容易、测量方便等优点, 是 DAC 实验的主要测压方法。实验站提供红宝石荧光离线测压系统, 测压光路如图 4 所示。测压系统主要指标: 激光聚焦光斑约为 3 μm , 光谱分辨率约为 0.02 nm, 测量压力范围为 0~100 GPa。

测量 100 GPa 以上更高压力时, 通常使用压力内标法或者金刚石拉曼峰随压力移动的方法标定压力, 衍射实验站配备了 Renishaw 拉曼光谱仪 (图 5), 可以方便对金刚石拉曼峰进行测量, 从而标定样品腔内压力。同时, HXMF 线站还配备了便携式可移动的红宝石测压系统, 如图 6 所示。

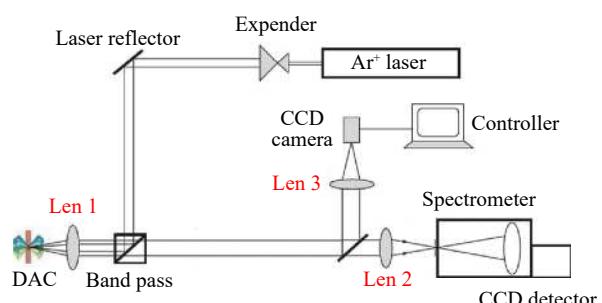


图4 红宝石荧光测压光路

Fig. 4 Optical system for measuring ruby fluorescence



图 5 Renishaw 拉曼光谱仪

Fig. 5 Renishaw Raman spectrometer



图 6 便携式红宝石测压系统

Fig. 6 Portable ruby high pressure calibration system

1.2.2 样品台

实验站的样品控制台具有 6 维运动自由度: 旋转轴下沿光束方向(Y)平动, 运动范围 $-30\sim30$ mm; 旋转轴下水平横向(X)平动, 运动范围 $-30\sim30$ mm; 垂直方向(Z)平动, 运动范围 $-20\sim20$ mm; 绕垂直方向轴转动(R), 转动范围 $-70^\circ\sim140^\circ$; 旋转轴上的水平横向平动(X_2), 运动范围 $-35\sim35$ mm; 旋转轴上沿光束方向平动(Y_2), 运动范围 $-10\sim10$ mm。样品控制台台面用 Newport 公司的 M-BK-4 光具座作为样品架转接接口, 适合快速安装各种原位设备, 同时能够在换样时高精度复位样品位置。样品控制台台面设计如图 7 所示。

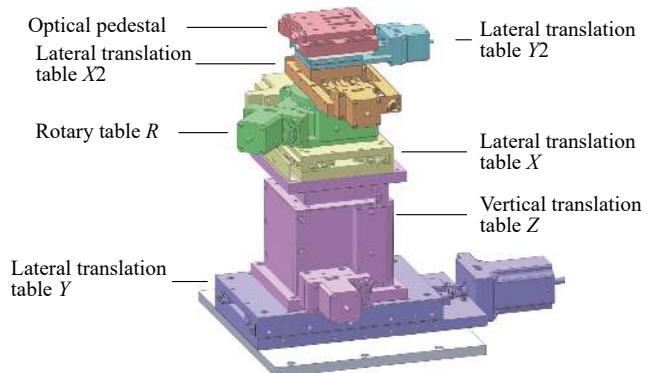


图 7 HXMF 实验站样品控制平台示意图

Fig. 7 Schematic of sample stages of HXMF experimental station

样品放入控制台后, 可通过旋转台 R 在水平面内旋转样品, 帮助将样品定位到 X 射线焦点上。具体方法: 先使用平移台 X 、 Y 将旋转台 R 的旋转轴与 X 射线焦点重合, 再使用平移台 X_2 、 Y_2 、 Z 将样品感兴趣点调整到 X 射线焦点上。实验时, 旋转台 R 的旋转轴、 X 射线焦点、样品感兴趣点三者是完全重合的, 误差不超过 $1\text{ }\mu\text{m}$, 从而保证了衍射实验中样品感兴趣点到探测器的距离基本不变。以样品感兴趣点到探测器距离 200 mm 为例, 重复定位样品所引起的面间距 d 的误差小于 5×10^{-4} 。在单晶衍射实验旋转样品时, 样品感兴趣点不会移出 X 射线焦点(半高宽 $2\text{ }\mu\text{m}$)之外。样品控制台实物照片见图 8。



图 8 HXMF 实验站六轴样品控制台

Fig. 8 Six axis sample stages of HXMF experimental station

1.2.3 DAC样品架及原位装置的接口

HXMF实验站六轴样品控制台台面使用Newport公司的M-BK-4光具座作为DAC样品架及原位装置的接口。M-BK-4光具座可以快捷、高精度重复样品的位置，重复误差小于1 μm，满足DAC实验中样品离线加压、测压后的复位需求，并可以极大地提高实验效率。DAC样品架有各种尺寸，适用于不同半径的DAC装置。这些样品架均采用三点定位销的方式固定DAC装置。DAC样品架的结构如图9所示。

高压衍射标准样品二氧化铈CeO₂也封装在和DAC结构相同的样品腔内，用以减少样品定位时间，从而提高效率。

1.2.4 HXMF实验站探测器

HXMF实验站拥有电离室、显微镜、荧光探测器、平面探测器等多种设备。

(1)电离室：配备流动充气电离室，分别测试入射X射线通量和出射X射线通量。也可以根据需要使用光电二极管(Photodiode)替代后电离室，同时作光通量采集和直通光阻挡器(Beamstop)作用。

(2)显微镜：在入射光水平面上，与入射光束成45°夹角放置，从而辅助寻找、定位样品。该显微镜可变换不同的物镜，以适合不同空间分辨和视场大小的要求。

(3)荧光探测器：硅漂移(SDD)探测器。

(4)平面探测器：Mar165 CCD和Pilatus3S 1M探测器。Mar165 CCD探测器的探测面为圆形，直径165 mm，共有2048×2048个像素点，每个像素点尺寸80 μm×80 μm，动态范围16 bit。Pilatus3S 1M探测器共有981×1043个像素点，每个像素点尺寸172 μm×172 μm，有效探测面积168.7 mm×179.4 mm，为单光子探测，计数器位深20 bit，最高频率25 Hz。

1.3 HXMF线站开展高压实验相关方法

HXMF线站主要开展DAC高压实验。在DAC实验中，样品腔的空间仅有几十到几百微米，样品腔外围不仅有金刚石、压力封垫，还有不锈钢支架等，传统分析测试手段很难对其进行有效测试。HXMF线站的同步辐射微聚焦硬X射线具有穿透性好、无损等特点，成为探测DAC中样品信息的理想探针。典型的金刚石对顶砧压机见图10。DAC的不锈钢支架上会开若干锥形孔，供X射线或可见光进出。

1.3.1 高压粉末衍射

同步辐射XRD是高压科学研究的主要技术之一，能够测量单晶、多晶、纳米晶体和非晶材料的键长、弹性、密度及状态方程等诸多综合数据信息。利用特殊的施压结构，还可导出弹性、流变、取向和微结构等更多信息。其中，粉末衍射(Powder XRD)实验方法在高压科学的研究中应用最为广泛。当X射线穿透金刚石压砧照射到粉末样品上时发生衍射，样品后面的面型探测器上会留下一组同心圆衍射环。衍射环的形态与样品衍射面、入射光能量、样品到探测器的距离、探测器状态等条件密切相关。实验时，确保上述后3个条件恒定，衍射环的形态就仅与衍射面相关。在压力作用下，测试衍射环的变化就可以得到样品晶体结构的变化。实验前，需要先用标准样品校准仪器状态，使用二氧化铈、六

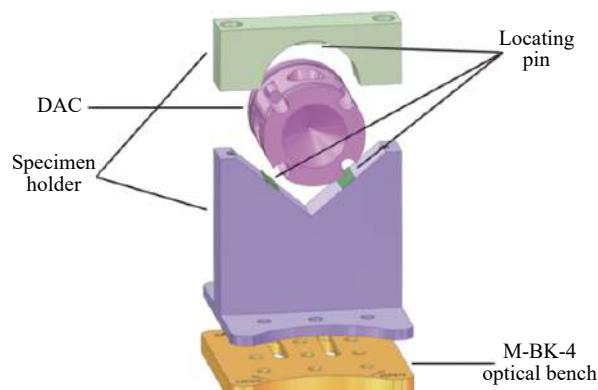


图9 样品架结构的爆炸视图

Fig. 9 Explosion view of sample holder structure



图10 DAC高压装置

Fig. 10 High pressure device of DAC

硼化镧等作为标准样品校准设备。图11为采用Mar165 CCD探测器得到的标准二氧化铈的衍射图样。

1.3.2 高压单晶衍射

单晶衍射实验需要旋转样品,使倒格点切割厄瓦尔球。旋转样品共有3个自由度,分别是水平面内的摆角 ω 、垂直于光路的滚角 κ 和沿光路竖直平面内的滚角 θ ,如图12所示。单晶衍射实验需要上述自由度中至少两个自由度,才能完整采集倒易空间信息。

受制于DAC装置的空间尺寸,很难找到合适的电机,既能高精度驱动样品绕 κ 方向转动,又可以在 ω 方向扫描时保证不遮挡入射X射线或衍射信号。所以HXMF线站采用改变 ω 、 θ 两个自由度来实现单晶衍射实验。单晶衍射的样品控制台如图13所示。

高压单晶衍射样品控制台是在原有的六轴样品控制台基础上增加了 θ 方向的控制维度来实现的。 θ 方向的控制维度由配重块、旋转电机和两个平移电机构成。平移电机正交装配在旋转电机表面,用于把样品调节到 θ 电机的旋转轴上。旋转电机提供样品 θ 方向的运动维度。配重块用于连接 θ 电机和六轴样品控制台,同时平衡 θ 电机带来的重心偏移,提高系统稳定性。整个 θ 方向的控制维度作为原位装置安装在六轴样品控制台表面的M-BK-4光具座接口上,可根据需要方便安装或移除。实验时,需保证 θ 方向旋转轴、 ω 方向旋转轴和样品感兴趣点相交于X射线焦点上。HXMF线站的位置调整精度一般小于1 μm。

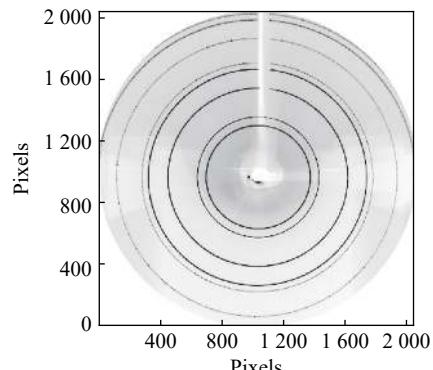


图11 二氧化铈的XRD谱(Mar165 CCD共有2048×2048个像素点,每个像素点尺寸为80 μm×80 μm)

Fig. 11 XRD pattern of CeO₂ (Mar165 CCD has 2048×2048 pixels, the size of each pixel is 80 μm×80 μm)

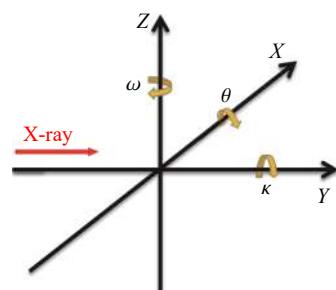


图12 HXMF实验系统的笛卡尔坐标系和旋转自由度

Fig. 12 Cartesian coordinate system and rotational degrees of freedom of HXMF experimental system

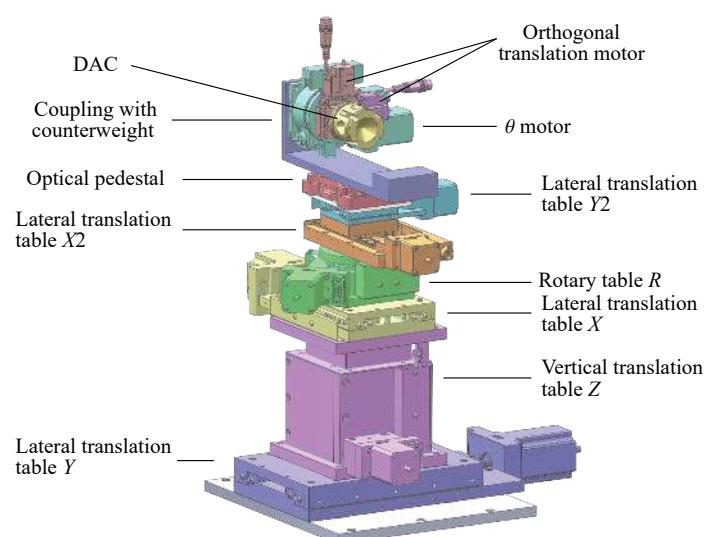


图13 高压单晶衍射样品控制平台

Fig. 13 Sample control platform for high pressure single crystal diffraction

高压单晶衍射实验中, 分别沿 ω 方向和 θ 方向旋转样品, 使所有倒格点都能够切割厄瓦尔球, 从而得到所有的衍射束。通过平面探测器记录压力下这些衍射点的位置改变, 就可以得到单晶的结构变化信息。

HXMF 线站还可以对单晶样品倒空间成像, 测试某个倒格点的具体形状。这些倒格点的三维形状代表实空间某个指数面的性质。测试压力下通过倒格点不同方向的形状变化, 可以得到晶体结构的各向异性变化。

1.3.3 反常衍射

利用同步辐射 X 射线能量在大范围内连续可调的特性, 可以对样品中的特定元素进行反常高压衍射。反常衍射结合常规衍射用以解析复杂的样品结构, 反常衍射还可以进行精细结构的测量。高压反常衍射精细结构将 X 射线吸收谱技术和衍射技术结合起来, 在特定元素的吸收边附近, 一边改变入射光能量, 一边采集衍射信息, 可以获得长周期性结构的材料中某特殊晶格位置上原子的近邻配位信息。

1.3.4 高压吸收谱

X 射线吸收谱(X-ray absorption spectroscopy, XAS)可以对特定元素进行结构表征, 获得这些元素的价态、构型、配位数、键长和无序度等信息。硬 X 射线吸收谱(XANES, XAFS)技术在测量极端条件下电子结构的原位特性中起到非常重要的作用。X 射线吸收过程中固有的元素和轨道特性允许探测极端压力条件下的价态、轨道填充态、杂化、电荷转移和电子排序的变化。HXMF 线站使用 K-B 镜聚焦 X 射线得到微米光斑, 在不同入射光能量下可以保持焦点的大小和位置稳定, 非常适合开展高压吸收谱实验。HXMF 线站的能量范围为 5~20 keV, 该范围内的高压吸收谱实验均可以实现。图 14 为 HXMF 线站高压吸收谱可分析的元素。

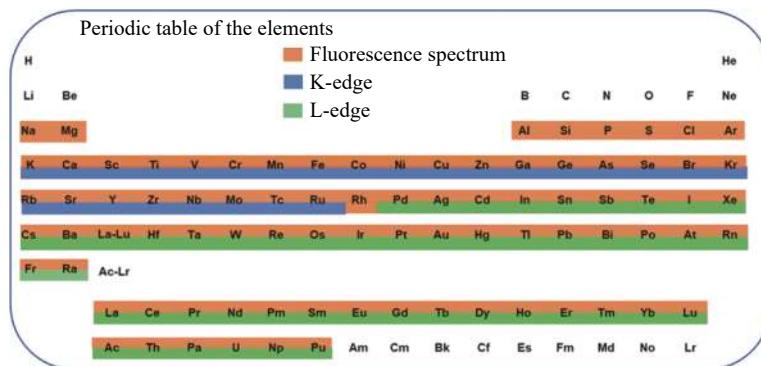


图 14 HXMF 线站可分析的元素

Fig. 14 Analyzable elements of HXMF beamline

1.3.5 高压原位实时实验

上海光源 BL15U1 同步辐射硬 X 射线具有高准直、高极化和宽频谱性能, 其高光谱亮度、高光子通量以及卓越的穿透能力配合 Pilatus 像素阵列探测器的快速采谱和读取能力, 使得高压原位实时的 X 射线衍射及成像成为现实。Pilatus 探测器的帧频可以达到 500 帧每秒。

2 BL12SW 超硬多功能线站

利用大压机和同步辐射 X 射线, 可以原位(*In-situ*)研究岩石矿物和物理材料在高温高压条件下的相变过程、物理化学性质、流变学特征等, 对于认识行星地球内部物质组成结构、动力学和演化过程以及极端条件下材料(如超硬材料)的特殊性质具有重要的科学意义和应用价值。

2.1 BL12SW 线站介绍

超硬多功能光束线(BL12SW, 简称“超硬线”)是 SSRF 二期工程的重要建设内容, 以超硬 X 射线应用为主要技术, 面向工程材料和高压科学研究两个领域, 实验方法包括高能 X 射线衍射和成像等。

超硬线能量范围覆盖30~150 keV,光源采用超导扭摆器(Wiggler),如图15所示,光束线按照一线四站模式建设,分别为两个高压原位实验站LVP1和LVP2,以及两个工程实验站ENG1和ENG2。在环厅内LVP1实验站前放置液氮冷却子午压弯劳厄双晶单色器,可实现全能量覆盖,并提供大光斑单色光;LVP2和ENG2实验站前放置弧矢压弯劳厄单色器,能量覆盖60~120 keV,可以水平聚焦光斑至约500 μm ,这部分光学和实验棚屋均在环外建筑中。下面主要介绍超硬线的LVP1和LVP2高压原位实验站。

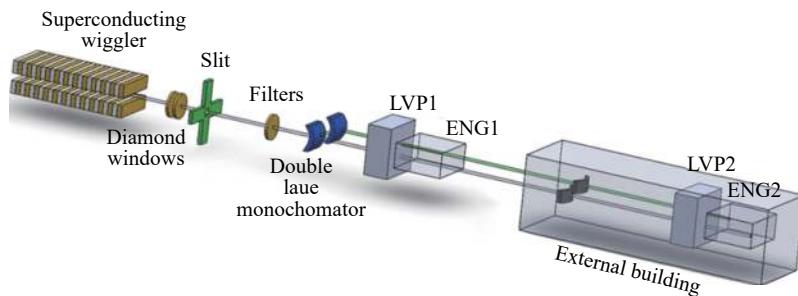


图15 超硬多功能光束线布局
Fig. 15 Schematic layout of super-hard multifunction beamline

2.1.1 BL12SW线站主要技术指标

超硬多功能线站的主要技术指标列于表2。

表2 超硬多功能线站的技术指标

Table 2 Technical specification of super-hard multifunction station

Energy/keV	Energy resolution ($\Delta E/E$)	Photon flux/(phs \cdot s $^{-1}$ @100 keV@25 μrad)	Spot size at sample/(mm \times mm)
30~150	$<9 \times 10^{-3}$	2×10^{11}	0.5 \times 0.5(Focused mode); Max:100 (H) \times 30 (V) (Non-focusing mode)

2.1.2 BL12SW线站实验站设计

LVP1实验站安装了一台200 t的DDIA型压机(型号SSRF-200),主要针对10 GPa以内的高压实验。该压机体积小巧而灵活,可以整体移出光路甚至实验棚屋外进行离线实验。LVP2实验站安装一台2 000 t的压机(型号SSRF-2000),最高实验压力可以达到35 GPa以上。

两个高压原位实验站均可以开展单色光角散衍射、白光能散衍射、单色光和白光成像实验、物性(弹性、电导、热导)测量等实验,如图16所示。

2.2 LVP1高压原位站

LVP1实验站配置200 t DDIA压机,主要针对压力相对较低的高压实验。由于其灵活的可移动性,为将来开发新的实验技术预留了升级改造空间,用户甚至可以临时安装其他便携高压装置,以满足多种实验方法。

如图17所示,200 t压机安装在多轴位移平台上,在旋转轴R的上下方分别有两套X、Y轴控制位移,使样品放置于旋转中心和光路中。200 t压机采用0~70 MPa液压系统,工作活塞冲程70 mm,

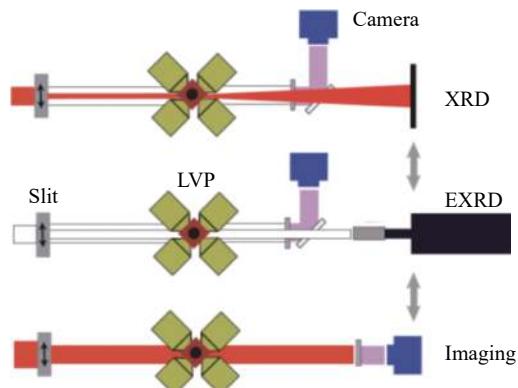


图16 高压原位实验站实验方法
Fig. 16 Experimental methods of *in situ* high pressure experimental station

DDIA 加压模具差分锤冲程范围 $-1 \sim 4 \text{ mm}$ 。DDIA 模具可整体通过导轨移出放置在压机外台面上并固定, 移出后模具的上半部能够自动提升并固定位置, 方便用户安装和取出样品。200 t DDIA 压机采用一级加压方式, 一级碳化钨砧头截角边长 6 mm 或 3 mm, 预期最高实验压力可以达到 10 GPa。

压机下游是探测器及其支撑位移平台, 成像相机可以方便地切入和切出, 以观察样品的位置和形貌, 高纯锗探测器用于白光能散衍射实验, 大面积平板探测器用于单色光角散衍射实验。

2.3 LVP2 高压原位站

LVP2 实验站配置 2000 t 大压机, 可以兼容 DDIA 和 Kawai 两种加压模具, 这应该是 2000 t 级别大压机这种先进设计在国际同步辐射线站中的首次应用。2000 t 压机底座位移平台位于 1 m 深的基坑中, 与 200 t 压机位移平台系统的不同之处在于, 其 Z 轴在四角位置具有独立的调节压机倾斜状态的功能。

如图 18 所示, 2000 t 压机的支撑框架为四立柱框架结构, 为 4 个水平方向上预留了较大空间。双向导轨可以方便地牵引加压模具进出压机, 专用的提升装置可以将加压模块的上部(一级 block)抓取并牢固锁定, 下部进一步滑出至导轨末端供用户操作样品。该双向导轨可以方便地切换 DDIA 和 Kawai 加压模具, 提高用户的实验效率。

2000 t 压机采用 0~70 MPa 液压系统, 工作活塞冲程 80 mm, DDIA 加压模具差分锤冲程范围为 $-10 \sim 10 \text{ mm}$, 可以完成高压变形实验。

2000 t 压机采用二级加压方式。一级压砧采用 49 mm 钢质砧头, 二级压砧(Anvil)使用 25.4 mm 碳化钨材料, 6-8 加压方式下压力可以达到 25 GPa。一级压砧也可以切换使用 27 mm 碳化钨砧头, 二级压砧采用 14 mm 烧结金刚石材料时可以将压力提高至 35 GPa 以上, 也支持 6-6 二级加压方式, 用于 DDIA 变形实验, 最高压力将可以达到 15 GPa。

类似于 LVP1 实验站, 2000 t 压机下游也会配置成像相机、高纯锗探测器和大面积平板探测器, 白光能散衍射和单色光角散衍射实验均可以在 2000 t 压机上实现。用户可以利用 2000 t 压机和同步辐射 X 射线开展原位高压相变、状态方程、物性测量和流变实验等。

2.4 辅助设施

超硬线将在环外建筑设立专用的辅助实验室, 为用户提供大压机实验所需的各种辅助设施, 主要包括桌面型加工车床、精密打孔机、精密切割机、压片机(组装件与样品成型)、恒温除湿柜、高温干燥箱、高温炉($1200 \text{ }^{\circ}\text{C}$)、热台和体式显微镜等。

3 展 望

SSRF 首批建造的 7 条光束线站除了 BL15U1 线站外, 还包括: 软 X 射线谱学显微及光刻线站、X 射线成像与医学应用线站、X 射线吸收精细结构谱(XAFS)线站、衍射线站、小角散射线站以及生物

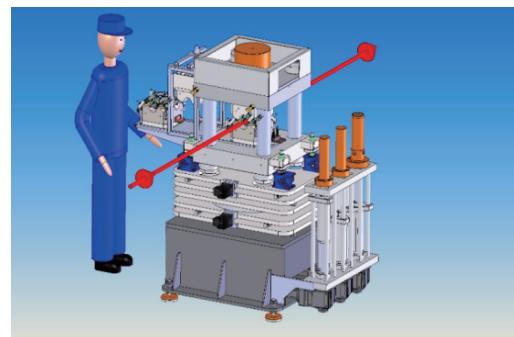


图 17 200 t 压机示意图(图片来源: Max Voggenreiter)

Fig. 17 Schematic diagram of 200 t LVP
(Image source: Max Voggenreiter)

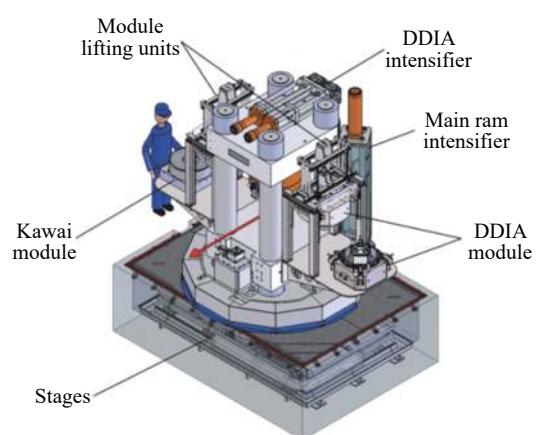


图 18 2000 t 压机示意图(图片来源: Max Voggenreiter)

Fig. 18 Schematic diagram of 2000 t LVP
(Image source: Max Voggenreiter)

大分子晶体学线站6条光束线站。在上述线站中,X射线成像线站、XAFS线站、衍射线站和小角散射等线站经过简单改进均已开展过DAC高压相关研究,如:高压成像、小角散射、PDF、高压衍射等。

SSRF二期16条在建线站中除了可开展大压机实验的BL12SW线站外,其他如通用谱学线站、纳米三维成像线站、快速X射线成像线站、动力学研究线站等均有开展高压下谱学和成像等实验的潜力。希望高压科学研究用户提出更多宝贵的建议,使SSRF在高压科学研究中发挥更大、更全面的作用。

感谢上海光源线站科学家的辛勤工作,感谢上海光源光学、控制、机械和建安等系统对线站设计和建设工作的支持与配合。感谢北京光源、合肥光源、APS、Diamond、NSLS II等光源相关线站科学家的大力支持和帮助。感谢国内外高压研究用户的建议和支持。

参考文献:

- [1] MAO H K, CHEN X J, DING Y, et al. Solids, liquids, and gases under high pressure [J]. *Review of Modern Physics*, 2018, 90(1): 015007.
- [2] MONSERRAT B, DRUMMOND N D, DALLADAY-SIMPSON P, et al. Structure and metallicity of phase V of hydrogen [J]. *Physical Review Letters*, 2018, 120(25): 255701.
- [3] DALLADAY-SIMPSON P, HOWIE R T, GREGORYANZ E. Evidence for a new phase of dense hydrogen above 325 gigapascals [J]. *Nature*, 2016, 529(7584): 63–67.
- [4] 吉诚, 李冰, 杨文革, 等. 静态超高压下氢的晶体结构实验研究 [J]. *高压物理学报*, 2020, 34(2): 020101.
JI C, LI B, YANG W G, et al. Crystallographic studies of ultra-dense solid hydrogen [J]. *Chinese Journal of High Pressure Physics*, 2020, 34(2): 020101.
- [5] 耿华运, 孙毅. 氢的高压奇异结构与金属化 [J]. *高压物理学报*, 2018, 32(2): 020101.
GENG H Y, SUN Y. On the novel structure and metallization of hydrogen under high pressure [J]. *Chinese Journal of High Pressure Physics*, 2018, 32(2): 020101.
- [6] CELLIERS P M, MILLOT M, BRYGOO S, et al. Insulator-metal transition in dense fluid deuterium [J]. *Science*, 2018, 361(6403): 677–682.
- [7] SHEN G Y, MAO H K. High-pressure studies with X-rays using diamond anvil cells [J]. *Reports on Progress in Physics*, 2017, 80(1): 016101.
- [8] GONCHAROV A F, STRUZHIN V V. Comment on “observation of the Wigner-Huntington transition to metallic hydrogen” [J]. *Science*, 2017, 357(6353): 9736.
- [9] ASHCROFT N W. Condensed-matter physics: pressure for change in metals [J]. *Nature*, 2009, 458(7235): 158–159.
- [10] HOWIE R T, GUILLAUME C L, SCHELER T, et al. Mixed molecular and atomic phase of dense hydrogen [J]. *Physical Review Letters*, 2012, 108(12): 125501.
- [11] MAO H K, HEMLEY R J. The high-pressure dimension in earth and planetary science [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2007, 104(22): 9114–9115.
- [12] 李子军, 李岗. InAs晶体二维自旋磁极化子自陷能的磁温效应 [J]. *高压物理学报*, 2005, 19(1): 45–50.
LI Z J, LI G. Magnetic field and temperature effects on the self-trapping energy of the 2-D spin magnetopolaron in an InAs crystal [J]. *Chinese Journal of High Pressure Physics*, 2005, 19(1): 45–50.
- [13] SHI J M, CUI W W, HAO J, et al. Formation of ammonia-helium compounds at high pressure [J]. *Nature Communications*, 2020, 11(1): 3164.
- [14] LOU H B, ZENG Z D, ZHANG F, et al. Two-way tuning of structural order in metallic glasses [J]. *Nature Communications*, 2020, 11(1): 314.
- [15] 鄢浩安, 马帅领, 包括, 等. 高硬度超导三元碳化物的高温高压合成 [J]. *高压物理学报*, 2018, 32(2): 023301.
GAO H A, MA S L, BAO K, et al. Synthesis of hard superconductive ternary transition metal carbide under high pressure and high temperature [J]. *Chinese Journal of High Pressure Physics*, 2018, 32(2): 023301.
- [16] 毕延, 经福谦. 动高压物理在地球与行星科学中的应用 [J]. *地学前缘*, 2005, 12(1): 79–92.

- BI Y, JING F Q. Application of dynamic high-pressure physics to Earth and Planetary Science studies [J]. *Earth Science Frontiers*, 2005, 12(1): 79–92.
- [17] BASSETT W A. Diamond anvil cell, 50th birthday [J]. *High Pressure Research*, 2009, 29(2): 163–186.
- [18] DEWAELE A, LOUBEYRE P, OCCELLI F, et al. Toroidal diamond anvil cell for detailed measurements under extreme static pressures [J]. *Nature Communications*, 2018, 9(1): 2913.
- [19] LI B, JI C, YANG W G, et al. Diamond anvil cell behavior up to 4 Mbar [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2018, 115(8): 1713–1717.
- [20] JENEI Z, O'BANNON E F, WEIR S T, et al. Single crystal toroidal diamond anvils for high pressure experiments beyond 5 megabar [J]. *Nature Communications*, 2018, 9(1): 3563.
- [21] 王雁宾. 地球内部物质物性的原位高温高压研究: 大体积压机与同步辐射源的结合 [J]. *地学前缘*, 2006, 13(2): 1–36.
- WANG Y B. Combining the large-volume press with synchrotron radiation: applications to *in-situ* studies of Earth materials under high pressure and temperature [J]. *Earth Science Frontiers*, 2006, 13(2): 1–36.
- [22] 彭放, 贺端威. 应用于高压科学的研究的国产铰链式六面顶压机技术发展历程 [J]. *高压物理学报*, 2018, 32(1): 010105.
- PENG F, HE D W. Development of domestic hinge-type cubic presses based on high pressure scientific research [J]. *Chinese Journal of High Pressure Physics*, 2018, 32(1): 010105.
- [23] GUIGNARD J, CRICHTON W A. The large volume press facility at ID06 beamline of the European synchrotron radiation facility as a high pressure-high temperature deformation apparatus [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2015, 86(8): 085112.
- [24] LIU X, CHEN J L, TANG J J, et al. A large volume cubic press with a pressure-generating capability up to about 10 GPa [J]. *High Pressure Research*, 2012, 32(2): 239–254.
- [25] REN D S, LI H P, SHAN S M. The application of manganin wire pressure gauges in a large volume press under high-temperature conditions [J]. *High Pressure Research*, 2019, 39(4): 619–627.
- [26] NIELSEN M B, CERESOLI D, PARISIADES P, et al. Phase stability of the SrMnO_3 hexagonal perovskite system at high pressure and temperature [J]. *Physical Review B*, 2014, 90(21): 214101.
- [27] AKAHAMA Y, KAWAMURA H. Pressure calibration of diamond anvil Raman gauge to 410 GPa [J]. *Journal of Physics: Conference Series*, 2010, 215: 012195.
- [28] DUBROVINSKY L, DUBROVINSKAIA N, PRAKAPENKA V B, et al. Implementation of micro-ball nanodiamond anvils for high-pressure studies above 6 Mbar [J]. *Nature Communications*, 2012, 3: 1163.
- [29] 王雁宾. 利用大体积压机与同步辐射进行原位高温高压研究——地球内部物质物性研究的应用 [J]. *物理*, 2006, 35(7): 570–578.
- WANG Y B. High-pressure, high-temperature research using the large-volume press combined with synchrotron radiation: applications to studies of physical properties of Earth materials [J]. *Physics*, 2006, 35(7): 570–578.
- [30] ZHOU X F, MA D J, WANG L F, et al. Large-volume cubic press produces high temperatures above 4 000 Kelvin for study of the refractory materials at pressures [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2020, 91(1): 015118.
- [31] ZHANG Q C, LI R, GU X, et al. Thermal analysis of the growth process of synthetic diamond in the large volume cubic press apparatus with large deformation of high pressure cell [J]. *Journal of Crystal Growth*, 2015, 420: 80–83.
- [32] YU T, WANG Y B, RIVERS M L, et al. An upgraded and integrated large-volume high-pressure facility at the GeoSoilEnviroCARS bending magnet beamline of the Advanced Photon Source [J]. *Comptes Rendus Geoscience*, 2019, 351(2/3): 269–279.
- [33] MAO H K, JEPHOAT A P, HEMLEY R J, et al. Synchrotron X-ray diffraction measurements of single-crystal hydrogen to 26.5 gigapascals [J]. *Science*, 1988, 239(4844): 1131–1134.
- [34] WANG L, DING Y, YANG W G, et al. Nanoprobe measurements of materials at megabar pressures [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2010, 107(14): 6140–6145.
- [35] 徐济安, 毕延. 同步辐射 X 射线光源在高压科学中的应用 [J]. *物理*, 2012, 41(4): 218–226.
- XU J A, BI Y. Application of synchrotron radiation X-ray sources in high pressure research [J]. *Physics*, 2012, 41(4): 218–226.
- [36] ANDRAULT D, ANTONANGELI D, DMITRIEV V, et al. Science under extreme conditions of pressures and temperatures at the ESRF [J]. *Synchrotron Radiation News*, 2013, 26(5): 39–44.
- [37] SHEN G, PRAKAPENKA V B, ENG P J, et al. Facilities for high-pressure research with the diamond anvil cell at GSECARS [J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 2005, 12(5): 642–649.

- [38] SHEN G Y, CHOW P, XIAO Y M, et al. HPCAT: an integrated high-pressure synchrotron facility at the advanced photon source [J]. *High Pressure Research*, 2008, 28(3): 145–162.
- [39] EHM L, VAUGHAN M, DUFFY T, et al. High-pressure research at the national synchrotron light source [J]. *Synchrotron Radiation News*, 2010, 23(3): 24–30.
- [40] HIRAO N, KAWAGUCHI S I, HIROSE K, et al. New developments in high-pressure X-Ray diffraction beamline for diamond anvil cell at SPring-8 [J]. *Matter and Radiation at Extremes*, 2020, 5(1): 018403.
- [41] LIU J. High pressure X-ray diffraction techniques with synchrotron radiation [J]. *Chinese Physics B*, 2016, 25(7): 076106.
- [42] HU Q Y, KIM D Y, YANG W G, et al. FeO₂ and FeOOH under deep lower-mantle conditions and Earth's oxygen–hydrogen cycles [J]. *Nature*, 2016, 534(7606): 241–244.
- [43] JI C, LI B, LIU W J, et al. Ultrahigh-pressure isostructural electronic transitions in hydrogen [J]. *Nature*, 2019, 573(7775): 558–562.
- [44] SUN L L, CHEN X J, GUO J, et al. Re-emerging superconductivity at 48 kelvin in iron chalcogenides [J]. *Nature*, 2012, 483(7387): 67–69.
- [45] GUO J, CHEN X J, DAI J H, et al. Pressure-driven quantum criticality in iron-selenide superconductors [J]. *Physical Review Letters*, 2012, 108(19): 197001.
- [46] ZHANG L L, YAN S, JIANG S, et al. Hard X-ray micro-focusing beamline at SSRF [J]. *Nuclear Science and Techniques*, 2015, 26(6): 060101.
- [47] MAO H K, XU J, BELL P M. Calibration of the ruby pressure gauge to 800 kbar under quasi-hydrostatic conditions [J]. *Journal of Geophysical Research*, 1986, 91(B5): 4673–4676.

Application of Shanghai Synchrotron Radiation Source in High Pressure Research

YANG Ke, JIANG Sheng, YAN Shuai, ZHOU Chunyin, LI Aiguo

(Shanghai Advanced Research Institute, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201210, China)

Abstract: The combination of synchrotron X-ray radiation and static high pressure technology based on diamond anvil cell (DAC) and large volume press (LVP) has fundamentally promoted the development of high pressure science. Shanghai Synchrotron Radiation Facility (SSRF) is one of the advanced third generation light sources in the world, the hard X-ray micro-focusing beamline (BL15U1) of SSRF provides a monochromatic micro X-ray beam with high flux and adjustable energy, whose spatial resolution reaches the order of micrometer to submicron, and it has considerable advantages in DAC high-pressure experiments. Since it provided beamline time to high-pressure researchers in 2010, a series of influential achievements have been produced by using the related high pressure experimental methods at BL15U1. Moreover, the ultra-hard X-ray multi-functional beamline (BL12SW) in SSRF phase II is equipped with 200 t and 2000 t of LVP, which is a powerful platform for LVP experiments. In order to promote high pressure researchers to have a full understanding of the high pressure beamline at SSRF and make better use of relevant platforms to carry out research work, as well as to put forward valuable suggestions for the follow-up beamline construction and the development of experimental methods. In this paper, the layout, beamline specifications, main facilities and related experimental methods of BL15U1 and BL12SW beamlines are introduced in detail.

Keywords: Shanghai synchrotron radiation; high pressure; beamlines; diamond anvil cell; large volume press

同步辐射高压衍射技术

刘 景

(中国科学院高能物理研究所, 北京 100049)

摘要: 同步辐射光源具有宽光谱、高亮度、高准直等优异性能, 被广泛地用于高压科学的研究。在依托同步辐射光源所发展的诸多高压研究手段中, X射线衍射是最基本的也是应用最多的实验技术之一。本文简单介绍了同步辐射光的独特性能和光源的基本构成, 以及同步辐射光束线和实验站的基本概念。针对基于金刚石对顶砧 (DAC) 的高压 X射线衍射技术, 阐述了多种测试方法的原理和应用, 包括粉末衍射、单晶衍射、多晶衍射、径向衍射、激光加温衍射以及快速加载衍射等。对北京同步辐射装置 (BSRF) 4W2 高压衍射线站所提供的同步辐射光品质、X射线微聚焦能力、多种衍射方法以及新近发展的实验技术进行了较详细的描述, 并展望了高能同步辐射光源 (HEPS) 的建设给高压科学带来的机遇。

关键词: 高压; X射线衍射; 同步辐射; DAC

中图分类号: O434.19; O521.3

文献标识码: A

同步辐射是接近光速运动的带电粒子在磁场中发生偏转时产生的电磁辐射。由于这种辐射最早是在电子同步加速器上观察到的, 因此被命名为同步辐射。同步辐射光源能够产生、优化并利用这种电磁辐射进行科学的研究, 是目前世界上数量最多的大型科学装置。同步辐射具备宽光谱、高亮度、低发散等优异性能, 在物理、化学、材料科学、地球科学、生命科学、能源、环境等学科领域的研究中发挥了重要作用。在过去的几十年, 高压极端条件下的科学的研究取得了长足进步, 这在很大程度上得益于同步辐射光源和 X射线探测技术的发展。目前, 同步辐射光源已经发展了多种适用于高压研究的 X射线探测技术, 如 X射线衍射、X射线成像、X射线光谱测量等。其中, X射线衍射(XRD)是最基本也是应用最多的实验技术, 并且在未来高压研究中仍会充当重要的角色。高压衍射技术可以研究单晶、多晶、纳米晶和非晶材料的基本结构和密度, 研究压力导致的结构相变、状态方程、弹性、流变和织构等性质。高压衍射与加温技术结合可以研究材料的温压相图、 p - V - T 状态方程、熔化曲线等。目前, 在现有的同步辐射光源中, 高压 X射线衍射技术已经得到了广泛应用, 包括金刚石压砧(DAC)、大体积压机和冲击波加载条件。随着同步辐射光源和 X射线探测器性能不断提高, 基于 DAC的高压衍射技术, 从最初的能散色散衍射(EDXD)到角散射衍射(ADX), 发展了多种衍射方法, 不仅扩大了高压晶体学的研究范围, 也使晶胞参数的测量精度和探测效率得到大幅提升。本文将以 DAC衍射为主线, 介绍目前同步辐射光源发展的多种高压衍射技术和实验方法。

1 同步辐射光源介绍

1.1 同步辐射光源的结构

同步辐射光源主要由加速器、光束线和实验站组成。[图 1](#) 为典型的电子加速器产生同步辐射示意

* 收稿日期: 2020-07-06; 修回日期: 2020-07-14

基金项目: 国家自然科学基金(U1530134, 10875142, 11075175); 中国科学院知识创新重要方向项目(KJCX2-SW-N20, KJCX2-SW-N03); 中国科学院大型科研装备研制项目(SYGN04)

作者简介: 刘 景(1950—), 女, 本科, 研究员, 主要从事同步辐射高压实验技术及其应用研究.

E-mail: LiuJ@ihep.ac.cn

图。加速器包括直线加速器、增强器和储存环。加速器用于产生高速运动的电子束，并使电子束按照设计轨道做偏转运动，沿运动的切线方向产生同步辐射光。分布于储存环上的磁结构致使电子发生偏转，磁结构主要有弯转磁铁(Bending magnet)、扭摆磁铁(Wiggler)和波荡器(Undulator)。扭摆磁铁和波荡器也被称作储存环上的插入件。同步辐射光的性能主要取决于储存环中电子束的参数和发光部件的结构。

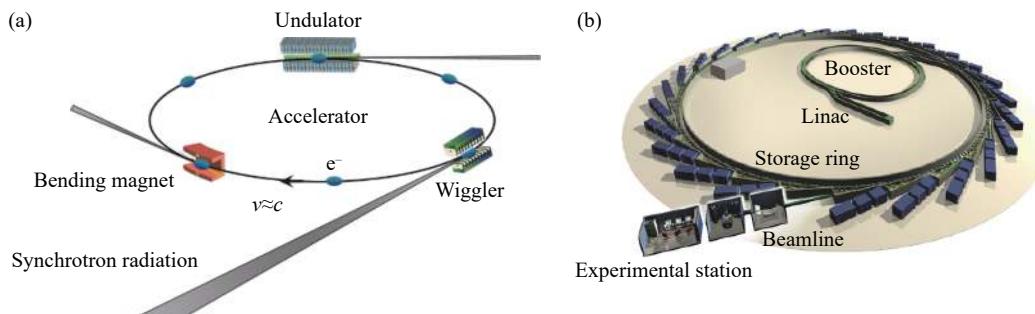


图 1 同步辐射产生原理和光源结构

Fig. 1 Schematic diagram of synchrotron radiation and light source structure

光束线装置能够对加速器产生的辐射光进行截取、转换和传输^[1]，主要由单色器、聚焦镜、光阑、狭缝等光学元件和传输管道组成。通过光学处理，使到达实验站的光束具有特定的能量范围、光斑尺寸、能量分辨率或其他性能。一个同步辐射光源一般有数十条甚至上百条光束线，根据不同的实验需求进行设计，例如：可以利用单色器对连续的光谱进行分光，选取所需要的波长进行单色光实验，也可以直接引出多色光(也称作白光)到实验站；可以利用聚焦系统将光束聚焦到微米或纳米量级，以满足微束实验的要求，也可以使用分布均匀的大光斑进行特殊的实验。根据光束线能够提供的光谱范围，可以将光束线分为硬 X 射线光束线、软 X 射线光束线、真空紫外光束线、红外光束线等；从能量分辨的角度可以分为白光光束线、单色光光束线和粉光光束线；在同步辐射装置上，也常根据光束线的功能和实验方法区分光束线，如小角散射光束线、光电子能谱光束线等。

储存环引出的辐射光经光束线截取、转换后，传输至实验站中的样品，入射光子与物质中的原子或分子发生相互作用会发生反射、散射、吸收等，通过探测相互作用产生的光子和电子等形态，可以得到物质的晶体结构、电子结构、分子结构、声子和表面界面结构等微观信息，从而研究物质的宏观性质形成机理。实验站的主要设备有样品调整机构、探测器系统以及样品环境辅助配套设施等。样品调整机构用于样品的精确定位和光路准直。多数实验样品和光斑都很小，甚至在微米、纳米量级，对调整精度有极高的要求。探测器是实验站的核心设备，作为实验数据收集的仪器，其性能直接决定着实验数据的质量和探测效率。目前，同步辐射领域常用的探测器主要有气体探测器、固体探测器(SSD)、闪烁探测器、成像板探测器(IP)、电荷耦合探测器(CCD)、硅微条探测器和像素阵列探测器(PAD)等^[2]。不同的实验站和测试目标对探测器的类型、探测效率、能量分辨能力、空间分辨能力等有不同的要求。随着同步辐射光源性能的不断提高，探测器也经历了跨越性的发展，仅高压研究最常用的角色散 X 射线衍射中接收衍射信号的探测器就经历了从 IP、CCD 到 PAD 的发展历程，探测器的空间分辨能力、读出时间以及降噪音能力等都有了极大的提高。

1.2 同步辐射光的性能

同步辐射光具有宽光谱、高强度、低发散(高准直)、天然偏振、脉冲时间结构等诸多优异的性能。

1.2.1 光谱分布

同步辐射光是连续的平滑波谱，光谱覆盖范围从远红外到硬 X 射线。通常用光子通量随光子能量的变化描述光源的光谱分布，能够形成一个基于贝塞尔函数的普适曲线，如图 2 所示。定义光子特征能量 ε_c 表征光源的辐射特征，其与储存环电子的能量和偏转半径有关^[3]。以特征能量为界，在谱分布的

低能区和高能区, 辐射功率各占电子辐射总功率的一半。通常认为, 同步辐射光可用的光谱范围从5倍 ϵ_c 向低能方向延伸至红外。

在同样的偏转条件下, 电子能量越高, 特征能量也越高。在同步辐射领域常常听到高能环、中能环、真空紫外环等说法, 意指这些光源的储存环电子能量的高低, 也隐含了可利用的主要辐射光谱范围。目前世界上具有代表性的第三代光源包括APS(美国)、ESRF(法国)和SPring-8(日本)都是高能光源, 电子能量为6~8 GeV, 且使用的发光部件主要是插入件, 有很高的特征光子能量, 这些光源上的应用以硬X射线为主。目前国内正在设计建造的高能同步辐射光源(HEPS), 电子能量为5~6 GeV。

1.2.2 辐射角分布

同步辐射光源中, 接近光速的电子在储存环中作偏转运动时, 产生的电磁辐射光具有很小的发散角, 集中在沿运动轨道切线方向的一个极小椭圆锥体内, 如图3所示, E 为电子能量, m 为电子质量, c 为光速。同步辐射光具有高准直性, 其垂直发散角与储存环电子能量有关, 能量越高, 发散角越小。由图3可知, 当电子能量大于1 GeV时, 辐射光集中在垂直张角1 mrad以内。在辐射光截面上, 角分布还与光子能量有关, 高能量的光子集中在光束的中心锥内。同步辐射光天然的高准直性, 使得光束能够传输到几十米远, 自然光斑大小为毫米量级, 这是常规光源远不能比拟的。

1.2.3 辐射强度

描述同步辐射光的强度有多种表达方式, 常用的有光子通量和光谱亮度。光源的亮度可定义为每秒钟从单位光源面积向单位立体角发射的能量带宽为千分之一光子能量内的光子数目。图4给出了不同发光部件引出同步辐射的光谱亮度^[4]。扭摆磁铁与弯转磁铁的光谱形状相同, 由于前者的磁场更强, 因此产生的光子具有更高的特征能量和亮度。波荡器的光谱形状与弯转磁铁和扭摆磁铁不同, 由若干相干峰叠加形成, 故而亮度更高。图4同时给出了实验室常规X射线光源的谱亮度, 可以看出同步辐射光源的亮度比转靶X射线管高出5~10个数量级, 意味着普通实验室需要几十小时甚至几天获取的数据, 在同步辐射光源上只需要几秒钟甚至更短的时间。

1.2.4 偏振性

同步辐射光具有天然的偏振特性, 在电子束轨道平面内是线偏振光, 在轨道平面上方及下方是手性相反的椭圆偏振光。偏光元件可以将任意

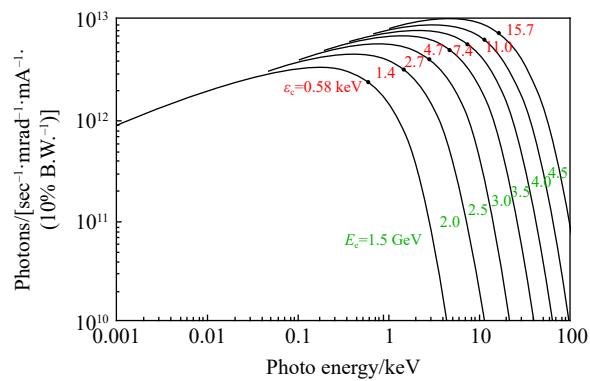


图2 同步辐射光谱分布形状^[3]

Fig. 2 Shape of synchrotron radiation spectrum distribution^[3]



图3 接近光速的电子偏转运动时产生辐射的角发散

Fig. 3 Radiation angular divergence of relativistic electron in circular motion

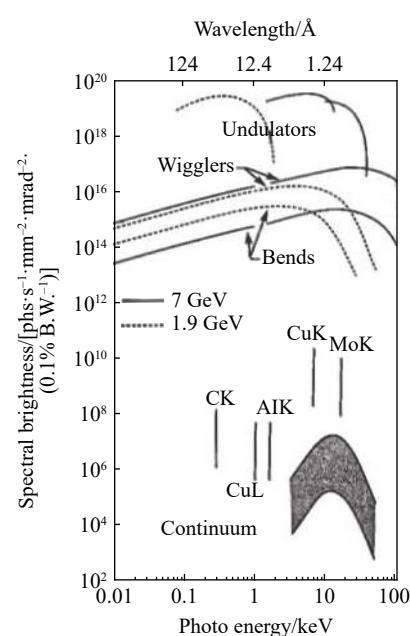


图4 同步辐射光源和常规X光源的光谱亮度^[4]

Fig. 4 Spectral brightness of synchrotron radiation and conventional sources^[4]

一种入射光转换成所需的偏振光。利用同步辐射光的偏振性质可以研究材料的磁性质。利用圆偏振光和外加磁场,采用X射线吸收谱的方法可以获得X射线磁圆二色谱(XMCD),从而研究磁性材料中特定元素的磁矩变化。在高压下,通过磁圆二色测量可以研究材料在压力诱导下磁性变化与结构变化的关系,如在低温高压下用XMCD和XRD对稀土掺杂锰氧化物($\text{La}_{0.75}\text{Ca}_{0.25}\text{MnO}_3$)进行铁磁基态稳定性研究,发现了 MnO_6 八面体单轴压缩性质的反常变化,与压力导致的铁磁性-反铁磁性的转变有关^[5]。

1.2.5 脉冲时间结构

在同步辐射光源中,电子在储存环中的运动是以束团的方式进行的,因此发出的辐射在时间上不是连续的,而是具有周期性的脉冲时间结构。储存环通常为多束团模式运行,几十个或数百个束团分布在轨道中,以接近光速的速度同时旋转。在特定的应用中,也可以采用单束团模式运行。脉冲宽度和时间间隔取决于电子束团的长度和束团间的距离。北京同步辐射装置在单束团运行时,脉冲时间间隔约为800 ns,脉冲宽度约为50 ps。APS电子束团绕储存环旋转一圈为3.68 μs ,在标准模式运行时储存环中同时有24个束团,每个束团间隔约为150 ns。

利用脉冲时间结构可以进行超快实验,研究动态过程,非常适合于纳秒时间分辨的冲击波高压实验研究^[6]。利用多束团的纳秒时间分辨XRD,可以得到冲击压缩过程中的结构演化。单束团模式下的高分辨X射线照相术可以观察冲击前沿、界面和材料的运动状态。针对不同束团运行模式下的脉冲时间结构,APS的动态压缩线站(Dynamic compression sector, DCS)设计了不同的实验棚屋,采用多种光束模式以适应不同的动态压缩驱动装置^[7]。

1.3 北京同步辐射装置(BSRF)

同步辐射光源的出现已有近半个世纪的历史,其建造和应用经历了三代发展。早期的同步辐射光源依附于为高能物理研究建造的电子加速器和储存环,以一种寄生或兼用的模式运行,被称作第一代同步辐射光源。第二代光源专门为同步辐射应用设计,对储存环的结构进行了优化,有效降低了发射度,使光源的亮度得到提高。由于是专用光源,不再受限于寄生模式运行带来的困扰。第三代光源的特征是在低发射度的储存环上使用了大量的插入件,光源的亮度得到了跨越式提高,与第二代光源相比提高了数个量级。

BSRF属于第一代光源,依托北京正负电子对撞机(BEPC)而建,部分时间按照专用模式运行。BEPC在同步辐射专用运行时,电子能量为2.5 GeV,流强通常为200~250 mA。图5为BEPC不同发光点的光谱亮度分布,其中B表示弯转磁铁光源点,W表示插入件扭摆磁铁光源点^[4]。从BEPC插入件引出的辐射光性能大体能达到第二代光源的水平。图6为BSRF光束线的分布^[1]。目前共有15条光束线由BEPC引出,其中9条的发光部件为扭摆磁铁(以W表示),其他为弯转磁铁(以B表示)。图中4W2光源点具有较高的特征能量和亮度,由此引出的光束线用于高压科学的研究。近期BSRF建造的8周期超导扭摆磁铁替换了原来的3W1,其峰值磁场强度为2.3 T,在BEPC II能量为2.5 GeV时,其特征能量为9.6 keV,是目前BSRF上能量最高、亮度最强的光源点。

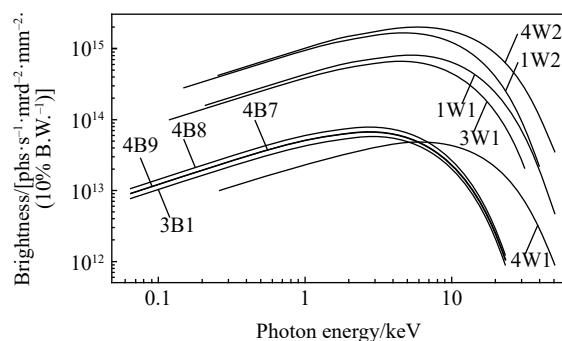


图5 BSRF各光源点的光谱亮度^[4]

Fig. 5 Spectral brightness of source points in BSRF^[4]

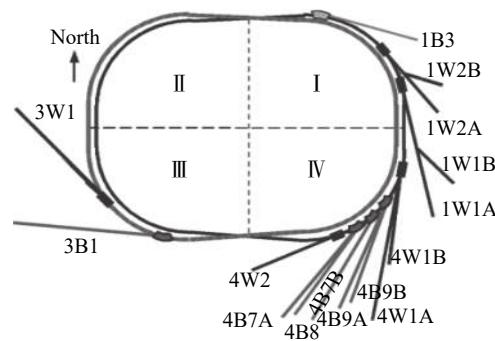


图6 BSRF光束线分布^[1]

Fig. 6 Beamline distribution at BSRF^[1]

2 同步辐射高压衍射技术

同步辐射实验技术的应用大致分为 3 大类: 光谱、散射(衍射)和成像。这些技术大都能与高压实验技术相结合, 用于高压科学研究。目前, 在已有的同步辐射高压研究线站上, 用于高压研究的主要有 XRD、X 射线吸收(XAS)、X 射线发光(XES)、非弹性散射(IXS)、X 射线成像等。XRD 是同步辐射光源上应用最多的技术, 也是最容易与高压技术相结合的实验技术。在早期同步辐射光源上开展的高压研究基本上都是利用高压衍射技术, 至今仍是同步辐射高压研究的主要手段。本文主要介绍该技术的发展和应用。

2.1 高压衍射

XRD 可以直接测量晶胞不同指数(hkl)晶面的间距(d), 原理基于布拉格方程

$$\lambda = 2d \sin \theta \quad (1)$$

式中: λ 为入射光波长, d 为晶面间距, θ 为衍射角。用能量表示则为

$$Ed = 6.1993 / \sin \theta \quad (2)$$

式中: E 为光子能量。高压衍射方法在原理上与常规 X 射线衍射没有太多区别, 不同的是在衍射几何上受到高压装置的诸多限制, 在衍射光路的设计上需要采取一些特殊的措施。实验室使用的传统商业多圆衍射仪很难用于同步辐射高压衍射实验, 同步辐射装置上的高压衍射系统需要自行设计和搭建。X 射线衍射的入射光斑尺寸要与 DAC 中微米量级的样品大小相匹配, 这一般由光束线的微束聚焦系统提供。由于 DAC 样品很小, 与常规样品相比, 衍射信号很弱, 因此, 采取有效措施消除 DAC 背底信号和屏蔽实验环境中的杂散光是十分必要的。

由布拉格方程可知, 入射光能量越高, 衍射角范围越宽, 获得的衍射线条也越多。在高压衍射中常用的对称型 DAC 的 2θ 角通常为 30° , 在光子能量为 30 keV 时, 获得衍射线条的最小晶面间距约为 0.8 \AA 。通过提高光子能量可以获得更多的衍射线条, 但分辨率会有所降低, 实验中可根据需要权衡两者作出最佳的选择。

2.2 能量色散和角度色散衍射

根据布拉格方程, 衍射可以采取两种模式, 即能量色散衍射(Energy dispersive X-ray diffraction, EDXD)和角度色散衍射(Angle dispersive X-ray diffraction, ADXD)。

EDXD 的入射光是连续的 X 射线谱(俗称白光或多色光), 衍射角固定在给定的位置, 此时对于不同的晶面间距 d , 凡是能量满足布拉格方程的入射线都会产生衍射。在与入射光成 2θ 角的方向上放置一个可分辨光子能量的探测器, 便可同时获取不同晶面的衍射线。由多色光产生的衍射信号由固体探测器(SSD)收集, 输出相对强度对应光子能量分布的一维衍射图谱。图 7 为高压 EDXD 原理示意图。

ADXD 模式的入射光是单色光, 固定在一个特定能量范围。由同步辐射光源引出的多色 X 射线, 经单色器分光后输出波长为 λ 的单色光, 经过聚焦后照射样品。出射的衍射线形成一个空间分布的图像, 不同晶面(hkl)产生的衍射线对应不同的衍射角。衍射线由具有空间分辨的二维探测器接收, 如 IP、CCD、PAD 等, 得到一个以衍射角 2θ 空间分布的衍射图像。图 8 所示为高压 ADXD 原理图, 图中二维衍射图像由 MAR-345 成像板探测器获得, 由于 DAC 采用槽型出光口, 获得的图像不是完整的衍射环。经过专用的图像处理软件, 可以将二维图像转化成以衍射角 θ 或晶面间距 d 为横坐标、衍射强度 I 为纵坐标的一维谱图。

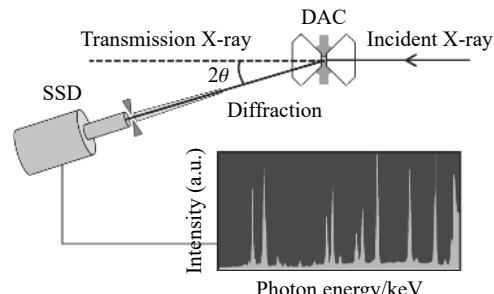


图 7 EDXD 原理示意图

Fig. 7 Schematic of high pressure EDXD

基于 DAC 技术的高压衍射研究, 针对不同的实验目标, 可以选取 EDXD 或 ADXD。EDXD 方法在探测光路上, 通过准直孔可以对衍射信号进行空间约束, 获取 DAC 样品腔中有效区域的衍射信号, 这可以屏蔽样品环境产生的背底信号, 尤其适应于衍射因子较低的样品以及径向衍射实验等。EDXD 的最大缺点是能量分辨率低, 由于固体探测器的本征分辨能力使得 EDXD 方法的系统分辨率很难达到 10^{-3} 量级, 因而引起较大的测量误差^[8]。另外, 不可避免的荧光峰和逃逸峰也会对衍射信号造成干扰。

ADXD 采用单色的 X 射线, 系统分辨主要取决于单色器的能量分辨、探测器的像素大小以及入射光的角色散。在高压衍射的能量范围采用双晶单色器时一般能达到 10^{-4} 量级的分辨率。目前光源上普遍使用的高压衍射系统, 分辨率都能达到 10^{-3} 量级, 与 EDXD 相比, 测量精度得到很大提高。近年来, 随着探测器的发展, PAD 探测器不仅提高了采集速率, 探测器本征的零背底性能也使衍射信号的信噪比获得很大改善。在 DAC 高压衍射发展的初期, 同步辐射光源上的高压衍射系统多为 EDXD 方法, 随着光源性能的提高和二维探测器的发展, 近年来国际上用于 DAC 高压研究的 XRD 系统逐渐由 ADXD 取代了 EDXD。然而, 在一些特殊的高压研究中, 如非晶、液体和低 Z 材料等弱散射样品, EDXD 仍然有优势。

2.3 粉末衍射和单晶衍射

高压研究涉及到不同形态的样品, 如单晶、多晶、非晶和液体等。针对不同的样品形态, 也发展了不同的衍射方法, 包括粉末衍射、单晶衍射、非晶衍射、多晶衍射等。粉末衍射是高压研究中最常用的方法, 适用于除单晶外的任何形态样品, 前面所述的 EDXD 和 ADXD 可以直接用于测量粉末样品。对于单晶样品, 上述两种模式的衍射也都适用, 但需要样品作相应的转动。图 9 为采用两种衍射模式的单晶衍射几何示意图: 图 9(a) 为 EDXD 方法, 图 9(b) 为 ADXD 方法。

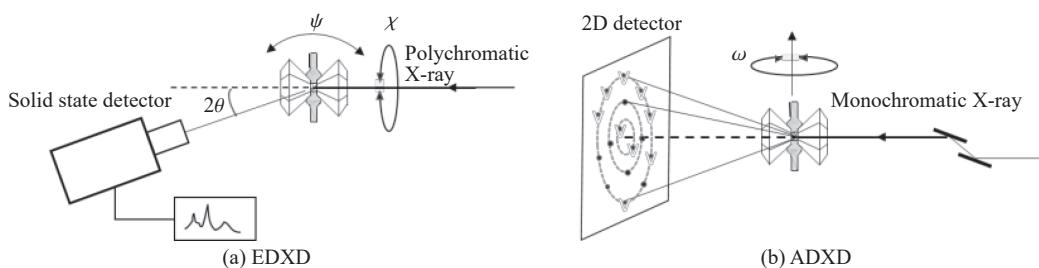


图 9 高压单晶衍射原理示意图

Fig. 9 Schematic of single crystal XRD

另外, 也可以用劳厄法进行高压单晶衍射。劳厄法是最古老的单晶衍射技术, 它提供了最简单的实验过程。劳厄法采用多色光和二维探测器, 不需要旋转样品, 所有来自 DAC 通道的衍射斑点被同时收集。但劳厄法获得的高压衍射图像解析比较困难, 目前在同步辐射高压线站上很少使用。

粉末衍射在同步辐射光源上已广泛用于样品的压致结构相变、状态方程、熔化曲线等研究, 采用 DAC 可以达到百吉帕级超高压力。但粉末衍射存在分辨率低、衍射峰重叠、择优取向等问题, 很难得到完整的结构信息, 对于一些相对复杂的未知高压相很难测定其结构。单晶 XRD 可以测量三维数据, 不存在衍射峰重叠或择优取向问题, 相比于粉末衍射可以提供更精确的结构信息。单晶衍射可以测量不同指数(hkl)晶面产生布拉格反射的相对强度, 可以进行结构精修, 准确地确定空间群、原子坐标以及原子占位等信息。用最大熵法对单晶数据作进一步处理, 还可以得到电荷密度分布信息^[9]。与粉末

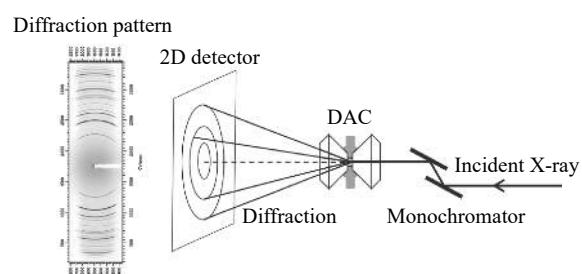


图 8 高压 ADXD 原理示意图

Fig. 8 Schematic of high pressure ADXD

衍射相比,单晶衍射对于解析非常复杂的晶体结构有很多优势,但单晶样品在较高的压力下经常会被压碎,这也是制约高压单晶衍射实验很难达到百吉帕压力以上的瓶颈。

2.4 多晶衍射 (Multiple grain XRD)

单晶衍射可获得完整的晶体学信息,但制备适于 DAC 实验的单晶样品且在 100 GPa 压力以上还能保持微米大小的单晶颗粒不是一件容易的事。而且在很多情况下,许多样品主要以非同性微结构的多晶形式存在,如单晶在高压下发生一级相变后的状态,在 DAC 中经过激光加热后的样品等。近年来,随着同步辐射 X 射线微束技术的发展,聚焦光斑可以小到微米甚至纳米量级,这样传统的多晶样品可作为多个单晶颗粒处理。因此,一种有别于粉末和单晶衍射的新型衍射技术得以发展,即多晶衍射。

多晶晶体学的概念最早在 2000 年初提出^[10],此方法是把多晶样品作为单个晶粒的集合,将其中单个晶体的贡献分离出来,作为基本的单晶数据来处理。随着实验方法和数据处理不断优化,使得由数十个甚至数百个微小晶体组成的多晶样品衍射成为可能,获得的结构精修质量可与单晶衍射媲美^[11]。对于一些结构简单的材料,可以同时采集上千个单晶的衍射信号,与单晶衍射相比可以获得更高的数据完整性和冗余度。

高压下的多晶衍射技术是在使用单色光的单晶衍射基础上发展起来的,即将装入样品的 DAC 置于旋转轴垂直于入射光方向的旋转平台上,利用二维探测器采集衍射数据。图 10 是 APS 高压线站 (HPCAT) 搭建的多晶衍射系统示意图,以及采集到的典型多晶衍射谱^[12]。多晶衍射数据的处理方法也是基于单晶方法发展而来的,从取向不同的多套晶粒衍射数据中分离出一套单晶衍射数据,用单晶的方法去处理。一个成功的多晶衍射实验,可以提取数十套较好的单晶数据,并获得能够与单晶数据媲美的结构精修结果。进一步利用最大熵法计算,同样可以得到电荷密度分布信息^[13]。

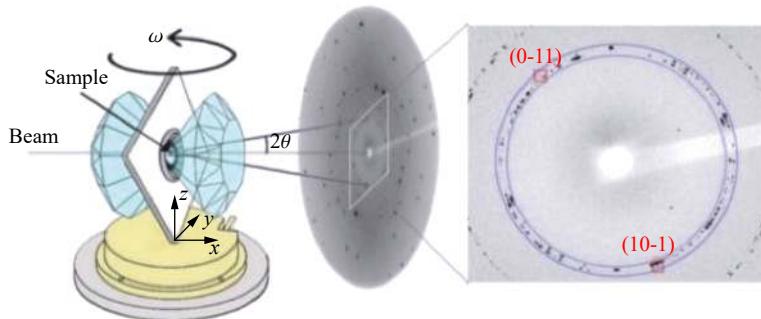


图 10 高压多晶衍射实验方法和典型的多晶衍射谱^[12]

Fig. 10 Multigrain XRD method in the DAC and typical spotty diffraction pattern^[12]

目前,多晶衍射还处于发展阶段,只有较少同步辐射高压线站使用该技术。除了实验上的困难,主要挑战仍是数据分析中的算法和计算的复杂性,有待进一步完善。虽然如此,高压多晶衍射在一些研究中的初步应用已经证实其用于高压研究的潜力,且在某些方面较单晶衍射具有一定的优势。Li 等^[13]利用激光加温和外加温 DAC 技术分别合成了单晶和多晶的 β -Ge,并通过高压单晶和多晶衍射实验探测了 β -Ge 在升/降压过程中的结构变化以及电子密度分布变化。对比两种方法测得结果表明,由于多晶衍射数据具有更高的冗余度和完整性,其得到的电子密度分布具有比单晶更加“光滑”的特征。

2.5 径向衍射 (RXD)

DAC 是一种单轴应力装置,沿加载轴方向应力最大,垂直于加载轴方向的应力最小,如图 11 所示。最大应力 σ_3 和最小应力 σ_1 之间存在应力差,称为单轴应力成分

$$t = \sigma_3 - \sigma_1 \quad (3)$$

而静水压应力成分

$$\sigma_p = (\sigma_3 + 2\sigma_1)/3 = \sigma_1 + t/3 \quad (4)$$

在常规 DAC 衍射实验中, X 射线沿 DAC 的加载轴方向入射到样品上, 衍射光束从 DAC 下游的通光口出射, 通常称为轴向衍射或平行衍射, 如图 12 所示。在这种情况下, 样品沿 X 射线方向的应力最大, 在垂直于 X 射线方向时应力最小, X 射线衍射测量被限制在最小应变方向附近, 观测到的晶格应变总是偏小。为了获得精确的状态方程和晶体结构数据, 通常采用传压介质, 使压腔内部的差应力越小越好, 但随着压力升高, 要维持绝对的静水压是非常困难的, 因此差应力一直是 DAC 实验中令人伤脑筋的问题。20世纪70年代, Kinsland 等^[14]首次从侧向引入 X 射线进行衍射实验, 发现差应力不是一个必须消除的因素, 而且其对研究物质在高压下的力学性质非常有用。之后, Singh 等^[15-16]提出了线性应变理论, 在此基础上发展了非静水压力条件下的 RXD 技术。

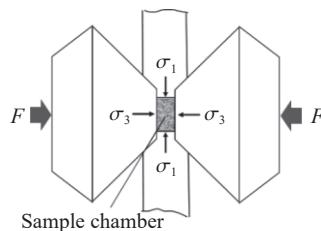


图 11 DAC 样品在单轴加载下的应力状态

Fig. 11 Stress state of the sample in the DAC under uniaxial loading

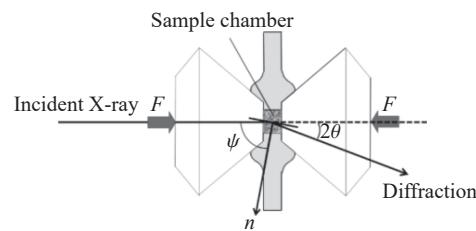


图 12 DAC 轴向 X 射线衍射示意图

Fig. 12 Schematic geometry of conventional XRD

与轴向衍射不同, 径向衍射的入射 X 射线从 DAC 的侧面引入, 与加压轴垂直或有一个角偏离。图 13 为采用能量色散方法的 RXD 光路。由图 13 可知, 在以透射光束与衍射光束之间夹角的平分线(虚线)为轴旋转 DAC 时, 可以改变加压轴与衍射面法线的夹角 ψ 。在 $0^\circ \sim 90^\circ$ 之间获取不同 ψ 角的衍射信号, 可得到样品在单轴加载下的应力和应变信息。根据晶格应变理论, 对给定的晶面指数 (hkl) , 不同 ψ 角测得的晶格应变存在偏差

$$\varepsilon_\psi(hkl) = [d_\psi(hkl) - d_p(hkl)]/d_p(hkl) \quad (5)$$

式中: $d_\psi(hkl)$ 为在 ψ 角处测得的晶面间距, 与 $(1 - 3\cos^2\psi)$ 呈线性变化关系

$$d_\psi(hkl) = d_p(hkl)[1 + (1 - 3\cos^2\psi)Q(hkl)] \quad (6)$$

式中: $d_p(hkl)$ 为静水压应力成分 σ_p 下的晶面间距, 斜率 $Q(hkl)$ 为包含单轴应力分量 t 和单晶弹性顺度的因子。由式(6)可知: 在最大应力方向 ($\psi = 0^\circ$) 测得的 d_ψ 最小; 在最小应力方向 ($\psi = 90^\circ$) 测得的 d_ψ 最大; 在 $\psi = 54.7^\circ$ 时, 测得静水压应力成分下的晶面间距 d_p 。

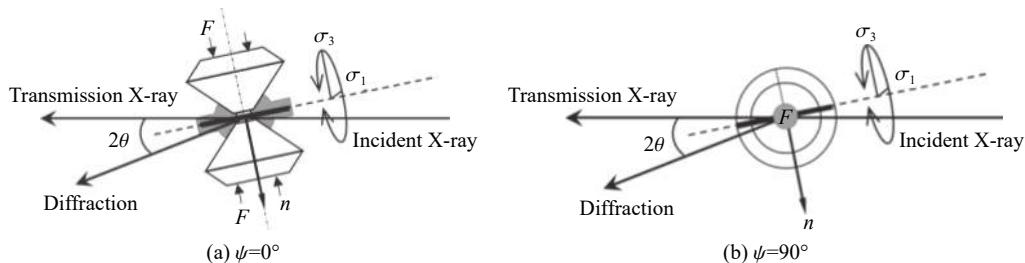


图 13 采用 EDXD 模式的 DAC 径向衍射几何示意图

Fig. 13 Schematic geometry of DAC radial diffraction using EDXD technique

RXD 也可以采用角色散模式, 如图 14 所示。角色散的 RXD 一般采用大开角全景 DAC, 加压轴与入射 X 射线垂直或偏转一个小角度。在采用角色散模式进行 RXD 时, 由于面探测器获取的二维衍射图像已经含有 ψ 角的成分, 因此 DAC 不需要旋转, 实验相对简单。根据图 14 中的衍射几何, 每个衍射面对应的 ψ 角可以通过衍射角 θ 和衍射线的方位 δ 计算^[17]

$$\cos\psi = \cos\theta\cos\delta \quad (7)$$

图14中,设置入射光与加载轴平面上 $\delta = 0^\circ$,垂直于入射光与加载轴平面上 $\delta = 90^\circ$ 。由式(7)可知 $\theta \leq \psi \leq 90^\circ$ 。

RXD提供了DAC中样品的应力和应变信息,结合晶格应变理论,可用于研究物质的弹性、流变和织构等^[18-19]。不同 ψ 角测量得到的晶面间距 $d_\psi(hkl)$,根据式(6)进行线性拟合可以得到斜率 $Q(hkl)$ 。对于弹性各向同性的材料, $Q(hkl)$ 为常数;而对于弹性各向异性的材料, $Q(hkl)$ 则随 (hkl) 变化。由此可以测定材料的弹性各向异性性质。此外,不同角度测得衍射的相对强度揭示了多晶样品的择优取向,这些数据的反极图可以用来测定样品的变形和滑移机制^[20]。由式(6)可知,在 $\psi=54.7^\circ$ 时, $d_\psi(hkl) = d_p(hkl)$ 。因此在非静水压条件下,通过RXD可以得到静水压的状态方程^[21-22],而相对于静水压实验则可以获得更高的压力。

3 BSRF高压衍射线站

1993年,在BSRF搭建了国内第一套简易的DAC高压衍射设备^[23],有限的机时需要实验设备进行临时搭建和拆除。1996年在3W1A光束线上建立了可分时共享的高压衍射实验站,辐射光由5周期的扭摆磁铁引出^[24-30]。实验站发展了外加温DAC以及步进电机控制的加载装置,并建立了四刀光阑扫描系统,实现了调光定位的自动化控制。在3W1A光束线上,将K-B聚光镜用于入射光的聚焦,获得了国内第一个微束聚焦结果。实验站以EDXD模式向用户开放,并获得了国内第一个百吉帕压力下的同步辐射高压衍射数据^[31-32]。高压研究专用的光束线和实验站建立于2000年初,由当时BEPC亮度最高的发光部件4W2提供同步辐射光。实验站以EDXD为基础,并逐步发展了ADXO、激光加温衍射、单晶衍射、RXD、快速加载衍射等实验技术,在BEPC同步辐射专用运行模式下进行高压实验^[8,33-34]。图15为目前4W2高压线站主要系统的构成,其中采用ADXO模式。

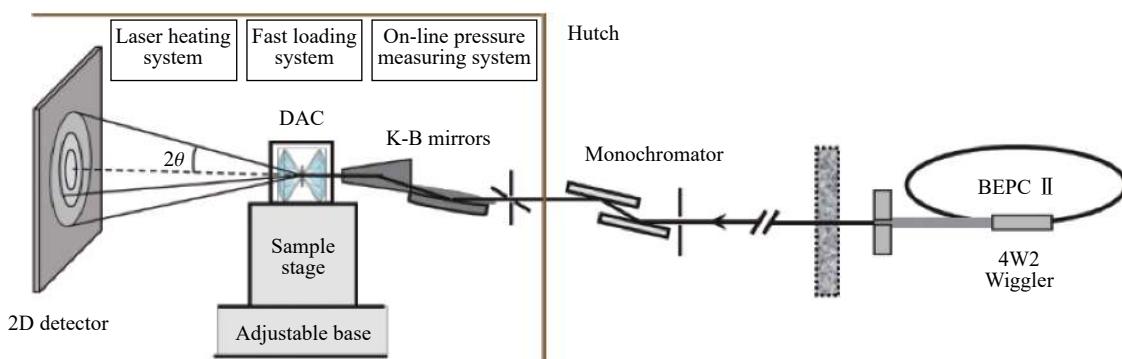


图15 4W2高压线站主要系统构成

Fig. 15 Schematic layout of 4W2 beamline and station components

3.1 4W2高压线站光源

BEPC II储存环通过永磁扭摆磁铁4W2为高压实验站提供同步辐射光源,4W2为真空盒内的插入件,共有11个周期,周期长度为14.8 cm^[34]。磁极间隙可在12~120 mm范围内变化,在间隙为18 mm时的峰值磁场约为1.5 T。4W2光束线从扭摆磁铁中心线引出,在BEPC II工作能量为2.5 GeV、4W2磁极间隙为18 mm时,所提供的同步辐射光谱的特征能量约为7.5 keV。在存储环流强为250 mA时,提供的光通量在光子能量为20 keV处约为 $10^{14} \text{ phs}/[\text{s}^{-1} \cdot (0.1\% \text{B.W.})^{-1}]$ 。图16为4W2扭摆磁铁中心点的光谱分布。

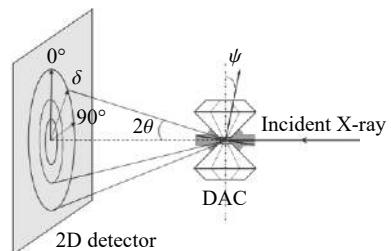


图14 角散射向衍射几何示意图

Fig. 14 Schematic geometry of DAC radial diffraction using ADXD technique

由于 BEPC II 为第一代光源, 自然发射度在 $100 \text{ nm} \cdot \text{rad}$ 量级, 所以光源尺寸相对较大。在 BEPC II 的 4W2 光源引出中心点, 电子束团的水平尺寸为 $\sigma_x = 1.03 \text{ mm}$, $\sigma_y = 0.124 \text{ mm}$, $\sigma'_x = 0.332 \text{ mrad}$, $\sigma'_y = 0.060 \text{ mrad}$ 。如此大的光源参数使光束线的聚焦性能受到了很大限制。

3.2 4W2 高压线站光束线

4W2 光束线是 BSRF 上光功率密度最高的光束线, 为了减少束线末端光学元件及铍窗的热负荷, 光束经过多级限光孔和吸收元件衰减。束线主要光学元件为单色器和 K-B 聚焦镜。图 17 为 4W2 束线光路。

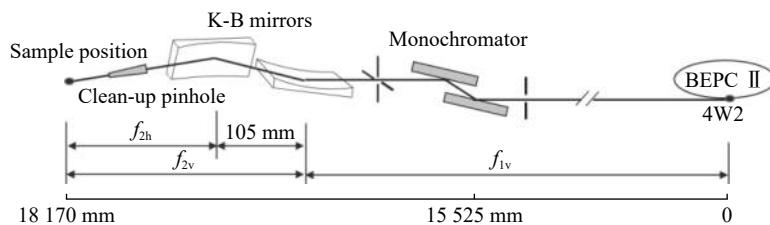


图 17 4W2 光束线的光路图
Fig. 17 Schematic layout of 4W2 beamline optics

同步辐射光源已经发展了多种微束聚焦技术, 包括菲涅尔波带片 (Zone plate)、Kirkpatrick-Baez (K-B) 聚焦镜、多层膜劳厄透镜 (MLL) 和复合折射率透镜 (CRL) 等, 聚焦光斑可以小到纳米量级。K-B 聚焦镜是将两个椭圆柱面镜一前一后相互垂直排列在光束线中, 分别进行水平和垂直方向聚焦。在掠入射模式下, 通过的光子能量可达几万电子伏, 而且具有较高的传输效率, 因此非常适于高压 X 射线衍射束线。4W2 光束线采用两个 100 mm 长的镀铑或铂的平面镜按照 K-B 模式排列, 椭圆柱面通过机械压弯结构获得。与磨削加工的固定曲面镜相比, 压弯技术可以获得更好的面形, 且镜子的位置和曲率可以调整。由于 4W2 光源尺寸在水平方向比垂直方向大很多, 所以水平聚焦镜放在下游, 以获得较大的物像比。

K-B 聚焦系统采用反射几何, 聚焦光斑的大小半峰宽 (FWHM, Δh) 与光源的尺寸 σ_s 、物距 f_1 、像距 f_2 以及镜子的面形有关

$$\Delta h = 2.35 D \sigma_s f_2 / f_1 \quad (8)$$

式中: D 为偏离因子^[35]

$$D = \sqrt{\left(\frac{2\sigma_T}{s'}\right)^2 + 1} \quad (9)$$

式中: $s' = \sigma_s / f_1$, σ_T 为镜子的面形误差。由式(9)可知, 当 σ_T 与 s' 之比为 1/10 时, D 接近于 1, 则聚焦效果接近理想状态, 光斑大小主要取决于缩放 f_2/f_1 。受 BSRF 空间限制, 4W2 光束线较短, 从光源点中心至样品位置只有约 18 m, 故 s' 很大, 如果 σ_T 在几个微弧度以内, 则 D 可以接近 1。 σ_T 由两方面因素决定: 一是镜子形状引起的偏差, 二是平面镜面形的加工误差。通常前者的贡献很小, σ_T 的主要受镜子的加工精度影响, 目前的技术是可以很好控制的。

采用压弯曲率的 K-B 聚焦镜, 可根据实验需求调整镜子的位置, 主要用于常规 DAC 高压衍射、激光加温 DAC 衍射和天然矿物的微衍射。通常情况下, 常规 DAC 高压衍射中, 水平和垂直焦距分别为 130 和 235 mm, 相应的物像比为 139 : 1 和 76 : 1。在激光加温 DAC 衍射情况下, 水平和垂直焦距分别

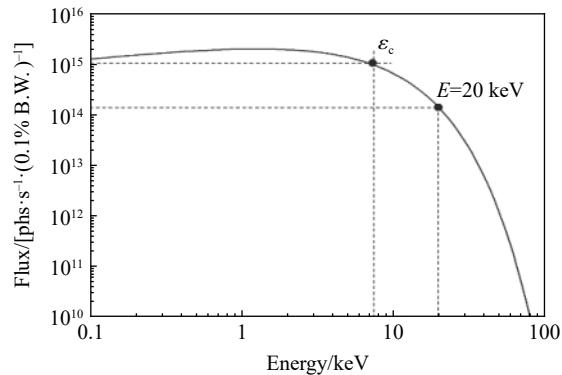


图 16 4W2 扭摆磁铁的光谱分布
Fig. 16 Spectral distribution of 4W2 Wiggler

为 180 和 285 mm, 相应的物像比为 100 : 1 和 63 : 1。在 BEPC 运行初期, 4W2 光源大小为 $\sigma_x = 1.024 \text{ mm}$, $\sigma_y = 0.264 \text{ mm}$, 在不考虑镜子面形误差的理想情况下, 相应的理论计算 FWHM 为 $17.3 \mu\text{m}(\text{H}) \times 8.2 \mu\text{m}(\text{V})$ (常规衍射) 和 $24.1 \mu\text{m}(\text{H}) \times 9.8 \mu\text{m}(\text{V})$ (激光加温衍射)。实际聚焦光斑与 K-B 镜的面形误差和压弯调整的优化程度有关, 往往大于理论计算值。图 18 例举了实验中获得的微束聚焦结果, 水平和垂直焦距分别为 140 mm 和 245 mm。在适于天然矿物的微衍射实验中, 聚焦系统可以更加靠近样品获得更小的光斑。聚焦后的高斯分布光束通过限光针孔裁剪, 以避免边缘光束打到封垫上造成大的衍射背底。

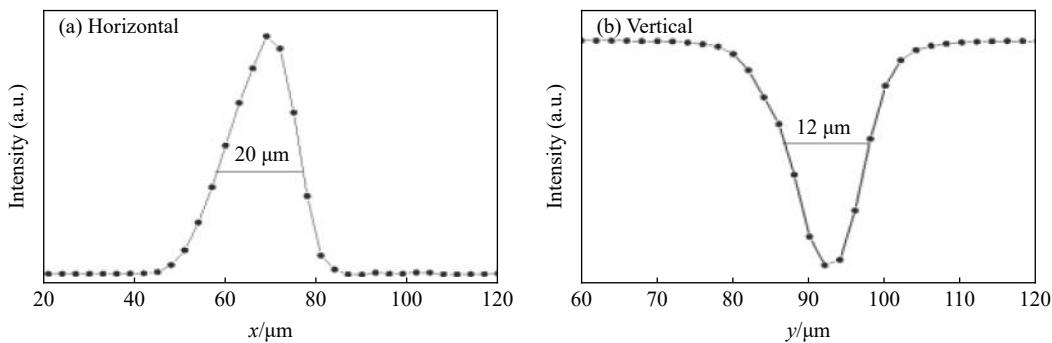


图 18 K-B 微束聚焦光斑扫描结果

Fig. 18 Micro-focusing profile of 4W2 wiggler beam

在单色光模式下, 4W2 采用水冷的 Si (111) 双晶单色器进行分光, 能量调节范围为 10~25 keV, 能量分辨率为 1.8×10^{-4} ^[1]。采用表面镀铂的 K-B 镜时, 在 20 keV 时掠入射角选取 2.5 mrad, 相应接收角约为 10 μrad。此时在储存环流强为 200 mA 时, 样品处提供的光通量约为 10^9 phs/s ^[36]。在采用白光时, 调整 K-B 镜的掠入射角, 使更高能量的光子通过, 能量上限一般选取 35~40 keV。

受第一代光源条件的限制以及光束线空间位置的约束, 4W2 线站很难提供更高的光强和更小的光斑, 即使这样, 进行百吉帕压力下的衍射测量是没有问题的^[37-38]。

3.3 4W2 高压线站高压衍射

4W2 线站具备 EDXD 和 ADXD 两种衍射模式的能力, 目前主要采用后一种模式。有关 EDXD 方法以及实验细节在文献 [33-34] 中已有详细介绍, 本文不再赘述。

根据 4W2 的光谱分布, 高压 ADXD 实验选择 20 keV 作为入射单色光的能量。实验前将单色器晶体转到相应位置, 然后用 Zr 和 Mo 的吸收边对能量进行标定。入射光与样品的准直精度要求在微米量级, 在水平和垂直方向通过遥控的二维扫描系统完成, 通常采用特殊处理的刀口对光束进行扫描。样品在沿光路方向应在 K-B 焦点位置, 通过扫描旋转中心确定。衍射光由面探测器接收, 探测器在沿光轴方向可以移动, 以改变探测器与样品间的距离, 适应不同开角的 DAC 和不同测量精度的要求。在探测器与样品间的距离确定后, 采集标准样品如 CeO₂ 的衍射谱, 用其晶面间距以及入射光的能量对距离进行标定。一旦以上准直和标定完成后, 单色器、样品和探测器的位置不允许再作改变, 否则需要重新进行准直和标定。

图 19 为 BSRF 高压站 ADXD 系统的实物照片。目前实验站有两种面探测器: MAR-345 成像板探测器(IP)和 Pilatus3-2M 像素阵列探测器(PAD)。一般情况下, 粉末衍射采用 PAD, 单晶衍射和 RXD 采用 IP。MAR-345 的接收面直径为 345 mm, 像素大小为 100 μm。Pilatus3-2M 的接收面为 253.3 mm × 288.8 mm, 像素大小为 170 μm。另外, Pilatus 具有快速读出功能, 可做时间分辨的高压衍射测量。

晶胞参数的测量精度取决于 ADXD 系统的分辨能力, 其偏差主要来自入射单色光的能量带宽、入射光的发散角以及探测器的空间分辨

$$\frac{\Delta d}{d} = \sqrt{\left(\frac{\delta d}{d}\right)_{\text{monochromator}}^2 + \left(\frac{\delta d}{d}\right)_{\text{divergence}}^2 + \left(\frac{\delta d}{d}\right)_{\text{detector}}^2} \quad (10)$$

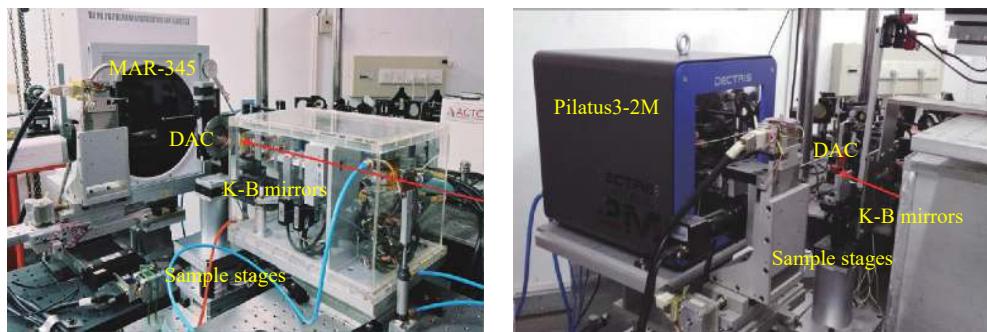


图 19 4W2 高压线站衍射系统照片

Fig. 19 Photographs of high pressure diffraction apparatus with interchangeable detectors

采用 Si(111) 双晶单色器时, 在 10~30 keV 范围内能量分辨率很容易达到 10^{-4} 量级, 相对于后两项, 其对测量误差的贡献很小。探测器的空间分辨取决于探测器的像素以及探测器与样品间的距离。4W2 在常规高压衍射模式下, 聚焦光束在水平和垂直方向的角发散约为 1.4 和 0.8 mrad。在探测器位置可接收 DAC 开角 60° 的情况下, 采用 MAR-345 和 Pilatus3-2M 时, 在衍射高角的测量误差 $\Delta d/d$ 约为 3.0×10^{-3} 。如有需要, 可以后移探测器以提高系统的分辨能力, 但同时也会缩小衍射角的范围, 丢失高角部分的衍射线条。从计算结果看, 聚焦光斑的发散是影响晶胞参数测量精度的主要因素。可以通过改变聚焦条件减小发散角, 但聚焦光斑大小会受到一定的影响。当然, 对于 DAC 实验, 压力梯度引起的衍射峰展宽也是不容忽视的。

相对于 EDXD, ADXD 可以获得更高质量的衍射数据。但在 ADXD 系统中, 衍射光路不容易进行信号约束, 因此实验环境的杂散光会作为背底被探测器接收。面探测器获得的二维衍射图像可以通过 Fit2D 软件转换为衍射光强相对于衍射角的一维谱线, 再利用晶体学分析软件作后继处理。有关 EDXD 和 ADXD 实验数据的处理可参考文献 [33], 这里不再作详细介绍。

3.4 4W2 高压线站单晶衍射

如前所述, 高压单晶衍射可以采用 EDXD 方法, 也可以采用 ADXD 方法。单晶 ADXD 的光路设置与粉末 ADXD 完全相同, 只是实验中需要将样品在水平方向转动, 如图 9(b) 所示。原理上, 4W2 配备的两种面探测器都可用于单色光的单晶衍射。数据阵列探测器 Pilatus3 虽然数据采集快、本征背底低, 但模块拼接产生的缝隙对获取完整的单晶衍射斑点非常不利, 因此单晶衍射通常选用成像板 MAR-345 探测器。另外, 相比之下, MAR-345 的空间分辨也要好一些。

为了获得准确的强度信息, 单晶衍射中很重要的一点是在整个数据采集过程中, 样品的受光体积以及对光的吸收保持不变。理想的单晶样品形状应为球形, 但在实际中很难获得, DAC 实验中通常选择具有规则形状如长方体、正方体的单晶颗粒。在入射光斑比较小的情况下, 可选用较大的单晶颗粒, 样品转动的过程中保证 X 射线通过的空间都有样品, 根据旋转角度的变化可以计算出样品在不同角度的受光体积和吸收厚度, 在随后的数据处理中用于强度的矫正; 在 X 射线光斑较大的情况下, 可选用较小的单晶颗粒, 样品在转动过程中始终被光束完全覆盖, 保证样品的受光体积不变, 同样吸收厚度可以根据旋转角度计算。在后一种情况下, 通常单晶样品在水平方向的尺寸与水平光斑大小以及样品腔孔径的比例大致为 3:5:10。当转动角度 $\omega=40^\circ$ 时, X 射线仍然可以通过样品腔, 且样品始终被 X 射线所覆盖, 如图 20 所示。

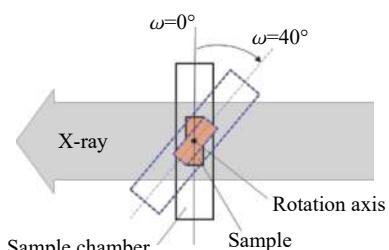


图 20 单晶实验中的 X 射线、样品腔和样品

Fig. 20 X-ray spot, sample and sample chamber in single crystal experiment

4W2 高压站发展了基于 ADXD 的高压单晶衍射技术^[39]。由于 4W2 的光源尺寸较大, 即使采用微束聚焦, 样品处的光斑也很难达到几微米, 因此单晶衍射入射光路采用小样品大光斑的模式。光斑大小一般为 $50 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m}$, 样品在水平方向的尺寸通常在 $20\sim30 \mu\text{m}$, 沿旋转轴方向的尺寸要求不严格。光路设计没有采用 K-B 聚焦, 单色器输出的单色光由四刀光阑截取至与样品匹配的光斑大小, 直接照射样品。这样做虽然损失了一部分光强, 但好处是相比于聚焦光斑, 光通量分布相对均匀, 同时由于直通光具有较小的发散角, 使系统的分辨能力得到提高。再者, 单晶衍射信号很强, 对光强的要求没有粉末样品高。在一些第三代光源上, 高压单晶衍射实验基本都在弯转磁铁光束线上进行。

单晶 XRD 的数据采集分为两个过程。首先是宽区扫描, 在实验确定的 ω 角转动范围内进行连续扫描和曝光, 获得衍射全谱。快速的宽区扫描可以评估单晶样品的初始状态、旋转参数设定的合理性以及探测器的饱和程度等。然后是分步扫描, 在宽区扫描覆盖的转角范围内, 以设定的步长进行分段扫描和曝光, 获得一组衍射数据。这组数据将用于后续的晶体结构分析和处理。在 4W2 单晶衍射实验中, 宽区扫描的角度范围一般在 $-30^\circ\sim30^\circ$ 范围内, 单步扫描的步长设为 2° , 实验过程中可获得 30 张单晶衍射图像。高压单晶衍射是一个复杂的过程, 详细的实验细节可参考文献 [39-40]。

实验站开发了专用于高压单晶 XRD 实验的软件 HPSXD, 包括设定实验参数、选择扫描模式、获取衍射数据以及初步处理数据。利用该软件可直接完成整个实验过程, 并输出可用来作进一步数据分析的 hkl 文件。图 21 为高压单晶 XRD 实验程序界面。针对 DAC 单晶实验中经常出现的单晶样品被压碎成为多个单晶颗粒的情况, 实验站发展了相应的数据处理程序, 可以对包含多个单晶衍射的数据进行指标化处理^[41]。

与常规衍射不同, 高压单晶衍射光路会受到 DAC 的限制。为了获得尽可能多的衍射斑点, 覆盖足够大的倒易空间范围, 所用 DAC 需要有尽量大的衍射张角。实验站用于单晶衍射的 DAC, 在出光端采用了 Bohler-Almax 压砧-支撑结构, 最大张角达 90° (图 22)。金刚石压砧与硬质合金载体的这种镶嵌方式, 有效地增加了衍射角的范围, 但对两颗压砧的平行度有很高的要求。BSRF 设计了专用于单晶衍射的 DAC 压机, 在通用的对称型 DAC 基础上增加了金刚石压砧平行度调整的功能。

3.5 4W2 高压线站径向衍射

在 4W2 高压实验站进行的 RXD 测量采用了 EDXD 和 ADXD 两种模式。图 23 所示是 EDXD 模式的 RXD 实验配置, 光路设置如图 7 所示。加压设备采用对称型 DAC, 封垫采用对 X 射线透过率比较高的材料, 如金属铍或非晶硼等。经过 K-B 聚焦镜聚焦的多色 X 射线从 DAC 侧面进入, 透过封垫从两颗金刚石之间穿过照射样品, 并且入射 X 射线与金刚石砧面成 θ 角。衍射信号由高纯锗固体探测器接收, 衍射角 2θ 通常固定在 18° 左右。

实验中, 在每个压力点, DAC 绕着入射线和衍射线夹角的平分线旋转改变 ψ 角, 变化范围在 $0^\circ\sim90^\circ$ 之间。当 $\psi = 0^\circ$ 时, 测量得到的晶格应变对应最大应力方向; 当 $\psi = 90^\circ$ 时, 晶格应变对应最小应力方向; 其他方位的晶格应变对应于这两个应力轴之间; 当 $\psi = 54.7^\circ$ 时, 对应静水压状态下的晶格应变。在压力变化过程中, 每个压力点都要经过足够时间 (30~40 min) 的应力释放后再采集衍射谱, 以保证应力弛豫可以忽略不计, 数据采集时间一般为 10 min。

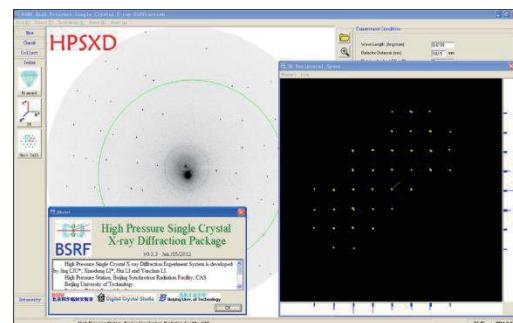


图 21 用于高压单晶 XRD 的 HPSXD 程序界面

Fig. 21 Program interface of HPSXD for high pressure single crystal XRD

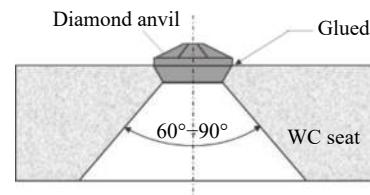
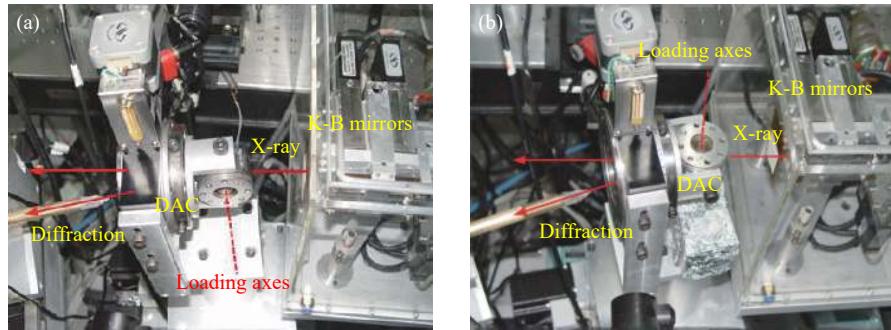


图 22 Bohler-Almax 型压砧和 WC 支撑座的装配

Fig. 22 Bohler-Almax diamond and assembly with WC seat

图 23 4W2 线站 EDXD 模式 DAC 径向衍射系统: (a) $\psi = 0^\circ$, (b) $\psi = 90^\circ$ Fig. 23 Photographs of DAC radial diffraction system using EDXD technique at 4W2 station; (a) $\psi = 0^\circ$, (b) $\psi = 90^\circ$

通过 RXD 测量的不同晶面在最大和最小应力之间的衍射数据, 可以得到材料的弹性系数、屈服强度、应变各向异性和静水压状态方程等。利用 4W2 能量色散径向衍射研究了金属 Os 的强度、弹性模量和压缩性质, 发现 Os 的屈服强度明显大于 Mo、W、Re 等其他硬质纯金属^[42]。利用这项技术还对压标 NaCl 的应力性质进行了研究, 通过测量 NaCl 在相变前后的应变, 发现在 B1→B2 相变点之前差应力比 Ar 大, 而在从 B1 相转变为 B2 相的临界点时, 差应力突然下降到接近零, 差应力出现了塌陷^[43-44]。

角色散径向衍射实验配置如图 24 所示。单色光能量为 20 keV, 经过 K-B 聚焦镜聚焦和准直后进入 DAC。探测器采用 MAR-345 成像板。实验采用全景 DAC, 为了减少 X 射线穿过封垫产生过多的衍射背底, DAC 的初始位置在水平方向偏转角度 α , 计算得出 ψ

$$\cos \psi = \cos \alpha \cos \delta \cos \theta + \sin \alpha \sin \theta \quad (11)$$

式中: θ 为布拉格反射角, δ 为衍射线在探测器接收面上的方位角。在最大应力方向 $\delta = 0^\circ$, 在最小应力方向 $\delta = 90^\circ$ 。由于设备的阻挡, 这种配置不能获得整个衍射环, 但并不影响数据的处理和分析结果。利用角色散径向衍射技术, 在 4W2 光束线上对一些硬质材料的压缩性质、强度和织构进行了研究^[45-47]。

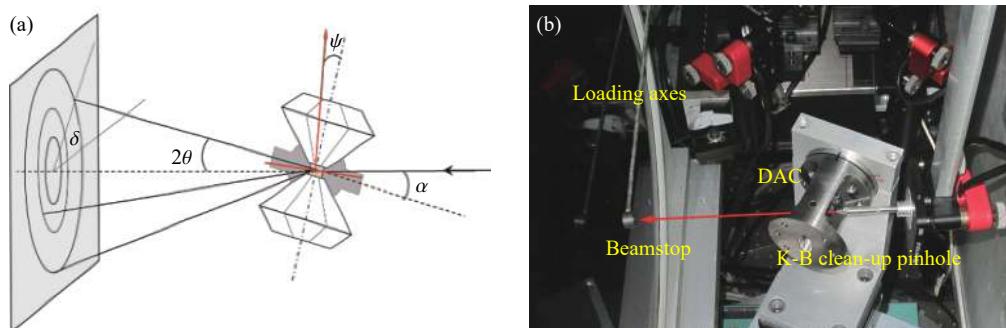


图 24 4W2 线站 DAC 径向衍射系统(ADXD 模式): (a) 衍射几何示意图, (b) 系统实物照片

Fig. 24 Schematic geometry (a) and photographs (b) of DAC radial diffraction system using ADXD technique at 4W2 station

3.6 高压线站激光加温衍射

在 DAC 高温高压研究中, 主要采用电加温和激光加温技术对样品加热, 这两种技术结合可使 DAC 中样品温度从常温扩展到几千摄氏度, 已广泛用于结构相变、温压相图、熔化曲线和 p - V - T 状态方程研究。电加温 DAC 技术比较简单, 在任一高压线站上都可以用于衍射测量。激光加温 DAC 技术相对复杂, 需要专门设计系统并与同步辐射有效结合, 才能进行高温高压原位衍射测量, 目前在大多数专用的高压衍射实验站都已经建立了激光加温技术。在 DAC 中获得准确的高温高压实验数据, 要求激光加温系统能够提供足够高的功率密度、稳定的样品温度、均匀的温度分布(包括径向和轴向)以及精确的温度测量, 并且在原位实验中要始终保持激光、X 射线和样品的精确准直, 而这三者的尺度都在微米量级。Shen 等^[48-49]发展的双面激光加温系统很好地解决了上述问题。

4W2高压线站的激光加温系统采纳了Shen等发展的系统模式^[8,50], 图25所示为系统配置。系统采用双面加温模式, 激光器输出的激光束分为两束, 分别从DAC两端进入样品, 样品受热产生的热辐射也由两路进入测温光谱仪。

激光加温实验可以采用“原位”和“退火”两种方式。退火实验适用于样品高温高压相可以退火保留的结构相变研究, 以及需要通过加温释放样品腔中内应力的实验。对于高温高压相退火后不能保留的材料, 以及p-V-T状态方程和熔化曲线的测量等, 都需要原位激光加温实验。在激光加温原位实验中, 激光光斑要大于X射线光斑, 确保收集到的衍射信号全部来自样品的加温区域。4W2光束线的聚光光斑在水平方向约25 μm, 通常将激光束聚焦到直径约50 μm左右。实验中, 两束激光在样品上的位置要精确准直, 而X射线光束要对准样品的加温区域中心。为了保持温度的稳定, 采用反馈控制调整样品上激光功率的大小。图26是在TiO₂和Mg₂SiO₄的激光加温实验过程中观察到的温度变化, 样品上的温度随时间的波动统计误差小于3%。通过测量金属铂(Pt)熔点的热辐射光谱以及热电偶测温方法检测了系统的测温精度, 结果显示, 采用黑体辐射测温方法, 系统在1 100~2 000 K之间的测温误差小于5%, 而且温度越高, 温度测量的误差越小^[50]。

在同样的加温条件下要获得足够高的样品温度, DAC样品的装填以及样品腔中隔热层材料的选择非常重要。在石墨的高压熔化实验中^[51], 对所测试的18个样品, 分别用了NaCl、MgO和KI作为隔热介质。KI用作隔热材料时, 温度很容易升高, 且不需要很高的激光加温功率; 而MgO作为隔热介质时, 在激光功率达到最大值时, 温度也很难超过2 000 K(在4W2光斑大小条件下), 另外从加温过程观察到的图像看, MgO似与石墨发生了化学反应; NaCl的隔热效果介于两者之间, 但温度很不稳定, 维持的时间很短。在样品压力为2.7 GPa下用KI作为隔热介质的激光加温衍射测量中, 观察到石墨衍射峰消失, 同时通过显微成像系统看到石墨熔化的迹象, 从退火到常温时的样品可以看到典型的熔化后的形貌^[8], 表明实验中样品温度已经超过了石墨在常压下的熔点达到4 000 K以上。石墨的实验证实KI是一种非常好的隔热材料。

在高温高压相可以退火保留的结构相变研究中, 激光加温往往作为一种促进结构相变的手段, 用于温度非原位高温高压衍射研究。在4W2高压线站上, 利用ADX和激光加温退火手段研究了一些ABO₃型稀土化合物和稀土石榴石的高温高压结构相变^[52]。在含钪钆镓石榴石(Gd₃Sc₂Ga₃O₁₂, GSGG)的研究中, 常温高压下立方石榴石结构在约65 GPa时开始非晶化。而激光加温研究发现, 在24 GPa压力下通过激光加温到1 500~2 000 K后, GSGG石榴石从立方结构转变成正交钙钛矿结构, 伴随着约8%的体积减小, 并伴有阳离子Ga³⁺和Sc³⁺的配位数增加。在此实验过程中, 激光加温促进了GSGG石榴石越过非晶态直接转变为钙钛矿结构^[53]。类似的现象在EGG(Eu₃Ga₅O₁₂)和YGG(Y₃Ga₅O₁₂)实验中也出现过。在YGG的兆帕压力实验中, 立方石榴石结构在85 GPa时几乎完全转化成非晶态, 通过对样品进行激光加温退火后, 非晶态转化成正交和立方钙钛矿结构的混合相, 并伴随着近9%的体积减小^[52]。

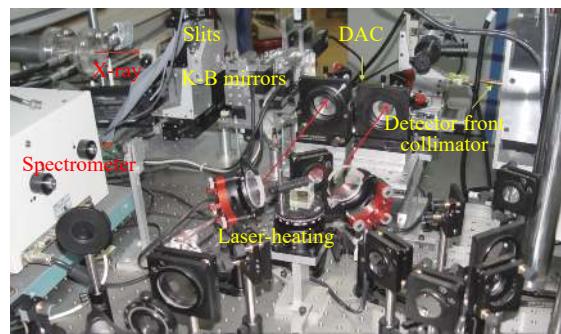


图25 4W2线站用于高压衍射的双面激光加温系统

Fig. 25 Double-sided laser heating system for high pressure diffraction at 4W2 station

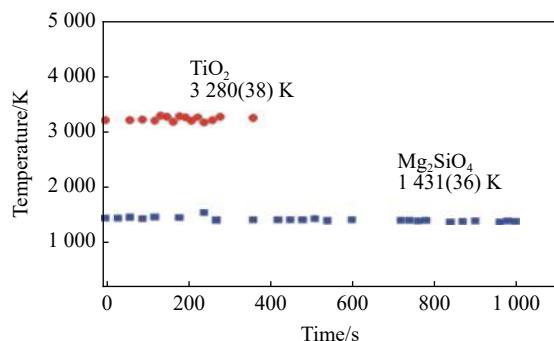


图26 TiO₂和Mg₂SiO₄在激光加温实验过程中温度的变化

Fig. 26 Temperature stabilities of TiO₂ and Mg₂SiO₄ during the laser heating experiment

3.7 高压线站快速加载衍射

近年来,与时间相关的高压研究受到越来越多的关注。已有实验证明,高压相变过程不仅与压力大小有关,而且还受到压力加载速率的影响^[54-57]。在静态加载 DAC 基础上发展起来的快速加载 DAC(dDAC)很容易与时间分辨 XRD 相耦合,开展压力快速变化下的结构相变研究^[58-60]。借鉴已有的 dDAC 结构^[58-59],4W2 高压站设计了 3 种类型的 dDAC,三压电陶瓷促动器(PZT)单向加载、PZT 和气膜双向加载以及双气膜双向加载,分别用于不同的用途^[61-62]。图 27 显示了 3 种类型 dDAC 的结构。后两种配以外加温器,可以在高温下进行快速加载衍射实验。

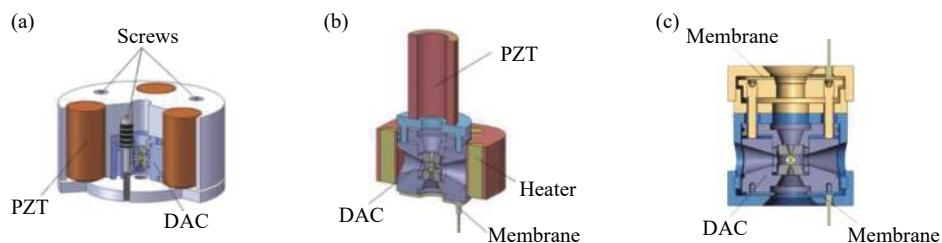


图 27 3 种不同类型 dDAC 结构

Fig. 27 Drawings of the dDAC with three different designs

dDAC 是在传统 DAC 基础上增加了快速驱动功能,驱动部件有压电陶瓷和气膜两种。前者通过控制压电陶瓷驱动电压的快速变化来改变作用在 DAC 上的加载力,后者是通过快速改变气膜内的气压实现压力的快速加载,如图 28(a)所示。压力快速加载下的 XRD 测量,需要精确地控制加载机构驱动信号与探测器门控信号之间的时间延迟和同步。通过设置不同的时间延迟,可以在 dDAC 加/卸载过程中选择感兴趣的位置采集衍射信号,在整个压力变化过程中获取一系列衍射图像。图 28(b)为压力控制和数据采集系统示意图。

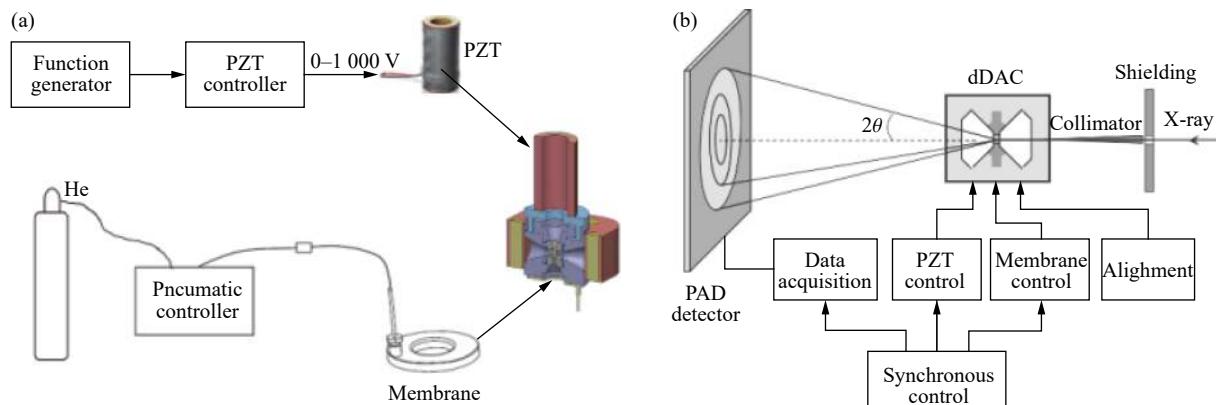


图 28 快速加载驱动及原位衍射测量

Fig. 28 Schematic layout of fast loading control and *in situ* diffraction measurements with dDAC

系统的时间分辨能力主要取决于探测器的响应时间和 X 射线的强度。4W2 配备的 PILATUS3-2M 探测器最小采集周期为 4 ms,但受到 BSRF-4W2 光通量的限制,在实验站获得一张有效衍射谱所需的最短曝光时间接近 100 ms。因此,在实验中通常将探测器的采集周期设为 100 ms,每张谱的曝光时间设为 90 ms。

在 4W2 线站上,对金属铋(Bi)和半导体材料硫化铅(PbS)等进行了快速加载衍射测量。铋的测量压力范围覆盖了从 Bi-I 到 Bi-V 5 个常温高压相变过程,加载速率从 0.2 GPa/s 升至 183.8 GPa/s。分析不同加载速率下的相变过程,发现相变激活能随加载速率的增加而降低,而相变起始压力随加载速率的增加而升高,即出现了依赖于加载速率的“过压”现象^[63]。由于 4W2 光源强度的限制,Bi 的快速加载衍

射实验无法达到更高的加载速率。另外, Bi 的实验证明, 利用时间分辨衍射测量可在较小的压力间隔内获取衍射数据, 探测到很窄压力范围内发生的不容易被观察到的相变。Bi-II 相只在 0.2 GPa 左右压力下存在, 在以往的研究中并不总能被观察到。4W2 上开展的实验曾在 4 s 时间内获得一组铋从 0.2 GPa 到 4.6 GPa 的快速加载衍射数据, 清晰地捕捉到了 Bi-II 相。

近期 4W2 高压线站发展了在线加压和测压系统。在快速加载衍射实验中, 采用双向气膜驱动的 dDAC 进行加压或卸压, 同时使用在线的红宝石测压系统实时监测样品腔内的压力。这两种技术的结合可以远程控制样品的升压和降压, 在实验过程中不用频繁开关实验棚屋的屏蔽门, 不仅给实验带来了方便, 而且能够精确地调控样品的压力。

4 展 望

同步辐射光源是一个面向多学科研究的大型实验平台, 涉及到非常广泛的研究领域, 包括物理、化学、材料科学、地球科学、环境科学、能源科学、生命科学乃至工业领域。BSRF 通过专用和兼用两种运行模式服务用户, 为促进国内多学科研究领域的发展起到了重要的作用。作为国内唯一的高压专用线站, 4W2 自运转以来已有 20 年的历史。用户利用实验站的光源条件和实验设备, 通过 XRD 测量研究了不同物质在高压下的结构相变、状态方程、弹性、织构、熔化等性质, 涉及的材料包括高温超导体、纳米材料、超硬材料、矿物、大块金属玻璃、半导体、叠氮化合物、超分子材料、光功能材料以及软物质等。虽然一些实验获得了很好的结果, 但由于受到光源条件的限制, 很难开展更高水平的实验研究。目前中国科学院高能物理研究所正在建设的高能同步辐射光源(HEPS)极大地提高了辐射光的亮度和稳定性, 将给高压科学的研究带来新的机遇。

HEPS 是一台具有极低发射度的第四代高能同步辐射光源, 设计电子能量为 5~6 GeV, 自然发射度为 $34.2 \text{ pm} \cdot \text{rad}$, 电子束流为 200 mA 时提供的辐射亮度达到 $10^{22} \text{ phs} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{mm}^{-2} \cdot \text{mrad}^{-2} \cdot (0.1\% \text{B.W.})^{-1}$ 以上。高压科学的研究作为新光源重要支持的研究领域之一, 在 HEPS 的一期建设中建有一条专用高压衍射线站, 提供的光子能量可达 50 keV, 样品处的光子数比目前的 4W2 高出 4~5 个量级, X 射线聚焦光斑小到亚微米, 这将大幅提高衍射测量的精度和实验的压力范围。结合压力快速加/卸载以及脉冲激光加温技术, 可在 10 μs 的时间尺度开展高温高压研究。除此之外, 一期建设中的 X 射线吸收谱学线站、硬 X 射线高分辨谱学线站和 X 射线显微成像线站的设计都考虑了高压科学的应用。HEPS 建成后专用线站与兼用线站的结合, 将极大地扩展高压研究的温压范围和研究范畴。

感谢中国科学院高能物理研究所的杨栋亮、林传龙、李晓东对本文写作的仔细阅读以及提出的建议, 感谢林传龙为本文格式编辑所作的辛勤付出, 感谢杨栋亮提供 dDAC 图片。感谢责任编辑对本文的精心润色。对 BSRF 高压站李延春、李晓东、杨栋亮以及学生为 4W2 高压衍射线站建设和运行付出的努力表示谢意。感谢阎永廉帮助调试 K-B 聚焦系统并提出好的调试方案。感谢李晖为高压单晶衍射的发展作出的贡献。感谢 BSRF 工程技术组在 4W2 光束线建造中的合作和支持。特别感谢沈国寅博士在激光加温系统调试以及单晶 XRD 系统搭建中的给予的指导和帮助。

参考文献:

- [1] 阎永廉. 同步辐射光束线 [M]//洗鼎昌. 北京同步辐射装置及其应用. 南宁: 广西科学技术出版社, 2016: 30~75.
- [2] 刘鹏, 黎忠. 同步辐射探测器 [M]//麦振洪. 同步辐射光源及其应用. 北京: 科学出版社, 2013: 153~172.
- [3] WINICK H. Properties of synchrotron radiation [M]//WINICK H, DONIACH S. Synchrotron radiation research. New York: Plenum, 1980: 11~25.
- [4] 徐刚. 同步辐射光源 [M]//洗鼎昌. 北京同步辐射装置及其应用. 南宁: 广西科学技术出版社, 2016: 9~29.

- [5] DING Y, HASKEL D, TSENG Y C, et al. Pressure-induced magnetic transition in manganite ($\text{La}_{0.75}\text{Ca}_{0.25}\text{MnO}_3$) [J]. *Physical Review Letters*, 2009, 102(23): 237201.
- [6] LUO S N, JENSEN B J, HOOKS D E, et al. Gas gun shock experiments with single-pulse x-ray phase contrast imaging and diffraction at the Advanced Photon Source [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2012, 83(7): 073903.
- [7] The dynamic compression sector [EB/OL].[2020-07-21].<https://dcs-aps.wsu.edu/facilities/>.
- [8] 刘景. X射线高压衍射实验站 [M]//冼鼎昌. 北京同步辐射装置及其应用. 南宁: 广西科学技术出版社, 2016: 144–176.
- [9] LI R, LIU J, BAI L G, et al. Pressure-induced changes in the electron density distribution in α -Ge near the α - β transition [J]. *Applied Physics Letters*, 2015, 107(7): 072109.
- [10] VAUGHAN G B M, SCHMIDT S, POULSEN H F. Multicrystal approach to crystal structure solution and refinement [J]. *Zeitschrift für Kristallographie*, 2004, 219(12): 813–825.
- [11] SØRENSEN H O, SCHMIDT S, WRIGHT J P, et al. Multigrain crystallography [J]. *Zeitschrift für Kristallographie*, 2012, 227(1): 63–78.
- [12] 李蕊. 高压单晶及多晶粒衍射实验技术的发展及应用 [D]. 北京: 中国科学院大学, 2015.
- [13] LI R, LIU J, POPOV D, et al. Experimental observations of large changes in electron density distributions in β -Ge [J]. *Physical Review B*, 2019, 100(22): 224106.
- [14] KINSLAND G L, BASSETT W A. Modification of the diamond cell for measuring strain and the strength of materials at pressures up to 300 kilobar [J]. *Review of Scientific Instruments*, 1976, 47(1): 130–133.
- [15] SINGH A K. The lattice strains in a specimen (cubic system) compressed nonhydrostatically in an opposed anvil device [J]. *Journal of Applied Physics*, 1993, 73(9): 4278–4286.
- [16] SINGH A K, BALASINGH C, MAO H K, et al. Analysis of lattice strains measured under non-hydrostatic pressure [J]. *Journal of Applied Physics*, 1998, 83(12): 7567–7575.
- [17] KAVNER A. Elasticity and strength of hydrous ringwoodite at high pressure [J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 2003, 214(3/4): 645–654.
- [18] MAO H K, SHU J F, SHEN G Y, et al. Elasticity and rheology of iron above 220 GPa and the nature of the Earth's inner core [J]. *Nature*, 1998, 396(6713): 741–743.
- [19] WENK H R, ISCHIA G, NISHIYAMA N, et al. Texture development and deformation mechanisms in ringwoodite [J]. *Physics of the Earth and Planetary Interiors*, 2005, 152(3): 191–199.
- [20] MIYAGI L, KANITPANYACHAROEN W, KAERCHER P, et al. Slip systems in MgSiO_3 post-perovskite: implications for D'' anisotropy [J]. *Science*, 2010, 329(5999): 1639–1641.
- [21] DUFFY T S, SHEN G Y, SHU J F, et al. Elasticity, shear strength, and equation of state of molybdenum and gold from x-ray diffraction under nonhydrostatic compression to 24 GPa [J]. *Journal of Applied Physics*, 1999, 86(12): 6729–6735.
- [22] HE D W, SHIEH S R, DUFFY T S. Strength and equation of state of boron suboxide from radial X-ray diffraction in a diamond cell under nonhydrostatic compression [J]. *Physical Review B*, 2004, 70(18): 184121.
- [23] CHE R Z, ZHOU L, ZHAO Y C, et al. Establishment of energy dispersive X-ray diffraction experimental system with synchrotron radiation under high pressure [J]. *Chinese Science Bulletin*, 1994, 39(22): 1877–1881.
- [24] 刘景, 车容钲, 赵菁, 等. 北京同步辐射装置上的高温高压实验系统 [J]. *高压物理学报*, 1997, 11(Suppl): 27.
- [25] JIN X G, ZHANG H Z, CHE R Z, et al. Isothermal equations of state for nanometer and micrometer nickel powders [J]. *AIP Conference Proceedings*, 1998, 429(1): 99–102.
- [26] 赵菁, 刘景, 杨洋, 等. 高压衍射实验中的同步辐射光束的定位 [J]. *高压物理学报*, 1999, 13(4): 283–289.
- ZHAO J, LIU J, YANG Y, et al. A method of locating the light spot of incidence synchrotron radiation in EDXRD experiment under high pressure [J]. *Chinese Journal of High Pressure Physics*, 1999, 13(4): 283–289.
- [27] 刘景, 赵菁, 车容钲, 等. 高压下的同步辐射能量色散粉末衍射 [J]. *高压物理学报*, 2000, 14(4): 247–252.
- LIU J, ZHAO J, CHE R Z, et al. *In situ* energy dispersive diffraction under high pressure using synchrotron radiation [J]. *Chinese Journal of High Pressure Physics*, 2000, 14(4): 247–252.
- [28] LIU J, ZHAO J, CHE R Z, et al. Progress in high pressure EDXD system and research at Beijing Synchrotron Radiation Facility [J]. *Chinese Science Bulletin*, 2000, 45(18): 1659–1662.
- [29] LIU J, CHE R Z, ZHAO J, et al. An experimental apparatus for EDXD of high pressure specimens using synchrotron radiation at BSRF [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and*

- Associated Equipment, 2001, 467/468: 1069–1072.
- [30] LIU J, LI X D, LI Y C. The present status of high-pressure research at Beijing Synchrotron Radiation Facility [J]. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 2002, 14(44): 10505–10509.
- [31] WANG L J, CHEN L C, LI F Y, et al. Studies on CsBr with synchrotron radiation under ultrahigh pressure up to 115 GPa [J]. *Chinese Physics Letters*, 1998, 15(4): 284–286.
- [32] 王莉君, 陈良辰, 李凤英, 等. 超高压下 CsBr 的结构与相变 [J]. *高压物理学报*, 1998, 12(2): 92–96.
- WANG L J, CHEN L C, LI F Y, et al. The structure and phase transition for CsBr under ultra-high pressure [J]. *Chinese Journal of High Pressure Physics*, 1998, 12(2): 92–96.
- [33] 刘景. 同步辐射材料结构分析高压技术 [M]//麦振洪. 同步辐射光源及其应用. 北京: 科学出版社, 2013: 804–836.
- [34] LIU J. High pressure x-ray diffraction techniques with synchrotron radiation [J]. *Chinese Physics B*, 2016, 25(7): 076106.
- [35] ENG P J, NEWVILLE M, RIVERS M L, et al. Dynamically figured Kirkpatrick Baez X-ray microfocusing optics [C]// Proceedings of SPIE3449, X-Ray Microfocusing: Applications and Techniques. San Diego, CA, United States: SPIE, 1998.
- [36] 唐玲云. 压标材料状态方程的交叉验证研究 [D]. 北京: 中国科学院研究生院, 2009.
- [37] TANG L Y, LIU L, LIU J, et al. Equation of state of tantalum up to 133 GPa [J]. *Chinese Physics Letters*, 2010, 27(1): 016402.
- [38] LIN C L, ZHANG Y F, LIU J, et al. Pressure-induced structural change in orthorhombic perovskite GdMnO_3 [J]. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 2012, 24(11): 115402.
- [39] 李晓东, 李晖, 李鹏善. 同步辐射高压单晶衍射实验技术 [J]. *物理学报*, 2017, 66(3): 036203.
- LI X D, LI H, LI P S. High pressure single-crystal synchrotron X-ray diffraction technique [J]. *Acta Physica Sinica*, 2017, 66(3): 036203.
- [40] 李鹏善. 高压单晶衍射与电子非局域化密度研究 [D]. 北京: 中国科学院高能物理研究所, 2017.
- [41] LI H, LI X D, HE M, et al. Indexing of multi-particle diffraction data in a high-pressure single-crystal diffraction experiments [J]. *Journal of Applied Crystallography*, 2013, 46(2): 387–390.
- [42] CHEN H, HE D, LIU J, et al. High-pressure radial X-ray diffraction study of osmium to 58 GPa [J]. *The European Physical Journal B*, 2010, 73(3): 321–326.
- [43] 白利刚. 稀土氧化物的相变与压标的状态方程 [D]. 北京: 中国科学院大学, 2010.
- [44] XIONG L, BAI L G, LI J. Strength and equation of state of NaCl from radial x-ray diffraction [J]. *Journal of Applied Physics*, 2014, 115(3): 033509.
- [45] 熊伦. 径向衍射技术研究材料的状态方程、强度与组织 [D]. 北京: 中国科学院大学, 2014.
- [46] XIONG L, LIU J, BAI L G, et al. Radial x-ray diffraction of tungsten tetraboride to 86 GPa under nonhydrostatic compression [J]. *Journal of Applied Physics*, 2013, 113(3): 033507.
- [47] XIONG L, LIU J, ZHANG X X, et al. Radial X-ray diffraction study of the static strength and equation of state of MoB_2 to 85 GPa [J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2015, 623: 442–446.
- [48] SHEN G Y, MAO H K, HEMLEY R J. Laser-heated diamond anvil cell technique: double-sided heating with multimode Nd: YAG laser [C]//1996 Advanced Materials '96—New Trends in High Pressure Research. Tsukuba, Japan: NIRM, NIRIM, 1996: 149.
- [49] SHEN G Y, RIVERS M L, WANG Y B, et al. Laser heated diamond cell system at the Advanced Photon Source for *in situ* x-ray measurements at high pressure and temperature [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2001, 72(2): 1273–1282.
- [50] 李晓东. 激光加温 DAC 技术及晶体结构相变研究 [D]. 北京: 中国科学院高能物理研究所, 2004.
- [51] 徐济安, 刘景, 肖万生, 等. 石墨在高压下的熔化实验 [R]. 北京: 中国科学院高能物理研究所.
- [52] 林传龙. ABO_3 型稀土化合物及稀土镓石榴石的高温高压结构相变 [D]. 北京: 中国科学院大学, 2013.
- [53] LIN C L, LIU J, LIN J F, et al. Garnet-to-perovskite transition in $\text{Gd}_3\text{Sc}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}$ at high pressure and high temperature [J]. *Inorganic Chemistry*, 2013, 52(1): 431–434.
- [54] LEE G W, EVANS W J, YOO C S. Crystallization of water in a dynamic diamond-anvil cell: evidence for ice VII-like local order in supercompressed water [J]. *Physical Review B*, 2006, 74(13): 134112.
- [55] JIA R, SHAO C G, SU L, et al. Rapid compression induced solidification of bulk amorphous sulfur [J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2007, 40(12): 3763–3766.
- [56] LIN C L, SMITH J S, SINOGEIKIN S V, et al. Kinetics of the B1-B2 phase transition in KCl under rapid compression [J]. *Journal of Applied Physics*, 2016, 119(4): 045902.

- [57] LIN C L, YONG X, TSE J S, et al. Kinetically controlled two-step amorphization and amorphous-amorphous transition in ice [J]. *Physical Review Letters*, 2017, 119(13): 135701.
- [58] EVANS W J, YOO C S, LEE G W, et al. Dynamic diamond anvil cell (dDAC): a novel device for studying the dynamic-pressure properties of materials [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2007, 78(7): 073904.
- [59] SINOGEIKIN S V, SMITH J S, ROD E, et al. Online remote control systems for static and dynamic compression and decompression using diamond anvil cells [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2015, 86(7): 072209.
- [60] SMITH J S, SINOGEIKIN S V, LIN C L, et al. Developments in time-resolved high pressure x-ray diffraction using rapid compression and decompression [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2015, 86(7): 072208.
- [61] CHENG H, ZHANG J R, LI Y C, et al. Convenient dynamic loading device for studying kinetics of phase transitions and metastable phases using symmetric diamond anvil cells [J]. *High Pressure Research*, 2018, 38(1): 32–40.
- [62] 李延春, 杨栋亮. 内部设计报告 [R]. 北京: 中国科学院高能物理研究所
- [63] YANG D L, LIU J, LIN C L, et al. Phase transitions in bismuth under rapid compression [J]. *Chinese Physics B*, 2019, 28(3): 036201.

High Pressure Diffraction Using Synchrotron Radiation

LIU Jing

(Institute of High Energy Physics, CAS, Beijing 100049, China)

Abstract: Synchrotron radiation source can offer wide-spectrum, high-energy, high-brightness, and low-emittance, which has been widely used in high pressure research. Among the X-ray techniques, the X-ray diffraction is one of the most basic and widely used experimental techniques, and is likely to remain the dominant application for high-pressure research in the future. Here the unique properties of synchrotron radiation, the basic composition of the light source, and the concepts of beam lines and experimental stations are briefly introduced. The high-pressure X-ray diffraction based on diamond anvil cells is focused. Various diffraction methods are explained, including powder diffraction, single X-ray diffraction and radial X-ray diffraction, as well as the combination with the laser heating and fast loading techniques. The equipment configuration and the capabilities of the high-pressure beamline at the Beijing Synchrotron Radiation Facility (BSRF) are also described, including the quality of radiation from 4W2 wiggler, X-ray micro-focusing, various diffraction methods and newly developed techniques. At last the opportunities brought by the construction of High Energy Photon Source (HEPS) for high pressure research are prospected.

Keywords: high pressure; X-ray diffraction; synchrotron radiation; diamond anvil cell

CMRR 中子科学平台的高压中子衍射技术及应用

房雷鸣¹, 陈喜平¹, 谢雷¹, 贺端威², 胡启威¹, 李欣², 江明全²,
孙光爱¹, 陈波¹, 彭述明¹, 李昊¹, 韩铁鑫¹

(1. 中国工程物理研究院核物理与化学研究所中子物理学重点实验室, 四川 绵阳 621999;
2. 四川大学原子与分子物理研究所, 四川 成都 610065)

摘要:中国绵阳研究堆(CMRR)建有一台专门的高压中子衍射谱仪(凤凰), 用于高压科学研究。对聚焦点单色器和导管升级后, 凤凰谱仪的束流通量大幅度提高。基于凤凰谱仪, 建立并发展了一系列高压中子技术, 包括: 气体压腔、活塞圆筒型压腔、紧固型压腔、标准巴黎-爱丁堡压机(VX4型)、带加热和水冷系统的两面顶压机(HP3-1500)、及压机的调节与定位系统。通过对高温高压样品腔体组装的优化设计, 原位中子衍射的温度和压力最高达到34 GPa和1500 °C。建立的高压中子衍射技术已成功应用于高压溶解度测量、含能材料结构表征、高压聚合反应等方面的研究。

关键词:高压; 中子衍射; 巴黎-爱丁堡压机; 大腔体

中图分类号: O521.3; O521.2; O571.56

文献标识码:A

高压能够有效地改变物质内部的原子间距和壳层状态, 诱导核外电子排布, 导致结构和物性变化, 从而形成新的物质形态或出现新的物理现象, 因此被视为未来最有可能取得重大科学突破的研究领域。高压科学的生存和发展强烈依赖于高压实验技术以及高压下物理量的原位测量。20世纪70年代发展起来的金刚石对顶砧(Diamond anvil cell, DAC)技术与同步辐射X射线技术结合后, 可原位观测极高压条件下物质的结构及物性行为变化, 目前已经成为高压科学领域最重要的研究手段之一。但是X射线在探测轻原子、磁性材料、大块体材料等方面遇到了困难。中子在精确确定较轻原子位置方面具有优势, 能识别近邻原子、区分同位素, 并且具有磁矩, 可直接测定材料的磁结构。另外, 中子还具有很强的穿透力, 可穿透样品的各种环境容器, 如高/低温、高压、强磁场等, 使原位表征大块体材料成为可能。因此, 中子源与同步辐射光源互为补充, 为基础科学的研究和新材料研发提供一种独特的手段。特别是近年来与大腔体静高压技术结合而发展起来的高压中子衍射技术, 在含能材料、含水矿物、超导、磁材料等方面研究发挥了重要的作用^[1-6]。

近年建成的中国绵阳研究堆(CMRR)是中国目前可进行中子散射研究的3个中子源之一。其中子科学平台包括冷、热两个大厅, 含一期投入使用的8台谱仪(中子衍射、反射、小角、应力、冷三轴、照相等)和在建的8台谱仪(自旋回波、超小角、热三轴、工程应力、工程小角、广谱非弹性等), 每年为用户提供200 d左右的束流时间^[7-12]。CMRR建有一台专门的高压中子衍射谱仪(凤凰), 用来开展中子高压科学研究。基于高压中子衍射谱仪(凤凰), 已建立并发展了相关高压中子衍射技术, 并在多个研究领域得到应用。本文将简述国内外高压中子技术发展情况, 重点介绍凤凰谱仪高压中子衍射技术在近年来取得的一些进展及应用情况。

* 收稿日期: 2020-07-08; 修回日期: 2020-07-21

基金项目: 国家自然科学基金(11427810); 国家重点研发计划(2016YFA0401503); 科学挑战专题(TZ2016001)

作者简介: 房雷鸣(1980—), 男, 博士, 副研究员, 主要从事高压原位中子衍射研究。

E-mail: flmyaya2008@163.com

1 中子散射、中子源与高压研究现状

中子散射(Neutron scattering)技术起源于 20 世纪 30 年代, 然而直到建立可产生高通量中子的中子源, 中子散射技术才开始被广泛应用。高通量中子可由反应堆和散裂源两种类型的中子源产生。反应堆中子源(Reactor sources)通过核材料裂变反应产生中子, 是一种产生稳定连续中子的中子源。因为反应堆中子源的单色性较好, 所以多数反应堆的中子谱仪采用单色中子, 即采用(单晶)单色器从白中子束中选出所需固定波长的单色中子。散裂中子源(Spallation sources)是基于加速器的脉冲中子源。由于使用的是脉冲中子, 谱仪一般采用“飞行时间(Time-of-flight, ToF)”, 即通过测量中子通过某一段路程所用的时间来标记每个中子的波长(能量)。中子源的快速发展使中子探针的功能变得日益强大, 如今已成为物理学、化学、生物学、地学、工程材料学甚至考古学等众多领域中广泛使用的研究工具。美国橡树岭国家实验室的 Clifford G. Shull 和加拿大乔克河国家实验室的 Bertram N. Brockhouse, 因建立开创性的中子散射实验技术获得了 1994 年的诺贝尔物理学奖^[13]。相对于同步辐射技术, 中子源通量要低很多, 第三代同步辐射的通量比目前最强的中子源(美国 SNS)高出约 10 个数量级。基于同步辐射的超高亮度, DAC 技术可在极微小样品上(样品直径一般不超过 50 μm , 厚度只有 10 μm 左右)产生几百万个大气压(最高的压力记录是 640 GPa^[14])。相对而言, 中子源需要接近毫米量级的样品才能得到有效信号, 从而对高压加载装置提出了挑战。所以 20 世纪 80 年代之前, 高压中子衍射实验压力都不超过 3 GPa, 使用的装置包括气体压腔(Gas cells)、活塞圆筒压机(Piston cylinders)、紧固型压腔(Clamp cell, 如 McWhan 压腔^[7])等。直到 20 世纪 90 年代, 一种新的装置——巴黎-爱丁堡压机(Paris-Edinburgh press, PE 压机)被发展起来。这种装置主要借鉴了苏联科学家 L.G. Khvostantsev 对 Bridgman 压机的改造^[15]。PE 压机的压砧由位于中心的半球状凹坑及围绕中心的一个或两个环状凹槽组成, 一般被称为凹曲面压砧(Toroidal anvil)。两个压砧对顶加压时, 半球形凹坑合拢成一个近似于球状的样品空间, 环状凹槽形成的空间则用于放置对样品形成围压的封垫(Gasket)。PE 压机可在低于 10 GPa 的压力范围内获得高质量的中子衍射谱^[16-17]。通过使用烧结金刚石(Sintered diamond)代替 WC(Tungsten carbide)压砧, 同时减小样品体积, 可获得 20 GPa 压力下的中子衍射谱, 压力比 McWhan 压腔提高了整整 10 倍^[18]。因此, 获得巨大成功的 PE 压机立即被广泛应用于中子散射设施。

散裂中子源的中子衍射谱仪一般采用能散(Energy-dispersive)的衍射模式, 即固定 2θ 角的方法。开展高压研究比较著名的散裂中子源包括始于 20 世纪 80 年代的英国的 ISIS 和美国洛斯阿拉莫斯国家实验室的 Lujan 中心, 以及 2000 年前后建成的日本东海的 J-PARC 和美国橡树岭国家实验室的 SNS。PEARL 谱仪从 1996 年开始运行, 是 ISIS 专门用于高压研究的中子衍射谱仪。PEARL 基于 PE 压机可获得 0~23 GPa 的压力, 在高压技术和高压科学研究方面持续保持活跃并且成绩斐然。特别是, 利用 PE 压机获得了 1400 K 和 10 GPa 的高温高压, 突破了中子衍射只能开展常温高压的局限^[19-20]。Lujan 的 HIPPO 谱仪发展了两面顶压机(TAP-98)、Moissanite(SiC)压腔、气体/液体压腔等多种中子高压技术, 可开展低温高压、高温高压多种极端条件下的中子衍射实验^[21]。新一代散裂中子源 J-PARC 和 SNS 都有专门的且各具特色的高压衍射线站(谱仪), 分别是 PLANET 和 SNAP。PLANET 特别建有六面顶压机(ATSUHIME)。与 PE 压机的单轴加压方式不同, ATSUHIME 在 3 个垂直方向(Six-axis)对样品加压, 可同时产生 16 GPa 和 1000 $^{\circ}\text{C}$ 的压力温度范围^[22-23]。SNAP 通过聚焦与准直、监视器、定位等谱仪部件的优化, 利用 SNS 超高的中子通量, 使其样品体积远远低于通常情况下中子衍射实验所需的样品体积, 对于 0.05 mm^3 大小的样品, SNAP 仍然可以获得可全谱精修的衍射信号。利用定制的 DAC, SNAP 在 43 GPa 压力下获得了可进行全谱分析的中子衍射谱^[24], 并在 94 GPa 压力下获得了具有一定强度的中子衍射谱^[25]。另外, 刚刚建成的位于中国东莞的 CSNS 是中国唯一的散裂中子源。CSNS 正在准备建设一条专门的高压线站(HPI), 将放置一台定制的多面顶压机(True tri-axial loading multianvil press), 用于开展高压下的中子衍射和中子照相。同时, 正在建设的位于瑞典的欧洲散裂源(ESS), 其瞬态亮度高于目前所有散裂中子源, 平均亮度甚至高于稳态反应堆 ILL 的亮度, 为中子高压技术带来了新希望^[26]。

基于反应堆中子源进行中子衍射实验始于 20 世纪 50 年代, 目前世界上约有 48 台反应堆中子源^[27]。中国有两个新建的反应堆中子源, 即中国原子能研究院的 CARR(北京)和中国工程物理研究院的 CMRR(绵阳)。反应堆中子源的中子衍射谱仪一般采用角散(Angle-dispersive)的衍射模式, 即固定波长(λ)的方法。因为角散模式需要沿 2θ 扫描, 因此高压装置须在 2θ 方向有较大的衍射窗口。受反应堆中子源中子通量(一般低于散裂中子源)及高压装置的制约, 通常而言反应堆中子源上中子衍射的最高压力在 10 GPa 以下。开展高压研究比较著名的反应堆有法国的 ILL 和 LLB 反应堆、澳大利亚的 OPAL 反应堆和德国的 FRM II 反应堆。功率为 58 MW 的 ILL 反应堆于 1967 年投入使用, 被认为是目前世界上在用的、功率最大的反应堆中子源。ILL 拥有齐全的高压环境装置, 包括气体压腔、McWhan 压腔和 PE 压机, 可获得 10 GPa 的压力。LLB 是中功率反应堆(14 MW), 建有可开展高压实验的中子衍射谱仪(G6-1)。通过对中子束的高度聚焦, G6-1 利用宝石压砧(金刚石或蓝宝石压砧)获得了最高达 50 GPa 的压力(样品体积仅为 0.01 mm³)^[28]。澳大利亚的 OPAL 是近年来新建的反应堆, 有两条束线可进行高压研究, 利用 PE 压机可获得 10 GPa 的压力。德国的 FRM II 在中子线站上正在安装一台用于高压照相和衍射的六面顶压机(SAPHiR)(<http://www.mlz-garching.de/saphir>), 安装完成后将是欧洲中子线站上唯一的一台多面顶压机。位于中国绵阳的 CMRR 建有一台专门用于高压研究的高压中子衍射谱仪(凤凰), 于 2013 年开始投入使用, 通过优化中子束流、定制高压装置及调节与定位系统, 目前可在最高 34 GPa、1500 °C 的高温高压下获得高质量中子衍射谱, 在本文后部将予以详细介绍。

2 CMRR 高压中子衍射线站

2.1 凤凰谱仪

CMRR 的高压中子衍射谱仪(凤凰)包括中子闸门、聚焦导管、单色器、探测器及屏蔽, 如图 1 所示。探测器由 7 个探测模块组成, 每个模块由 10 支准直器和 10 支在垂直方向呈 45°角放置的³He 管阵列构成, 7 个探测模块的运动由角度编码器控制。探测器采谱一般采用超级位置扫描模式(Superposition scanning mode), 即每支³He 管都测量一个全谱然后叠加起来。这种模式的优点是不需要每支³He 管进行效率标定, 而且如果某些³He 管的信号异常, 叠加时可以直接去掉而不会影响整体信号。通过研创新的垂直聚焦锗单晶单色器和具有可调狭缝的椭圆形聚焦导管, 实现了中子束流强度的提高^[12]。垂直聚焦锗单晶单色器位于样品前端 2.5 m 处, 由 13 片 Ge(511)单晶排列组成。单色器的起飞角为 93.8°, 选择的单一波长为 1.59 Å。新的中子导管采用椭圆形聚焦导管、锥形导管和可调狭缝三者组合方式, 全长 583.5 cm。狭缝可在 1~7 cm 之间进行调节, 不同尺寸的狭缝对应不同的束流强度和

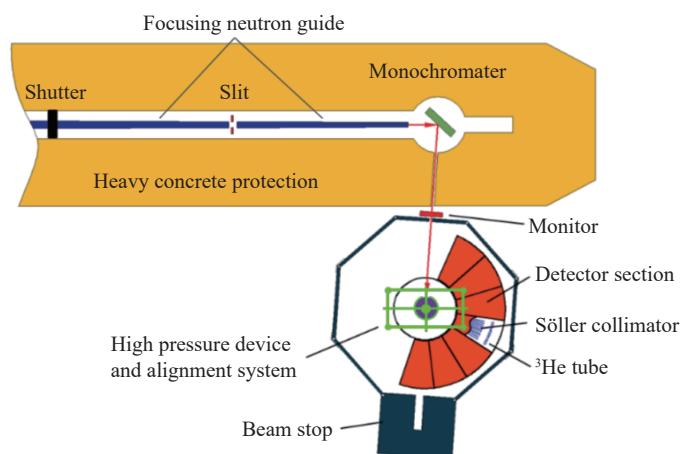


图 1 凤凰谱仪结构顶视图

Fig. 1 Top view of FENGHUANG diffractometer

最佳晶格分辨率($\Delta d/d$), 波长也会略有变化。谱仪的具体参数列于表1。金箔活化法及标准样品的测试结果表明, 样品处最大中子束流强度为 $2.8 \times 10^6 \text{ ns}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$ 。

表1 凤凰谱仪主要的仪器参数

Table 1 Instrumental parameters of FENGHUANG diffractometer

Take-off-angle/(°)	Wavelength/Å	Scan angle range/(°)
93.8	1.5900–1.5925	-4–153
Maximum beam size/(mm × mm)	Flux at sample position/($10^6 \text{ ns}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$)	Minimum resolution/%
30 × 40	0.34–2.84	0.356–0.661

2.2 高压加载装置、调节与定位系统

凤凰谱仪上配有各种定制的气体压腔、活塞圆筒型压腔及紧固型压腔, 可分别获得0.1、0.7和2 GPa压力; 另外有可产生高压的标准PE压机(VX4型)和200 MPa单缸柱塞泵(Floxbab BT)用于提供油压, 以及一台定制的带加热和水冷系统的两面顶压机(HP3-1500), 如图2所示。HP3-1500压机主要包括主机、液压站、温度加载系统和控制系统。压机主体采用高强度合金钢加工, 活塞直径110 mm, 最大行程40 mm。活塞连接压力传感器, 在加载过程中实时测量活塞推力。压力传感器下表面连接加热电极, 并采用绝缘片与压机主体绝缘。电极侧面配置水冷铜管, 加温过程中可连接冷却水循环机为电极降温, 保证压机正常工作。液压站即压力加载系统由液压油箱、柱塞泵、增压器、压力变送器、高压油管及管接头、变频器、液压阀件等组成。温度加载系统采用直流开关电源(500 A/10 V), 通过电源、上下电极、压砧、加热组件构成加热回路对样品进行加热, 可采用恒功率、恒电压、恒电流3种控制模式。加热与加压由程序控制, 控制程序借鉴多面顶大腔体压机设计, 具有保持、跳步、手动/自动切换等功能。

通常而言, 中子信号很弱, 无法使用类似同步辐射的透射成像法或信号测试法实现高压中子衍射样品的定位, 因此对大体积压机(300~1 000 mm)内部小样品(1~3 mm)的精确定位, 是取得有效中子衍射数据并确保所测结果准确性的关键。凤凰谱仪配备一套调节与定位系统, 用于调节PE压机和HP3-1500压机, 以便精确地对高压腔内的样品进行定位^[29–30]。该调节与定位系统充分考虑了中子光路、谱仪特点及压机特点, 具备X、Y、Z方向平移以及Z方向旋转的四维调节功能。运动单元采用伺服电机减速机驱动滚珠丝杠传动, 沿线性滑轨方向做直线运动, 伺服电机均带刹车。这种运动单元有精度高、运动稳定性好的特点。为了监控压机(样品)的移动, 在竖直方向和水平方向布置摄像头和激光笔。因为衍射几何中心与谱仪的编码器中心重合, 所以竖直方向的激光笔放置在谱仪编码器中心。水平方向的激光束线经标定后完全与中子束方向重合, 且其高度和水平位置均在中子束斑中心。利用摄像头可远程清晰地显示激光光斑与标识线的相对位置。通过上位机控制多轴调节装置到达给定位置, 最终完成样品的定位。样品定位精度达到0.02 mm, 满足高压实验要求。

3 凤凰谱仪的高压中子衍射技术

3.1 活塞圆筒型压腔高压实验

活塞圆筒型压腔是一种常用的中子衍射高压装置, 可用来进行固体加压和液体加压。圆筒一般采

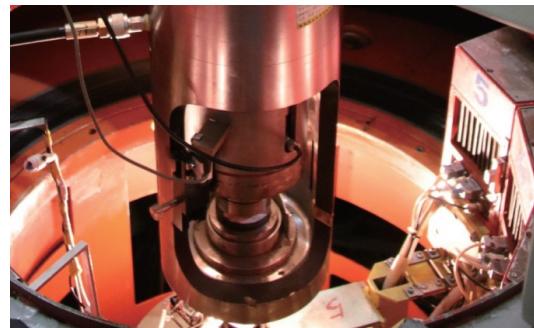


图2 凤凰谱仪上配备的HP3-1500两面顶压机

Fig. 2 HP3-1500 high pressure device for FENGHUANG diffractometer

用TiZr合金制作,活塞则采用碳化钨(WC)。选择合适的TiZr合金配比(Ti和Zr的摩尔分数分别为67.7%和32.3%),刚好保证无中子衍射峰产生。固体加压一般利用聚四氟乙烯或铝箔包裹样品,以防止加压时样品粉末进入活塞与圆筒之间的空隙。液体样品腔要复杂得多,主要是防止液体在加压过程中由活塞与圆筒之间的空隙流出。第4节介绍的高压溶解度和高压聚合实验分别用到了活塞圆筒型液体压腔和活塞圆筒型固体压腔。受限于TiZr合金材料的强度(常温下屈服强度为545~700 MPa^[6]),活塞圆筒型压腔的加载压力一般不超过1 GPa。图3为活塞圆筒型固体压腔获得的不同压力下的中子衍射谱。该实验中,WC活塞的直径为15.27 mm;样品为NaCl,NaCl周围用铝箔包裹,上下各放置一个由铝箔压制的圆片,以隔开圆筒和样品。从图3可以看出,衍射峰大部分来自NaCl样品,另外少部分低强度衍射峰来自WC和Al。进入中子束流的WC和Al随着压力的增加而增多,导致它们的衍射峰强度随压力略有增加。图4为不同加载压力下理论压力(F/S)和实测样品腔压力(根据NaCl晶格体积变化计算的压力)的对比。对于活塞圆筒型压腔,活塞下移过程中,在活塞与圆筒之间的微小空隙中不可避免地会填入一些样品或传压介质的微小颗粒,导致活塞与圆筒之间产生很大的摩擦力。摩擦力会抵消相当多的一部分压力,致使样品腔的压力小于理论压力。随着压力的升高,样品腔的压力接近理论压力。当压力继续升高到极限压力附近时(600 MPa以上),TiZr圆筒向外发生一定的屈服和塑性形变,导致压力效率越来越低,甚至可能发生圆筒破裂。

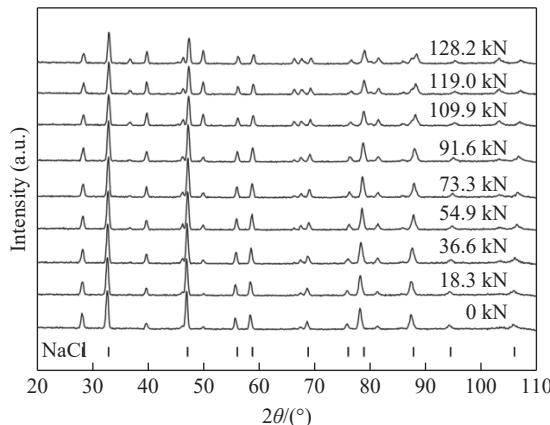


图3 不同加载力下NaCl的中子衍射谱

Fig. 3 Neutron diffraction patterns of NaCl at different loading forces

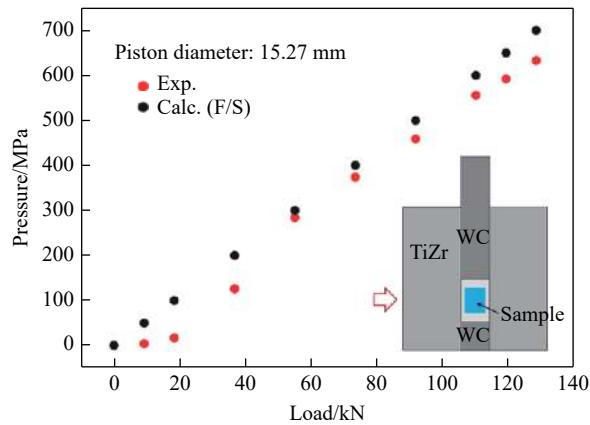


图4 实验与计算的活塞圆筒压腔压力对比

Fig. 4 Pressures of piston cylinders cell in the experiment and calculation

3.2 WC凹曲面压砧高压实验

利用PE压机及WC压砧,一般最高可获得10 GPa的压力。WC凹曲面压砧主要有单凹曲面(Single toroidal, ST)压砧和双凹曲面(Double toroidal, DT)压砧两种类型。样品放置在压砧中心的凹坑里,被与压砧环状凹槽相匹配的TiZr封垫包围。WC压砧和封垫如图5(a)和图5(b)所示。单凹曲面压砧和双凹曲面压砧凹坑合拢后加上封垫的厚度,就是对应的样品体积,分别为96和34 mm³。压砧侧面及斜面一般包裹1 mm厚的镍片或者涂一层Gd₂O₃(Gd₂O₃粉末与环氧树脂混合体),用于屏蔽来自压砧材料的衍射峰。金属Fe(纯度99.99%, Alfa Aesar)作为样品和标压材料,所获得的不同加载压力下的中子衍射谱如图5(c)所示。根据文献[31~32]中报道的Fe的体弹模量,利用三阶Birch-Murnaghan状态方程,计算出不同负载下衍射峰对应的压力^[30]。结果显示,负载1000 kN时单凹曲面和双凹曲面获得的压力分别为9.7和10.7 GPa。谱图中除了样品的衍射峰外,还有少量来自WC压砧材料和WC压砧的支撑钢环(Steel)。通过对中子束斑的进一步限束(减小光斑尺寸),可减小WC衍射峰的强度。具体的实验过程在文献[30]中有详细的描述。实验过程中发现,虽然单凹曲面压砧和双凹曲面压砧所产生的压力效率相当,但是双凹曲面压砧对封垫的稳定性要好于单凹曲面压砧,因此可承受更高的加载。然而双凹曲面压砧却存在样品体积小的缺点。

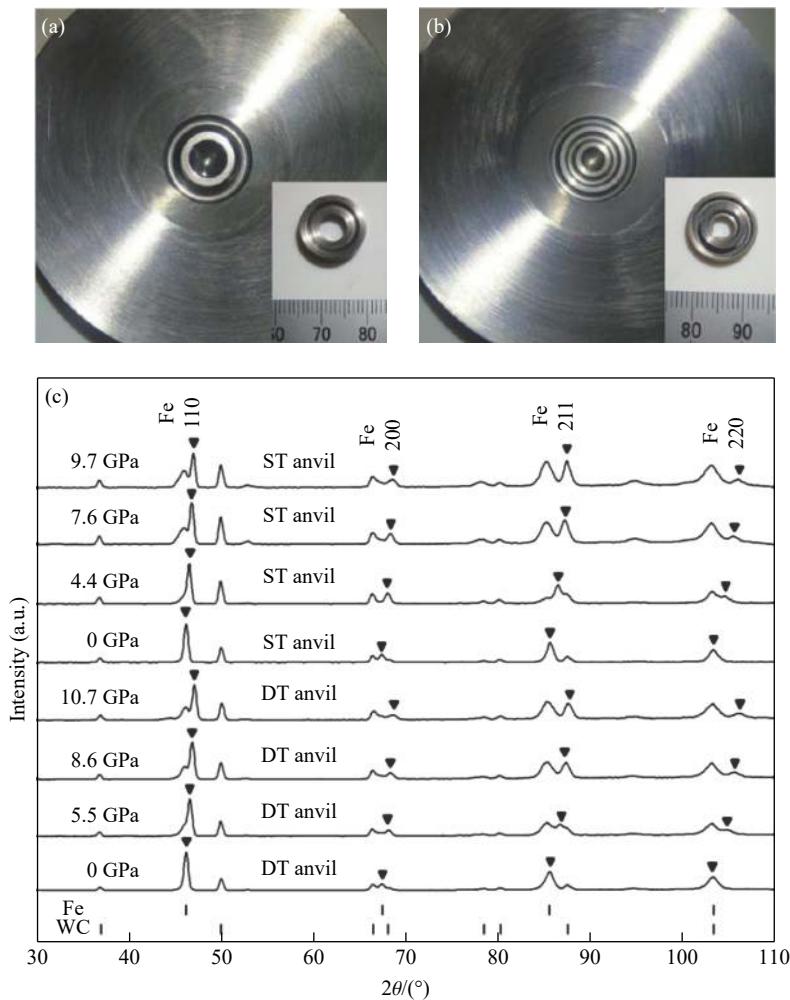


图 5 (a)WC 单凹曲面压砧及 TiZr 封垫, (b)WC 双凹曲面压砧及 TiZr 封垫, (c)单凹曲面和双凹曲面压砧在不同压力下获得的铁的中子衍射谱(修改于文献 [30])

Fig. 5 (a) ST WC anvil and gasket, (b) DT WC anvil and gasket, and (c) neutron diffraction patterns of Fe with ST and DT anvils at different loading forces (Modified for Ref. [30])

3.3 金刚石双凹曲面压砧高压实验

金刚石双凹曲面压砧使用的聚晶金刚石由高温高压烧结而成, 其维氏硬度达到 69 GPa。压砧由中心向外分别为聚晶金刚石、硬质合金和高强度不锈钢。对于 PE 压机等单轴加载装置, 由于对样品的侧向支撑能力(即围压)不足, 导致高压下样品的流变非常严重, 特别是较大尺寸的样品。这也是 PE 压机在毫米级样品上很难获得更高压力(25 GPa 以上)的主要原因。研究发现, 在超过 10 GPa 的高压下, 凹坑里的样品可以看成上、中、下 3 部分, 中间部分的流变最严重。为了减少样品流变, 我们创新性地将中间部分样品去掉, 用一个金刚石单晶片代替^[33]。金刚石单晶的引入很好地阻止了样品的侧向流动, 并对样品起到一定的增压作用, 使样品的压力大大提高。使用的金刚石为单晶, 不会产生衍射峰而对样品信号产生干扰。此外, 样品周围的氧化镁传压介质对阻止样品发生流变也起到一定的作用。所使用的金刚石压砧及组装如图 6 所示。选择金属 Ni(纯度 99.99%, Alfa Aesar)作为样品和标压物质, 利用 Ni 的三阶 Birch-Murnaghan 状态方程计算腔体压力^[31]。样品被金刚石单晶片分成上、下两部分, 尺寸均为 $\varnothing 3.00 \text{ mm} \times 1.25 \text{ mm}$ 。在不同的加载压力下得到的 Ni 的中子衍射图谱如图 7 所示。除了样品 Ni 的衍射峰外, 还有来自聚晶金刚石压砧和 MgO 传压介质的衍射峰。实验结果显示, 在负载 1500 kN 下, Ni 的压力达到 34 GPa。由于样品的流变被有效阻止, 因此高压腔体的压力效率大幅度提高(1500 kN

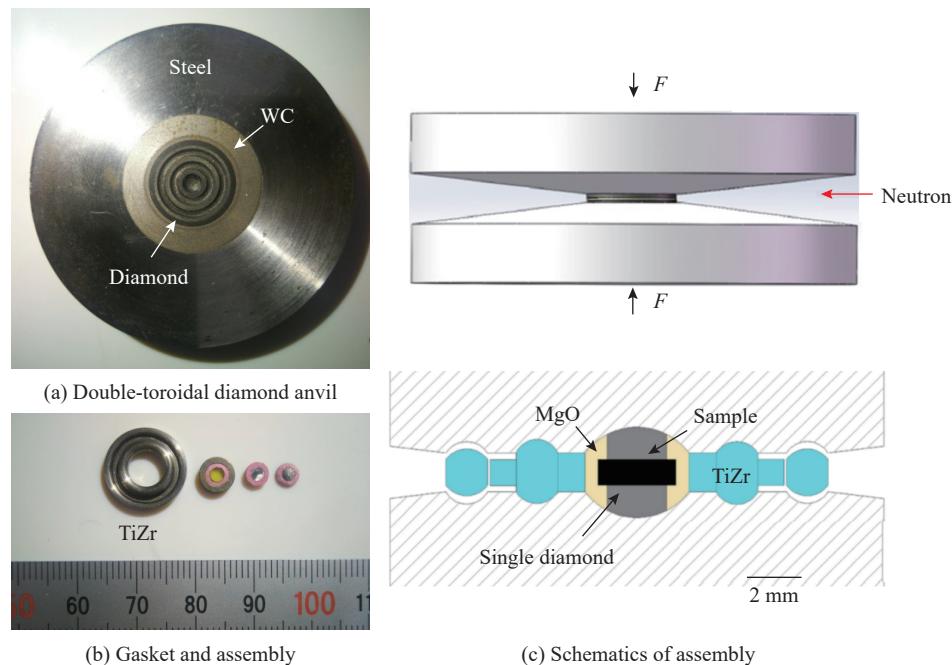


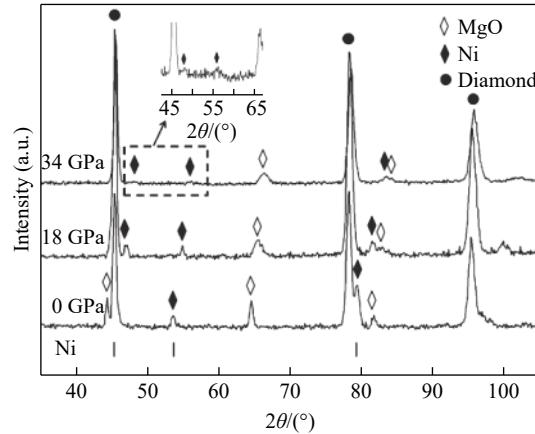
图6 优化的金刚石双凹曲面组装实物图及示意图

Fig. 6 Modified DT assembly for the neutron diffraction experiments

负载下常规金刚石压砧一般可产生 20 GPa 左右的压力)^[34]。当然, 34 GPa 压力下 Ni 的衍射峰已经变得非常弱, 通过适当增加样品量和采谱时间, 可在一定程度上提高信号质量。另外, 氧化镁的压力远低于样品压力, 其原因在于高压下有部分氧化镁被挤到样品凹坑外面的密封区域, 对样品起到了密封作用。该工作为 PE 压机在毫米级样品上产生 30 GPa 以上的压力提供了新思路。

3.4 高温高压中子衍射实验

高温高压中子衍射实验使用平底的 WC 单凹曲面压砧。为了保证上、下压砧绝缘, TiZr 合金被厚度为 1 mm 的叶蜡石隔开。利用外径为 4 mm、厚度为 2.5 mm 的石墨管或者直径为 4 mm、厚度为 0.05 mm 的铼片作为加热管对样品进行加热。加热管外面使用 ZrO_2 作为传压介质, 由于 ZrO_2 材料的热导率较低、绝热性好, 所以还兼具保温的作用。为了在垂直方向增加绝热效果, 加热管没有采用直通的方式, 而是在加热管的上、下采用导电性强的铜圈作为连接加热管和压砧的电极。铜圈内部放置 ZrO_2 或铬酸镧, 作为样品在垂直方向的绝热材料。 MgO 作为样品并同时作为标压和标温物质, 尺寸为 $\varnothing 3.5 \text{ mm} \times 2.7 \text{ mm}$, 体积约为 26 mm^3 。压砧及组装如图 8 所示。利用 MgO 的状态方程计算出样品腔的压力, 同时利用 MgO 的高温状态方程计算样品腔的温度^[35-36]。传统的标温方法是利用放置在样品附近的热电偶进行温度测量。为了绝缘, 在热电偶丝外面套一个 Al_2O_3 陶瓷管。套有陶瓷管的热电偶一般要穿过封垫、加热管及传压介质到达样品。这种方法的缺点是破坏了组装的整体性而影响其稳定性, 另外水平方向放置的热电偶丝容易被挤断, 使测温失败。通过衍射峰计算晶格体积变化的方法, 可以非常好地避免热电偶易断且影响组装整体性和稳定性的问题。图 9 为不同压力温度下 MgO 的中子

图7 不同压力下 Ni 的高压中子衍射谱(MgO 和金刚石衍射峰分别来自传压介质和压砧)Fig. 7 High pressure neutron diffraction patterns of pure metal Ni at different pressure (Peaks of MgO and diamond come from pressure transmitting medium and anvil, respectively.)

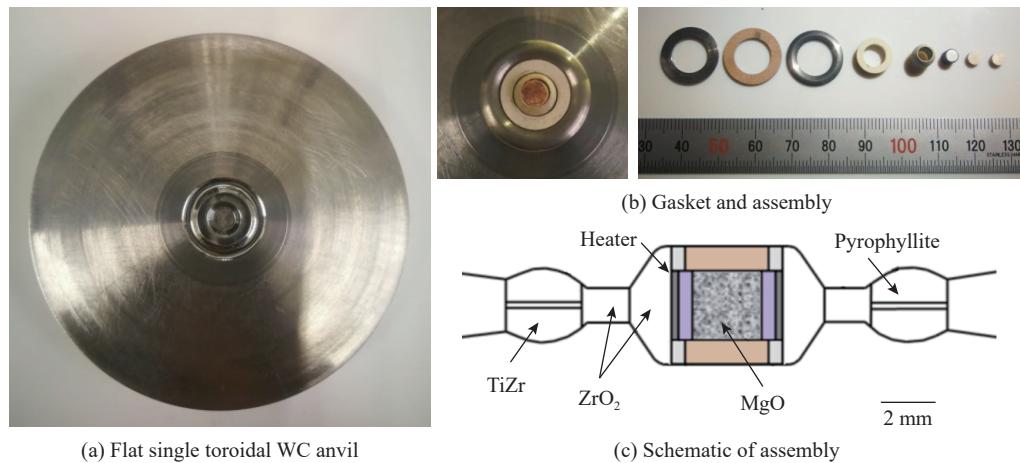


图8 高温高压中子衍射实验组装

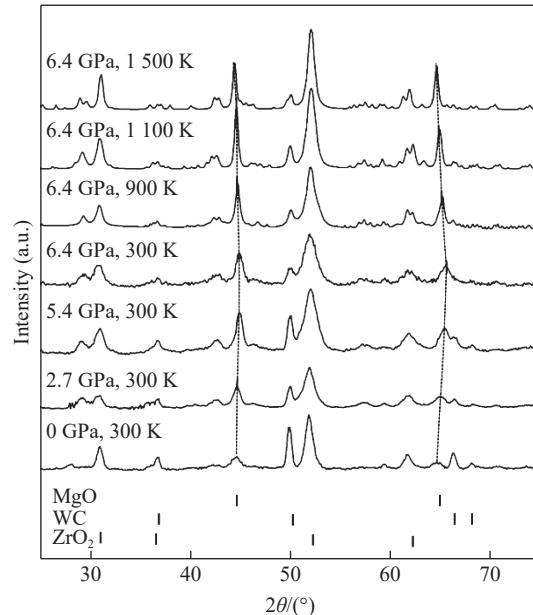
Fig. 8 Schematic of high pressure-high temperature assembly for neutron diffraction experiments

衍射谱,衍射谱中除了有 MgO 的衍射峰外,还有较多的来自 WC 压砧和 ZrO_2 传压介质的干扰峰。传压介质与封垫二者的相对高度影响二者压力的分配,进而影响整个组装的稳定性、腔体压力发生效率和极限压力。根据加压过程中整个组装的流变特点,通过优化传压介质与封垫的相对高度,使压力提高到11 GPa,该压力下可同时达到1500 °C的温度^[37]。对于单轴加压的PE型压机,样品腔在垂直方向的距离较小,使得高温高压组装的保温能力有限,在加热过程中热量很容易沿垂直方向由两个压砧向外散失。高压下组装越薄,这种现象就越明显。解决组装在垂直方向热量散失严重的问题是提升PE型压机中样品温度范围的关键。另外,选择具有良好的绝热效果、衍射峰少且中子透过性好的材料替代 ZrO_2 也非常必要。

4 CMRR 高压中子衍射技术应用

4.1 高压下溶解度测量

在地学、生物学、材料学、能源与环境科学等学科领域中,理解 NaCl 等物质在水中的溶解度随压力的变化具有重要意义。一直以来,固体溶解度随温度的变化被广泛研究,但压力对固体溶解度影响的实验研究却相对较少,主要受原位测量手段的限制^[38-40]。只有少数研究团队利用非常复杂的测量手段获得了超过50 MPa压力下 NaCl 的溶解度,最高测量压力达到300 MPa^[41]。利用中子具有强穿透性(可穿过用于加压的金属压腔及腔体内的液体)的特点,我们发展了一套利用中子衍射原位测量高压下固体溶解度的方法,并成功用于高压下 NaCl 溶解度的测量。利用中子衍射原位测量高压下溶解度的思路:把 NaCl 晶体和标定物质(如 Fe)放入 NaCl 饱和溶液中,为了降低H原子的非相干散射(Incoherent scattering)引起的本底,使用重水(D_2O)配制 NaCl 饱和溶液,然后利用液体压腔进行加压。加压过程中,随着溶解度的增大,饱和溶液变成非饱和溶液,部分 NaCl 晶体发生溶解而导致 NaCl 晶体质量减少。利用中子衍射原位测量不同压力下

图9 不同温度和压力下 MgO 的高温高压中子衍射谱
(ZrO_2 和 WC 衍射峰分别来自传压介质和压砧)Fig. 9 Neutron diffraction patterns of MgO at different pressure and temperature (Peaks of ZrO_2 and WC come from pressure transmitting medium and anvil, respectively)

NaCl 晶体和 Fe 的衍射峰, 并计算出 NaCl 晶体和 Fe 相对质量的变化。因为整个过程中 Fe 的质量未发生变化, 所以可以通过 NaCl 晶体相对 Fe 的质量变化来计算不同压力下 NaCl 的溶解度。NaCl 晶体和 Fe 衍射峰的位置偏移可以用来计算腔体的压力。进行原位中子衍射的液体压腔及获得的中子衍射谱如图 10 所示, 详细实验过程参考文献 [42]。实验结果显示, 中子衍射原位测量获得的数据相比其他实验方法具有更高的可信度, 并且压力范围扩大到 600 MPa 以上(见图 11)。

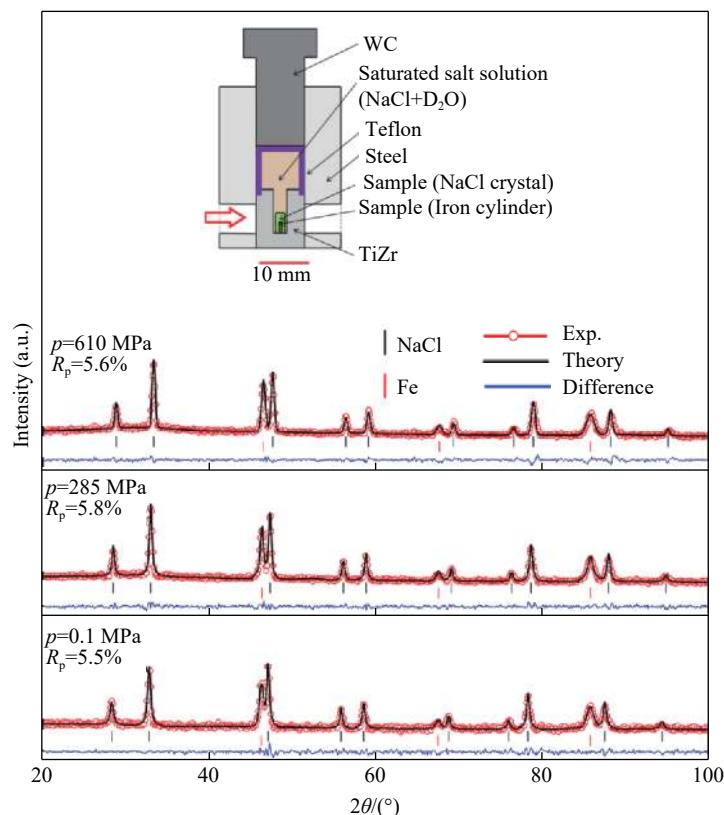


图 10 不同压力下 NaCl 的中子衍射谱(插图为高压下溶解度测量装置)^[42]

Fig. 10 Neutron diffraction patterns of NaCl at different loading forces (Inset is the piston-cylinder cell)^[42]

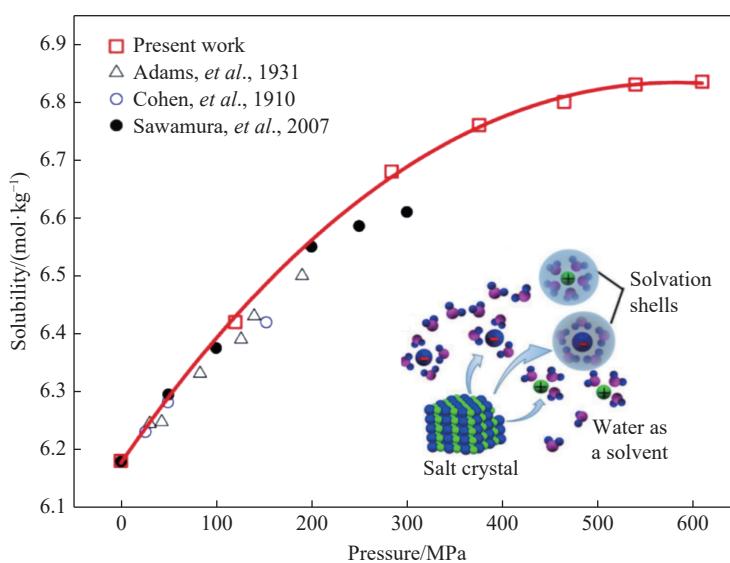


图 11 NaCl 的溶解度随压力的变化曲线^[42]

Fig. 11 Solubility of NaCl at different pressures^[42]

4.2 含能材料结构研究

基于中子的强穿透性及对 C、H、N、O 等轻元素的敏感性, 利用中子衍射研究含能材料具有独特的优势。HMX 是一种具有高能量密度和良好爆炸性能的炸药^[43-45]。利用凤凰谱仪建立的高压中子衍射技术, 李昊等^[46]原位观测了块体 HMX 基 PBX 炸药晶间应力随压力的演化过程。考虑到 H 原子的非相干散射会增加衍射峰的本底, 实验中使用了 HMX 的氘代样品(HMX-d8), 即用 H 的同位素 D 替代样品中的 H 原子。通过对不同压力下的衍射峰进行精修, 获得了各个晶面在不同压力下的晶格参数。结果表明, 在 380 MPa 时(110)面有一个非常明显的应变释放。(110)面反常的应力释放与晶体破碎有关, 说明 HMX 晶体的破碎来源于晶体的(110)面。该实验使用的装置为活塞圆筒压腔, 不同压力下获得的 HMX 的中子衍射谱如图 12 所示。

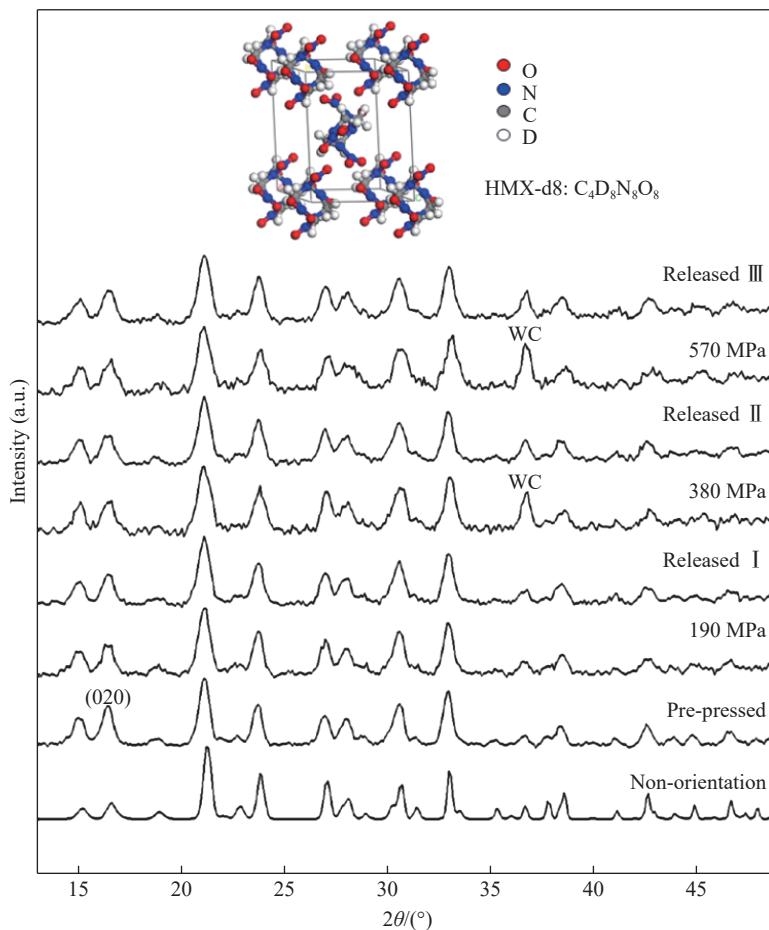


图 12 不同压力下 HMX 的中子衍射谱(修改于文献 [46])

Fig. 12 Neutron diffraction patterns of HMX at different pressures (Modified for Ref.[46])

4.3 高压聚合反应

sp^3 杂化的碳骨架结构具有优异的机械、光学等性能。然而受限于实验方法, 除金刚石等少数材料外, 目前具有规整结构的复杂 sp^3 碳基材料的合成仍是一个难题。其中, 高压聚合(Pressure-induced polymerization, PIP), 即对不饱和分子如芳香族类分子施加极端压力, 是一种有希望制备 sp^3 杂化碳基材料的方法^[47-48]。相比单纯的 C_6H_6 分子, 一半 C_6H_6 分子被 C_6F_6 替代的 $C_6H_6-C_6F_6$ 共晶, 因 C_6H_6 与 C_6F_6 之间强烈的静电吸引, 被认为是研究 $\pi-\pi$ 键的理想对象^[49]。Wang 等^[50]利用中子衍射对不同压力下的各相进行测量并进行结构精修, 研究发现聚合成 H-F 层状类石墨烯结构的 Diels-Alder 反应是 $C_6H_6-C_6F_6$ 共晶聚合反应的关键。该工作的高压中子衍射实验分别在 CMRR 的凤凰谱仪、ISIS 的 PEARL 谱仪和

J-PARC的PLANET谱仪上进行。CMRR凤凰谱仪的高压中子衍射实验结果主要用来解析VI相,如图13所示。 $C_6H_6\text{-}C_6F_6$ 共晶的实验结果表明,通过调控芳香化合物的取代基,可以得到多样的 sp^3 杂化的碳骨架结构。这为芳香化合物的压力诱导聚合提供了新思路。

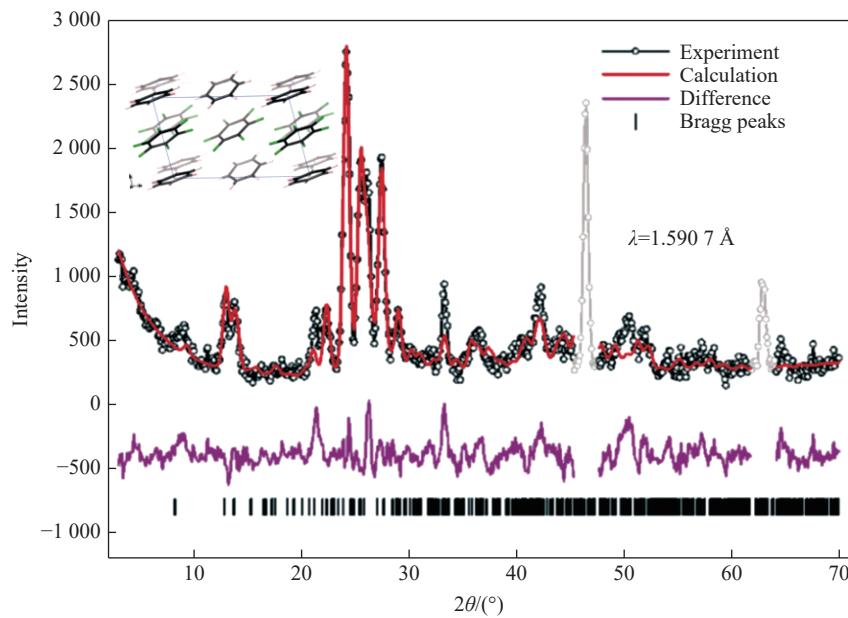


图13 VI相 $C_6H_6\text{-}C_6F_6$ 共晶的高压中子衍射谱(修改于文献[50])

Fig. 13 High pressure neutron diffraction patterns of $C_6H_6\text{-}C_6F_6$ cocrystal (Modified for Ref.[50])

5 结束语

凤凰谱仪是CMRR反应堆中子源上的专用高压中子衍射谱仪。通过对谱仪单色器和中子导管的升级,样品处的中子束流强度达到 $2.8 \times 10^6 \text{ ns}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$ 。目前凤凰谱仪上配有多定制的气体压腔、活塞圆筒压腔及紧固型压腔,可分别获得0.1、0.7和2 GPa的压力,另外还有可产生高压的标准PE压机(VX4型)和定制的两面顶压机(HP3-1500),以及可对样品高精度定位的压机调节与定位系统。通过高压组装设计,在毫米级样品上实现中子衍射的压力突破30 GPa,高于常规PE型压机20 GPa的最高压力。另外,设计的高温高压组装可以实现11 GPa、1500 °C的温度压力,并在该温度压力下获得了有效的样品中子衍射信号。基于凤凰谱仪建立起来的一系列高压中子衍射技术可用于其他中子源,并为用户开展中子高压研究提供支持。目前已在可燃冰结构表征、新材料结构相变、状态方程测量、高压下溶解度测量、含能材料结构演化、高压聚合反应等方面开展应用。另外,在CMRR中子科学平台上建立了基于国产六面顶压机的6-8型超高压大腔体压机和超高压声速测量技术,压力可达22 GPa以上,同时温度可达2200 °C以上,实现了与国外多面顶压机同等的压力温度范围,在该国产六面顶压机上实现了20 GPa以上的弹性波测量。大腔体压机、超高压声速测量技术以及高压中子衍射技术的结合,可实现高压下材料调制、高压下弹性波速测量、高压下密度/晶格体积测量三者的综合研究能力。

对于后期中子高压技术的发展方向主要有以下两方面考虑:

- (1)利用中子K-B(Kirkpatrick-Baez)超镜对中子束进一步聚焦,将光斑尺寸由原来的毫米级控制到亚毫米级,同时采用近年来发展的超高硬度金刚石制作高硬度压砧,以期最终实现50 GPa以上的压力;
- (2)通过设计新型加载方式(2-6型、2-8型),选取对中子友好且性能优秀的加热、传压、密封和保温材料,发展具有较好静水压性、较大体积样品、可获得接近多面顶大腔体压机高温高压范围的新型高压中子衍射技术。

在发展高压中子衍射技术及相关实验过程中,得到了中国工程物理研究院核物理与化学研究所中子科学团队的同事们,北京高压科学研究中心的李阔研究员,中国科学院物理研究所的于晓辉研究员,四川大学的彭放教授、雷力研究员,中国工程物理研究院流体物理研究所的毕延研究员、徐济安研究员,中国科学院高能物理研究所散裂中子源科学中心袁宝等的帮助,在此表示诚挚的感谢!

参考文献:

- [1] KISI E H, HOWARD C J. Applications of neutron powder diffraction [M]. Oxford: Oxford University Press, 2008.
- [2] LIEBERMANN R C. Multi-anvil, high pressure apparatus: a half-century of development and progress [J]. *High Pressure Research*, 2011, 31(4): 493–532.
- [3] GUTHRIE M. Future directions in high-pressure neutron diffraction [J]. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 2015, 27(15): 153201.
- [4] KLOTZ S, BESSON J M, HAMEL G, et al. High pressure neutron diffraction using the Paris-Edinburgh cell: experimental possibilities and future prospects [J]. *High Pressure Research*, 1996, 14(4/5/6): 249–255.
- [5] LE GODEC Y, DOVE M T, REDFERN S A T, et al. Recent developments using the Paris-Edinburgh cell for neutron diffraction at high pressure and high temperature and some applications [J]. *High Pressure Research*, 2003, 23(3): 281–287.
- [6] KLOTZ S. Techniques in high pressure neutron scattering [M]. Boca Raton, FL: CRC Press, Taylor and Francis, 2013.
- [7] MCWHAN D B, BLOCH D, PARISOT G. Apparatus for neutron diffraction at high pressure [J]. *Review of Scientific Instruments*, 1974, 45(5): 643–646.
- [8] 彭放, 贺端威. 应用于高压科学的研究国产铰链式六面顶压机技术发展历程 [J]. *高压物理学报*, 2018, 32(1): 010105.
- PENG F, HE D W. Development of domestic hinge-type cubic presses based on high pressure scientific research [J]. *Chinese Journal of High Pressure Physics*, 2018, 32(1): 010105.
- [9] SUN G G, ZHANG C S, CHEN B, et al. A new operating neutron scattering facility CMRR in China [J]. *Neutron News*, 2016, 27(4): 21–26.
- [10] PENG M, SUN L W, CHEN L, et al. A new small-angle neutron scattering spectrometer at China Mianyang research reactor [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, 2016, 810: 63–67.
- [11] LI J, WANG H, SUN G G, et al. Neutron diffractometer RSND for residual stress analysis at CAEP [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, 2015, 783: 76–79.
- [12] XIE L, CHEN X P, FANG L M, et al. Fenghuang: high-intensity multi-section neutron powder diffractometer at CMRR [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, 2019, 915: 31–35.
- [13] SHULL C G, STRAUSER W A, WOLLAN E O. Neutron diffraction by paramagnetic and antiferromagnetic substances [J]. *Physical Review*, 1951, 83(2): 333–345.
- [14] DUBROVINSKY L, DUBROVINSKAIA N, PRAKAPENKA V B, et al. Implementation of micro-ball nanodiamond anvils for high-pressure studies above 6 Mbar [J]. *Nature Communications*, 2012, 3: 1163.
- [15] KHVOSTANTSEV L G, SLESAREV V N, BRAZHKIN V V. Toroid type high-pressure device: history and prospects [J]. *High Pressure Research*, 2004, 24(3): 371–383.
- [16] BESSON J M, NELMES R J, HAMEL G, et al. Neutron powder diffraction above 10 GPa [J]. *Physica B: Condensed Matter*, 1992, 180/181: 907–910.
- [17] BESSON J M, WEILL G, HAMEL G, et al. Equation of state of lithium deuteride from neutron diffraction under high pressure [J]. *Physical Review B*, 1992, 45(6): 2613–2619.
- [18] KLOTZ S, BESSON J M, HAMEL G, et al. Neutron powder diffraction at pressures beyond 25 GPa [J]. *Applied Physics Letters*, 1995, 66(14): 1735–1737.
- [19] ZHAO Y S, VON DREELE R B, MORGAN J G. A high P-T cell assembly for neutron diffraction up to 10 GPa and 1500 K [J]. *High Pressure Research*, 1999, 16(3): 161–177.
- [20] BULL C L, FUNNELL N P, TUCKER M G, et al. PEARL: the high pressure neutron powder diffractometer at ISIS [J]. *High Pressure Research*, 2016, 36(4): 493–511.

- [21] ZHAO Y S, ZHANG J Z, XU H W, et al. High-pressure neutron diffraction studies at LANSCE [J]. *Applied Physics A*, 2010, 99(3): 585–599.
- [22] HATTORI T, SANO-FURUKAWA A, ARIMA H, et al. Design and performance of high-pressure PLANET beamline at pulsed neutron source at J-PARC [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, 2015, 780: 55–67.
- [23] SANO-FURUKAWA A, HATTORI T, ARIMA H, et al. Six-axis multi-anvil press for high-pressure, high-temperature neutron diffraction experiments [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2014, 85(11): 113905.
- [24] GUTHRIE M, BOEHLER R, TULK C A, et al. Neutron diffraction observations of interstitial protons in dense ice [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2013, 110(26): 10552–10556.
- [25] BOEHLER R, GUTHRIE M, MOLAISON J J, et al. Large-volume diamond cells for neutron diffraction above 90 GPa [J]. *High Pressure Research*, 2013, 33(3): 546–554.
- [26] ANDERSEN K H, ARGYRIOU D N, JACKSON A J, et al. The instrument suite of the European Spallation Source [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, 2020, 957: 163402.
- [27] GUTHRIE M. Experimental methods in the physical sciences [J]. *Experimental Methods in the Physical Sciences*, 2017, 49: 637–681.
- [28] GONCHARENKO I N, MIREBEAU I, OCHIAI A. Magnetic neutron diffraction under pressures up to 43 GPa: study of the EuX and GdX compounds [J]. *Hyperfine Interactions*, 2000, 128(1/2/3): 225–244.
- [29] 惠博, 贺端威, 陆裕平, 等. 用于原位中子散射的液压对顶砧系统 [J]. *高压物理学报*, 2013, 27(4): 517–522.
HUI B, HE D W, LU Y P, et al. A hydraulic opposite anvil system for high-pressure *in-situ* neutron diffraction [J]. *Chinese Journal of High Pressure Physics*, 2013, 27(4): 517–522.
- [30] 史钰, 陈喜平, 谢雷, 等. 基于巴黎-爱丁堡压机的高压中子衍射技术 [J]. *物理学报*, 2019, 68(11): 116101.
SHI Y, CHEN X P, XIE L, et al. High-pressure neutron diffraction techniques based on Paris-Edinburgh press [J]. *Acta Physica Sinica*, 2019, 68(11): 116101.
- [31] MAO H K, BASSETT W A, TAKAHASHI T. Effect of pressure on crystal structure and lattice parameters of iron up to 300 kbar [J]. *Journal of Applied Physics*, 1967, 38(1): 272–276.
- [32] 房雷鸣, 陈喜平, 谢雷, 等. 吉帕压力下原位中子衍射技术及其在铁中的应用 [J]. *高压物理学报*, 2016, 30(1): 1–6.
FANG L M, CHEN X P, XIE L, et al. High pressure *in-situ* neutron diffraction under gigapascal of iron [J]. *Chinese Journal of High Pressure Physics*, 2016, 30(1): 1–6.
- [33] HU Q W, FANG L M, LI Q, et al. Enhancing the pressure limitation in large-volume Bridgman-anvil cell used for *in-situ* neutron diffraction [J]. *High Pressure Research*, 2019, 39(4): 655–665.
- [34] DEWAELE A, TORRENT M, LOUBEYRE P, et al. Compression curves of transition metals in the Mbar range: experiments and projector augmented-wave calculations [J]. *Physical Review B*, 2008, 78(10): 104102.
- [35] TANGE Y, NISHIHARA Y, TSUCHIYA T. Unified analyses for *P-V-T* equation of state of MgO: a solution for pressure-scale problems in high *P-T* experiments [J]. *Journal of Geophysical Research*, 2009, 114(B3): B03208.
- [36] MARTÍNEZ-GARCÍA D, LE GODEC Y, MÉZOUAR M, et al. Equations of state of MgO at high pressure and temperature [J]. *High Pressure Research*, 2000, 18(1/2/3/4/5/6): 339–344.
- [37] 江明全, 李欣, 房雷鸣, 等. 基于PE型压机中子衍射高温高压组装的优化设计与实验验证 [J]. *物理学报*, 2020, 69(22).
JIANG M Q, LI X, FANG L M, et al. Optimal design and experimental verification of high temperature and high pressure assembly of neutron diffraction based on PE type press [J]. *Acta Physica Sinica*, 2020, 69(22).
- [38] LUDL A A, BOVE L E, SAITTA A M, et al. Structural characterization of eutectic aqueous NaCl solutions under variable temperature and pressure conditions [J]. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 2015, 17(21): 14054–14063.
- [39] GIBSON R E. The calculation of the solubility of certain salts in water at high pressures from data obtained at low pressures [J]. *Journal of the American Chemical Society*, 1934, 56(4): 865–870.
- [40] TROPPER P, MANNING C E. The solubility of fluorite in H₂O and H₂O-NaCl at high pressure and temperature [J]. *Chemical Geology*, 2007, 242(3/4): 299–306.
- [41] SUZUKI Y, SAWADA T, MIYASHITA S, et al. *In situ* measurements of the solubility of crystals under high pressure by an interferometric method [J]. *Review of Scientific Instruments*, 1998, 69(7): 2720–2724.
- [42] CHEN J, HU Q W, FANG L M, et al. *In situ* high-pressure measurement of crystal solubility by using neutron diffraction [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2018, 89(5): 053906.

- [43] PALMER S J P, FIELD J E, HUNTER J M. Deformation, strengths and strains to failure of polymer bonded explosives [J]. *Proceedings of the Royal Society A*, 1993, 440(1909): 399–419.
- [44] PALMER S J P, FIELD J E. The deformation and fracture of β -HMX [J]. *Proceedings of the Royal Society A*, 1982, 383(1785): 399–407.
- [45] GALLAGHER H G, MILLER J C, SHEEN D B, et al. Mechanical properties of β -HMX [J]. *Chemistry Central Journal*, 2015, 9: 22.
- [46] LI H, LI Y, BAI L F, et al. Acceleration of δ - to β -HMX- D_8 phase retransformation with D_2O and intergranular strain evolution in a HMX-based polymer-bonded explosive [J]. *The Journal of Physical Chemistry C*, 2019, 123(12): 6958–6964.
- [47] FITZGIBBONS T C, GUTHRIE M, XU E, et al. Benzene-derived carbon nanowires [J]. *Nature Materials*, 2015, 14(1): 43–47.
- [48] LI X, WANG T, DUAN P, et al. Carbon nitride nanowire crystals derived from pyridine [J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2018, 140(15): 4969–4972.
- [49] WILLIAMS J H, COCKCROFT J K, FITCH A N. Structure of the lowest temperature phase of the solid benzene-hexafluorobenzene adduct [J]. *Angewandte Chemie International Edition*, 1992, 31(12): 1655–1657.
- [50] WANG Y J, DONG X, TANG X Y, et al. Pressure-induced Diels-Alder reactions in C_6H_6 - C_6F_6 cocrystal towards graphane structure [J]. *Angewandte Chemie International Edition*, 2019, 58(5): 1468–1473.

High Pressure Neutron Diffraction Technology and Applications at CMRR

FANG Leiming¹, CHEN Xiping¹, XIE Lei¹, HE Duanwei², HU Qiwei¹, LI Xin², JIANG Mingquan², SUN Guang'ai¹, CHEN Bo¹, PENG Shuming¹, LI Hao¹, HAN Tiexin¹

(1. Institute of Nuclear Physics and Chemistry, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621999, Sichuan, China;

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

Abstract: FENGHUANG diffractometer at CMRR is a neutron diffractometer dedicated for high pressure experiments. After updating the neutron guide and monochromator, now the neutron flux at the sample position can get increased up to $2.84 \times 10^6 \text{ ns}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$. Based on the FENGHUANG diffractometer, comprehensive high pressure devices and techniques have been developed, such as gas cells, piston cylinders cell, clamp cell, PE press (VX4), opposite anvil press (HP3-1500) along with sample heating and cooling system, and the alignment system for high pressure devices. Moreover, with the modified high pressure and high temperature cell assemblies, the pressure can be up to 34 GPa while the temperature reaches 1500 °C at maximum in the angle-dispersive neutron diffraction. Recently, some scientific research have been performed, like the solubility of NaCl at high pressure, the intergranular strain evolution of HMX, and the pressure-induced polymerization. All these experimental experiences from FENGHUANG diffractometer could not only help to promote the development of high pressure techniques on neutron scattering facilities, but also contribute to the users for their high pressure studies.

Keywords: high pressure; neutron diffraction; Paris-Edinburgh press; large-volume

球弧式纵向剖分超高压模具

李胜华¹, 李金良²

(1. 燕山大学机械工程学院, 河北 秦皇岛 066004;
2. 河北省重型智能制造装备技术创新中心, 河北 秦皇岛 066000)

摘要:为了提高普通年轮式超高压模具的最大承载能力,提出了一种新型球弧式纵向剖分超高压模具结构。该模具的球弧式结构将对超高压模具损害最大的周向拉应力转变为轴向应力,并通过纵向剖分方式降低了轴向应力,提高了超高压模具压缸的极限承载能力。球弧式纵向剖分超高压模具不仅可以降低超高压模具的最大等效应力和最大切向应力,而且模具的腔体容积也相应增大。数值模拟结果表明:在相同载荷条件下,球弧式纵向剖分超高压模具的周向拉应力、等效应力和最大切向应力分别比普通年轮式超高压模具减小了68.1%、12.5%和18.0%。球弧式纵向剖分超高压模具的径向位移也有利于提高压缸的保压能力,同时球弧式纵向剖分超高压模具的腔体容积也比普通年轮式模具提高了约43%。分析表明,球弧式纵向剖分结构有利于提高生产效率,增加模具的使用寿命。

关键词:超高压模具;球弧式;纵向剖分;数值模拟

中图分类号:O521.3

文献标识码:A

超高压技术是研究高压产生和高压作用下物质物理状态变化规律的重要手段,也是研发新材料、制造人造金刚石的主要技术。超高压技术推动了物理、化学、地球科学、材料合成等领域的进步,实现超高压的主要设备称为超高压装置。超高压装置主要分为两面顶超高压模具和多面顶超高压装置:两面顶超高压装置有年轮式、凹砧式、柱塞式、金刚石对顶砧等,多面顶超高压装置有四面顶、六面顶、六合八式装置等^[1]。年轮式超高压模具和六面顶超高压模具主要用来制造工业金刚石。由于年轮式超高压装置存在模具寿命低、研制难度大^[2]等问题,因此国内企业大多放弃了年轮式超高压装置,转而使用六面顶装置。但是六面顶装置只能生产普通金刚石,鉴于市场对宝石级金刚石的大量需求,对年轮式超高压装置进行技术改进迫在眉睫。目前,超高压模具的研究主要集中在两方面:其一,提高装置的极限压力;其二,扩大模具的腔体容积。增大模具的腔体容积有很多好处:在工业生产中,扩大腔体能够降低单位耗电量,同时增大样品的原料体积可以有效提高产量;扩大合成腔还能够降低压腔内物质的压力梯度和温度梯度,稳定高温高压环境,从而提高合成产品的质量,易于生产宝石级金刚石和大颗粒氮化硼;超高压设备运行中一般都会加热样品以降低物质合成的难度,扩大样品合成腔可以使零件的传热作用不明显,从而保证腔体内受热均衡。原位测试和核磁共振的研究结果表明,严格控制环境温度和压力,获得足够大的测试样品,均需要大样品腔才能够实现^[3]。但是增大腔体容积往往会导致极限压力下降,并且应用现有的技术条件制造大尺寸的硬质合金非常困难。为了进一步提高压缸的腔体容积,并且尽可能提高极限承载能力,本研究设计了一种新型超高压结构——球弧式纵向剖分超高压模具。通过数值模拟,对球弧式纵向剖分模具与普通年轮式结构的承载能力进行比较;分析压缸的应力分布状态、保压能力,并将等效应力和最大剪切应力作为比较两种结构的承压的指标;计算并比较球弧式纵向剖分结构与普通年轮式结构的腔体容积。

* 收稿日期: 2020-04-07; 修回日期: 2020-04-19

作者简介: 李胜华(1995—), 男, 硕士, 主要从事超高压模具研究. E-mail: 1179009877@qq.com

通信作者: 李金良(1963—), 男, 教授, 主要从事制造自动化系统研究. E-mail: jlli@ysu.edu.cn

1 几何结构和有限元模型

1.1 几何结构和材料参数

图1、图2分别为普通年轮式超高压模具和球弧式纵向剖分超高压模具。根据球弧式纵向剖分超高压模具利用球罐的最大应力只有相同壁厚圆柱形罐一半的理论^[4],对传统年轮式超高压模具进行改进,得到了新型球弧式纵向剖分超高压模具,将圆柱形腔体结构更改为带有球弧的类球罐形空腔结构。这种球弧形腔体结构不仅可以减小压缸承受的周向拉应力,同时也扩大了超高压设备的腔体容积。然而,该球弧结构增加的超高压模具轴向应力,需要通过“未裂先分”的办法对压缸进行纵向剖分,从而增大超高压模具的极限承载能力。

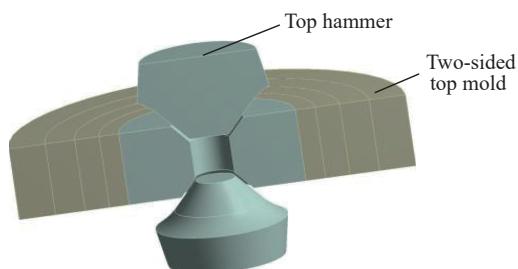


图1 1/2年轮式超高压模具示意图

Fig. 1 Schematic of 1/2 year ultra-high pressure die

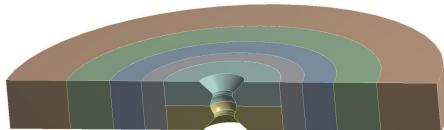


图2 1/2球弧式纵向剖分超高压模具示意图

Fig. 2 Schematic of 1/2 spherical arc longitudinal split ultra-high pressure mold

根据多层厚壁圆筒以各层支撑环同时达到剪切弹性极限的最佳设计理论,确定压缸和支撑环的材料参数,压缸材料为硬质合金YG8,外层支撑环材料为45CrNiMoVA,主要性能参数见表1。

表1 压缸和支撑环的材料参数^[5]

Table 1 Material parameters of cylinder and support ring^[5]

Material	Density/(g·cm ⁻³)	Elastic modulus/GPa	Poisson's ratio	Failure strength/MPa	Shear strength/MPa
YG8	14.60	578	0.22	6 200	3 250
45CrNiMoVA	7.83	210	0.29	1 600	800

超高压模具外径为328 mm,模具总高为38 mm;压缸外径为88 mm,压缸内径为15 mm,压缸内高为19 mm。根据等径比最优化设计支撑环^[6],普通年轮式超高压模具的几何尺寸如图3所示,4层支撑环各层之间进行过盈配合,对硬质合金压缸进行预紧。计算各层之间的过盈量^[7]

$$\delta_i = \frac{2R_i}{E} \left[(p_i - p_{i-1}) \frac{k_{i+1}^2}{k_{i+1}^2 - 1} - \frac{p_{i-1} - p_i}{k_i^2 - 1} \right] \quad (1)$$

式中: δ_i 为各层支撑环的过盈量, mm; R_i 为各层支撑环的内径, mm; E 为支撑环的弹性模量, MPa; p_i 为各层支撑环所受的合成压力, MPa; k_i 为各层支撑环的径比。根据式(1)求得各支撑环从内到外的过盈量分别为0.185、0.213、0.292和0.400 mm。

改进传统年轮式超高压模具结构后的压缸壁设计如图4所示,直线部分为3 mm,过渡圆弧半径 R_g 为3 mm,球弧半径 R_q 为10 mm,支撑环尺寸和过盈量与普通年轮式结构相同。

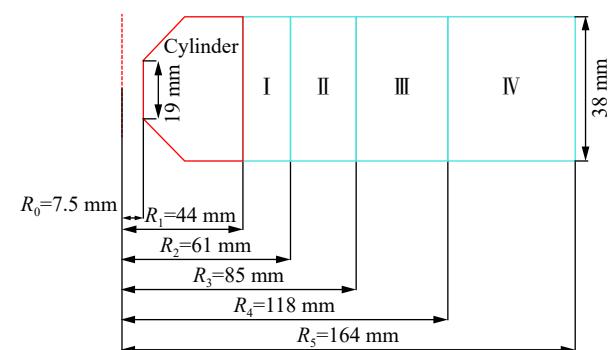


图3 年轮式超高压模具的几何尺寸

Fig. 3 Geometrical dimensions of the annual wheeled ultra-high pressure mold

1.2 建立有限元模型

由于超高压模具具有高度对称性,因此建立了1/4有限元模型进行计算,各部件之间的相互作用均采用摩擦接触和增强拉格朗日算法。其中,压缸的各剖分块之间的摩擦因数为0.30;压缸与支撑环剖分块之间的摩擦因数为0.25;支撑环剖分块之间以及各层支撑环之间的摩擦因数均为0.20。为了降低计算难度,假设作用在两模具内壁上的压力均匀分布且均为6 GPa;将最外层支撑环外壁的周向位移固定,并在对称面上施加对称约束^[8],从而防止产生周向旋转。简化后两种模具的有限元模型如图5所示,其边界条件及载荷分布如图6所示。球弧式纵向剖分超高压模具与年轮式超高压模具的边界条件和载荷均相同。

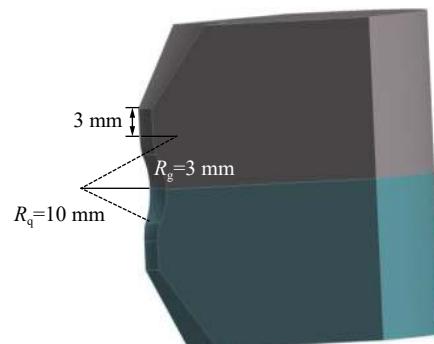


图4 球弧式压缸的几何尺寸

Fig. 4 Geometrical dimensions of spherical arc cylinder

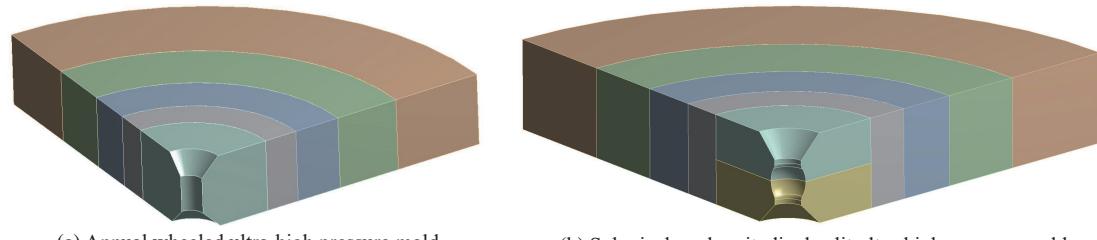


图5 两种模具结构的有限元模型
Fig. 5 Finite element models of two mold structures

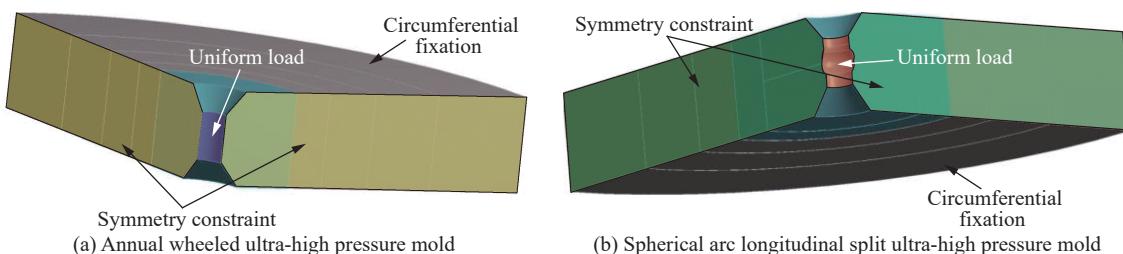


图6 超高压模具的载荷及边界条件

Fig. 6 Loading and boundary conditions of ultra-high pressure mold

2 有限元数值模拟结果和讨论

由于压缸是超高压模具中最主要的承压部件,压缸的最大承压能力直接决定了超高压模具的承载能力,因此在超高压模具设计过程中,需要对压缸的应力分布和承压能力进行研究。

2.1 压缸的周向应力和径向、轴向位移

因为超高压模具在承受超高压时会在压缸内壁产生很大的周向拉应力,该周向拉应力是造成超高压模具破坏的主要因素。通过对两种模具进行数值分析,得到两种模具压缸的周向应力 p_c 分布,如图7所示,其中正值表示拉应力,负值表示压应力。从图7中可以看出,普通年轮式压缸的最大周向应力2219.7 MPa出现在压缸内壁,最小周向应力-1579.4 MPa出现在压缸外壁。分析可知:最大周向应力主要是由于内壁承受的超高压引起的,而最小周向应力主要是由外层支撑环过盈配合产生压应力导致的。球弧式纵向剖分超高压模具压缸的最大周向应力为708.7 MPa,比年轮式超高压模具的最大周向拉应力减小了68.1%,并且最大周向拉应力出现在内壁两边的过渡圆弧处。该模具的球弧结构将周向

拉应力转变为轴向应力,并利用纵向剖分减小了轴向应力。球弧式纵向剖分超高压模具压缸的最小周向应力-1950.9 MPa出现在剖分面两侧,比年轮式超高压模具增加了371.5 MPa,剖分面的作用增大了周向压应力,该受力状态有利于提高硬质合金的承压能力,使压缸内壁能够承受更高的压力。

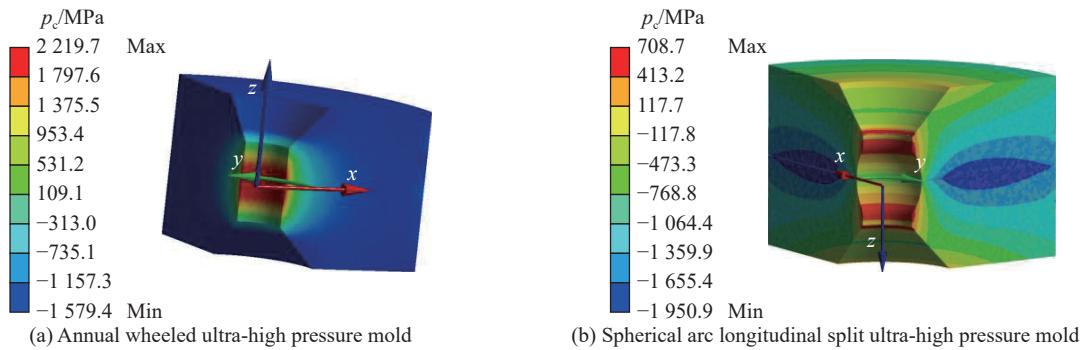


图7 两种超高压模具的周向应力分布

Fig. 7 Circumferential stress distribution of two ultra-high pressure molds

压缸的保压能力是能否制造出品质良好金刚石的重要指标,压缸的径向位移决定了压缸的保压能力,因此分析压缸的径向位移非常重要。对年轮式超高压模具和球弧式纵向剖分模具压缸的径向位移 S_r 进行有限元分析,结果如图8所示,其中正值表示沿径向扩张,负值表示沿径向压缩。

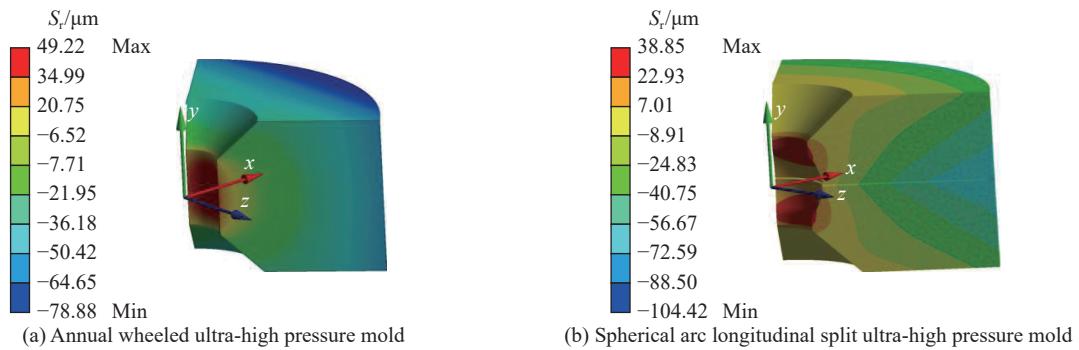


图8 两种超高压模具的径向位移分布

Fig. 8 Radial displacement distribution of two ultra-high pressure molds

从图8中可以看出:球弧式纵向剖分超高压模具的最大扩张 S_r 为38.85 μm ,小于年轮式超高压模具的最大扩张 S_r (49.22 μm);球弧式纵向剖分超高压模具的最大压缩 S_r 为104.42 μm ,大于年轮式超高压模具的压缩 S_r (78.88 μm)。由于球弧式纵向剖分超高压模具的径向位移扩张量小而压缩量大,可以使压缸具有更好的保压能力^[9],有利于提高金刚石的生产品质。

如图9所示,由于球弧式纵向剖分超高压模具的压缸进行了纵向剖分,因此必须对压缸的轴向位移 S_a 进行有限元分析,正值为沿 x 轴的正向移动,负值为沿 x 轴的负向移动。

从图9中可以看出,球弧式纵向剖分超高压模具的轴向位移 S_a 为195 μm ,在一定程度上会使保压能力下降,但是球弧式纵向剖分超高压模具的轴向位移会导致承受压力过程中叶蜡石流入间隙,产生叶蜡石“飞边”,该“飞边”结构对球弧式压缸侧面有侧向支撑作用^[10],大幅增加了球弧式压缸的承压能力。虽然纵向剖分结构会使保压能力

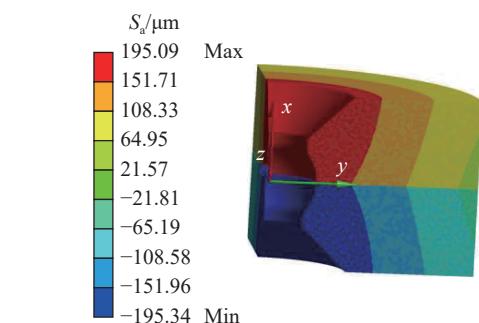


图9 球弧式纵向剖分超高压模具的轴向位移分布

Fig. 9 Axial displacement distribution of the spherical arc longitudinal split ultra-high pressure mold

有一定下降,但该结构不仅可以大幅增大腔体的容积,明显增强极限承载能力,还可以消除硬质合金大型化导致的制造质量下降,因此球弧式纵向剖分超高压结构的优点非常突出。

2.2 压缸的等效应力和最大剪切应力

由于制成压缸使用的硬质合金材料成本较高,为了延长压缸的使用寿命,必须降低压缸的破坏风险。本研究以最大畸变能理论和最大切应力理论^[11-13]为准则,判断压缸是否失效。

等效应力是最大畸变能理论的重要指标。当压缸内壁的工作压力为6 GPa时,年轮式超高压模具和球弧式纵向剖分模具的压缸等效应力 σ_e 分布如图10所示。两种压缸的最大等效应力分别为7091.9和6204.9 MPa,可见球弧式纵向剖分压缸的最大等效应力远小于普通年轮式压缸,与普通年轮式压缸相比,球弧式纵向剖分压缸的最大等效应力降低了12.5%。根据最大畸变能理论,在内壁承受6 GPa压力时,普通年轮式压缸早已经超过了其失效极限(6.2 GPa),说明年轮式超高压模具的压缸内壁不能承受6 GPa的压力,而球弧式纵向剖分模具压缸虽然也近乎失效,但是比普通年轮式压缸的承压能力强很多,基本可以承受6 GPa压力。

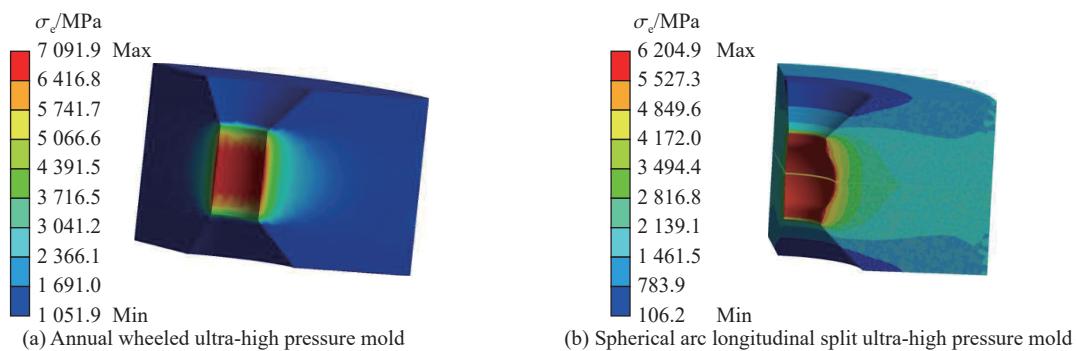


图10 两种超高压模具的等效应力分布

Fig. 10 Equivalent stress distribution of two ultra-high pressure molds

最大剪切应力是最大切应力理论的重要指标,也是衡量超高压模具承压能力的关键。在内壁承受6 GPa压力时,年轮式超高压模具和球弧式纵向剖分模具的最大剪切应力 σ_s 分布如图11所示。两种压缸的最大剪切应力分别为4094.5和3359.3 MPa,可见球弧式纵向剖分压缸的最大等效应力值远小于普通年轮式压缸,与普通年轮式压缸相比,球弧式纵向剖分压缸的最大等效应力降低了约18.0%。根据最大剪应力理论,当压缸内壁承受6 GPa压力时,虽然两种模具均已经失效,但是球弧式纵向剖分模具的剪应力更小,能够承受接近6 GPa的应力。

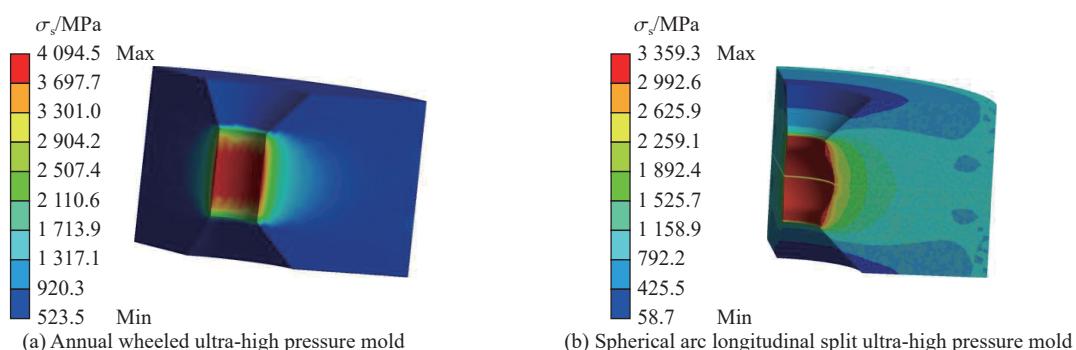


图11 两种超高压模具的最大剪切应力分布

Fig. 11 Maximum shear stress distribution of two ultra-high pressure molds

通过上述分析可以得出,无论是利用最大畸变能理论还是最大切应力理论,球弧式纵向剖分超高压模具的极限承载能力均高于年轮式超高压模具,并且应力分布更加合理。

3 两种压缸腔体容积对比及压缸内部的装填方式

3.1 两种压缸腔体容积对比

超高压模具的腔体容积和生产效率之间的联系非常紧密,超高压模具的腔体容积越大,生产效率越高。但是,超高压模具的腔体容积与极限承压能力有着相互制约的关系,腔体容积越大,其极限承载能力越低。本研究提出的球弧式纵向剖分超高压模具不仅比普通年轮式超高压模具的极限承载能力更强,而且其腔体容积也明显扩大。计算得到两种模具的腔体容积,如表2所示,普通年轮式超高压模具的腔体容积为 859.35 mm^3 ,球弧式纵向剖分超高压模具的腔体容积为 1228.30 mm^3 。由计算结果可知,球弧式纵向剖分超高压模具的腔体容积比普通年轮式超高压模具的腔体容积增大了约43%,可见球弧式纵向剖分超高压模具能够较大幅度地提高生产效率,降低生产成本。

表2 两种模具压缸相关应力和腔体容积

Table 2 Various stresses and cavity volumes of the two mold cylinders

Mold type	Circumferential tensile stress/MPa	Radial expansion displacement/ μm	Maximum equivalent stress/MPa	Maximum shear stress/MPa	Cavity volume/ mm^3
Annual wheeled mold	2219.7	49.22	7091.9	4094.5	859.35
Spherical arc longitudinally split mold	708.7	38.85	6204.9	3359.3	1228.30

3.2 压缸内部的装填方式

由于球弧式纵向剖分模具压缸的内壁是球弧形,因此不能采用和普通年轮式超高压模具相同的装填方法和填装顺序。图12为球弧式纵向剖分模具压缸的内部结构。由于球弧式超高压模具为纵向剖分式结构,因此压缸内部的叶蜡石圈采用图中所示的方向进行填充,其余结构采用和普通年轮式超高压模具相同的装填方式。上、下两部分压缸装填完成后进行组合,与外层支撑环进行过盈配合,对压缸两端进行压实。

4 结 论

设计了一种新型球弧式纵向剖分超高压模具,对其进行了有限元数值模拟,并与传统年轮式高压模具进行比较。结果表明:球弧式纵向剖分超高压模具能够有效降低普通年轮式压缸承受的周向拉应力、最大等效应力和最大剪切应力,其中周向拉应力比普通年轮式模具减小了68.1%;最大等效应力和最大剪切应力分别比普通年轮式模具压缸降低了12.5%和18.0%;与普通年轮式压缸相比,球弧式纵向剖分超高压模具缩短了径向扩张位移,保压性能更好,并且腔体容积更大,有利于提高工业生产效率。

参考文献:

- [1] 王伯龙,李明哲,刘志卫,等.新型切向分块式两面顶超高压模具[J].高压物理学报,2019,33(1):013102.
WANG B L, LI M Z, LIU Z W, et al. A novel tangential split-belt ultrahigh pressure apparatus [J]. Chinese Journal of High Pressure Physics, 2019, 33(1): 013102.

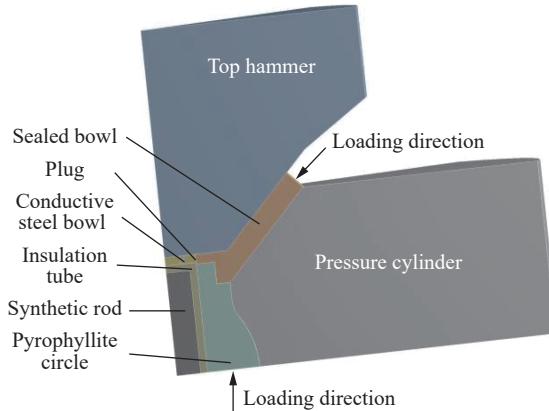


图12 球弧式压缸内部结构和装填方式

Fig. 12 Internal structure and filling method of spherical arc pressure cylinder

- [2] 姚裕成. Belt 型超高压模具若干问题研究和降低金刚石生产成本的途径 [J]. *人工晶体学报*, 1995, 24(2): 166–171.
YAO Y C. Research on some problems with Belt-type tools and the ways of reducing the production costs of diamond [J]. *Journal of Synthetic Crystals*, 1995, 24(2): 166–171.
- [3] 赵亮. 剖分式超高压模具的设计与研究 [D]. 长春: 吉林大学, 2018.
ZHAO L. Design and research of split-type ultra-high pressure die [D]. Changchun: Jilin University, 2018.
- [4] 郭泽荣, 袁梦琦. 机械与压力容器安全 [M]. 北京: 北京理工大学出版社, 2017: 120–121.
GUO Z R, YUAN M Q. Safety of mechanical and pressure vessels [M]. Beijing: Beijing Institute of Technology Press, 2017: 120–121.
- [5] 杨云飞. 压缸切向剖分式超高压模具的研究 [D]. 长春: 吉林大学, 2016.
YANG Y F. Research on tangential split cylinder of ultrahigh pressure die [D]. Changchun: Jilin University, 2016.
- [6] 刘志国, 千正男. 高压技术 [M]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学出版社, 2012: 48–51.
LIU Z G, QIAN Z N. High pressure technology [M]. Harbin: Harbin Institute of Technology Press, 2012: 48–51.
- [7] 颜永年, 俞新陆. 机械设计中的预应力结构 [M]. 北京: 机械工业出版社, 1989: 55–56.
YAN Y N, YU X L. Prestressed structure in mechanical design [M]. Beijing: Machinery Industry Press, 1989: 55–56.
- [8] 依卓. 双层剖分式超高压模具结构设计与有限元分析 [D]. 长春: 吉林大学, 2019.
YI Z. Structural design and finite element analysis of double-layer split ultrahigh pressure die [D]. Changchun: Jilin University, 2019.
- [9] 刘志卫. 多层交错剖分式超高压模具设计及其数值模拟 [D]. 长春: 吉林大学, 2014.
LIU Z W. Design and simulation of multilayer stagger-split type ultrahigh pressure die [D]. Changchun: Jilin University, 2014.
- [10] 王伯龙. 预紧式多层交错剖分超高压模具研究 [D]. 长春: 吉林大学, 2016.
WANG B L. Research on prestressed multilayer stagger-split ultrahigh pressure die [D]. Changchun: Jilin University, 2016.
- [11] 依卓, 付文智, 李明哲. 双层剖分式超高压模具数值模拟及实验 [J]. *吉林大学学报(工学版)*, 2019, 49(5): 1593–1599.
YI Z, FU W Z, LI M Z. Numerical simulation and experiment on double-layered split ultrahigh pressure die [J]. *Journal of Jilin University (Engineering and Technology Edition)*, 2019, 49(5): 1593–1599.
- [12] 来小丽, 周春梅, 王强. 预应力结构模具设计理论的研究 [J]. *科技信息*, 2009(8): 7–8.
LAI X L, ZHOU C M, WANG Q. Research on die design theory of prestressed structure [J]. *Science & Technology Information*, 2009(8): 7–8.
- [13] 王鹏, 王强, 蔡冬梅, 等. Marc 有限元在 Belt 型两面顶模具应力分析中的应用 [J]. *人工晶体学报*, 2008, 37(1): 162–166.
WANG P, WANG Q, CAI D M, et al. Application of marc software in stress analysis of Belt-type apparatus [J]. *Journal of Synthetic Crystals*, 2008, 37(1): 162–166.

Spherical Arc Longitudinal Split Ultra-High Pressure Mold

LI Shenghua¹, LI Jinliang²

(1. College of Mechanical Engineering, Yanshan University, Qinhuangdao 066004, Hebei, China;

2. Hebei Heavy-Duty Intelligent Manufacturing Equipment Technology Innovation Center,

Qinhuangdao 066000, Hebei, China)

Abstract: In order to improve the maximum bearing capacity of ordinary annual wheeled ultra-high pressure molds, a new spherical arc longitudinally split ultra-high pressure mold structure is proposed. Due to the spherical-arc structure, the circumferential tensile stress of the ultra-high pressure mold that has suffered the most damage is converted into axial stress. Then, the axial stress is reduced by the longitudinal division method, thus improving the ultimate bearing capacity of the ultra-high pressure mold cylinder. Spherical-arc longitudinal splitting of the ultra-high pressure mold can not only reduce the equivalent stress and the maximum tangential stress of the ultra-high pressure mold, but also greatly increase the cavity

volume of the mold. The numerical analysis results show that: under the same load condition, the circumferential tensile stress, equivalent stress and maximum tangential stress of the spherical-type longitudinally split ultra-high pressure mold are lower than ordinary annual wheel-type ultra-high pressure molds by 68%, 12.5% and 18.0%, respectively. The radial displacement of the spherical-arc longitudinally split ultra-high pressure mold is also conducive to improving the pressure-holding capacity of the cylinder, and the cavity volume of the spherical-arc longitudinally split ultra-high pressure mold is also increased by about 43% compared to that of the ordinary annual wheel mold. The analysis shows that the spherical-arc longitudinal split structure helps to improve the production efficiency and mold life.

Keywords: ultra-high pressure mould; ball-arc; longitudinal division; numerical analysis

方形爆炸抛撒装置结构优化

李建平, 刘思琪

(北京理工大学爆炸科学与技术国家重点实验室, 北京 100081)

摘要:为了研究方形抛撒装置壳体破坏规律及燃料分散特性, 开展了抛撒装置外场实验并利用 LS-DYNA 仿真软件进行了数值模拟, 模拟结果与实验结果相吻合。进一步分析装置倒圆角及刻槽深度对壳体破裂效果及燃料分散速度的影响规律, 结果表明: 倒圆角与增加刻槽深度有利于减小壳体棱边处应力集中的影响, 圆角半径增至 10 mm 或刻槽深度增至 1.2 mm 时, 棱边处不再破裂; 同一装置壳体边部和中部位置采用不同深度的刻槽可有效减少壳体破裂不均现象。当边缘处刻槽深度为 1.2 mm、中间刻槽为 1.6 mm 时, 壳体均匀破裂; 当棱边处倒 10 mm 圆角, 边部刻槽深度为 0.8 mm, 中部刻槽为 1.2 mm 时, 抛撒装置既能满足壳体均匀开裂, 又可提高壳体强度, 同时可将燃料分散平均速度差值降低 22%, 从而有效提高燃料抛撒效率。

关键词: 方形抛撒装置; 燃料分散; LS-DYNA; 破裂

中图分类号: O389

文献标识码: A

爆炸抛撒是指利用高能炸药爆炸产生的高压将装置内燃料进行抛撒和分散的过程^[1], 在燃料空气炸弹^[2]等军用领域及灭火^[3]、除尘^[4]等民用领域均有广泛应用。抛撒装置主要由壳体、抛撒药剂和中心管组成, 其中壳体结构是影响抛撒性能的一个重要因素。

高重阳等^[5]以柱形爆炸装置为研究对象, 讨论了薄壁壳体在爆炸荷载作用下的动态断裂准则, 发现壳体结构在冲击作用下发生变形和断裂, 其破片断面主要是由韧性剪切断裂造成的。王晔等^[6]利用有限元 LS-DYNA 仿真软件研究了圆形抛撒装置壳体结构对燃料近区抛撒速率的影响, 发现壳体轴向的抗拉强度越大, 燃料的抛撒速率越高。张奇等^[7-8]通过理论研究分析了抛撒装置壳体对燃料近区抛撒过程的影响规律, 给出了考虑壳体时燃料近区抛撒速度的计算方法。目前对圆柱形装药结构抛撒装置的研究较为成熟, 燃料在分散的近场阶段可以简化为一维柱对称模型^[9], 然而受装载平台的限制, 如布撒器通常为矩形截面结构^[10], 常常会用到方形截面的爆炸抛撒装置来提高整体空间利用率。迄今为止, 关于方形抛撒装置的研究较少, 为了提高装载平台空间的利用率, 研究方形爆炸抛撒装置具有重要意义。

与圆柱形抛撒装置壳体不同, 方形爆炸抛撒装置壳体在各个方向上的应力分布不均, 导致壳体破裂不均匀, 从而影响燃料的初始抛撒速度。本研究在实验的基础上得到方形抛撒装置分散燃料后的云雾效果, 通过 LS-DYNA 软件对方形抛撒装置壳体在爆炸冲击作用下的结构特性进行研究, 分析壳体棱边处倒圆角及刻槽深度对壳体破裂及云雾抛撒效果的影响, 为方形爆炸抛撒装置结构的合理设计提供依据。

* 收稿日期: 2019-09-16; 修回日期: 2019-10-21

基金项目: 国防重大专项(201820246213)

作者简介: 李建平(1963—), 男, 博士, 讲师, 主要从事多相爆轰研究. E-mail: ljping@bit.edu.cn

通信作者: 刘思琪(1995—), 女, 硕士研究生, 主要从事分散控制技术研究. E-mail: 1505445921@qq.com

1 方形装置抛撒实验

1.1 实验方法

抛撒装置的结构及实物如图 1 和图 2 所示。装置由壳体、上下端板和中心管通过焊接组成, 壳体棱边处也通过焊接方式成型, 内部为直角结构。壳体和中心管内分别装填燃料和分散药, 壳体厚度为 3 mm, 并设置 12 道深度为 0.6 mm 的方形预制刻槽; 装置总体高度为 400 mm, 可装填抛撒药剂 11 kg; 分散药为压装 TNT 药柱, 药量为 120 g。

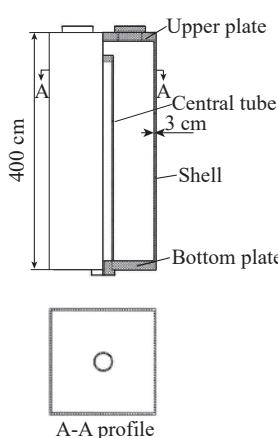


图 1 方形抛撒装置结构

Fig. 1 Structure of square dispersing device



图 2 方形抛撒装置实物

Fig. 2 Image of square dispersing device

实验采用无人机携带的高速摄像机进行俯拍, 用于观察燃料分散形成云雾的形态变化, 为方便研究云雾结果, 无人机俯拍时始终保持方形抛撒装置的横截面四条边与拍摄画面边界平行。采用高速摄影进行拍摄, 用于统计边界燃料膨胀规律。

1.2 实验结果分析

图 3 为实验过程中不同时刻燃料分散及壳体破裂结果俯视图。如图 3 所示, 地面上圆形波痕为冲击波扫过的区域, 随后呈四角形散开的深色云雾为抛撒出的燃料; 燃料在尖角方向上的扩散速度较大, 之后逐渐发展为尖锐的四角星形, 这种呈尖角分布的燃料对抛撒来说是极其不利的。图 3 中红线圈内为破裂分散开的大片壳体, 可以观察到装置壳体在爆炸冲击作用下破裂成 4 块, 其运动方向上对应着四角星形云雾的尖角, 即云雾尖角位置是大块壳体生成的位置。

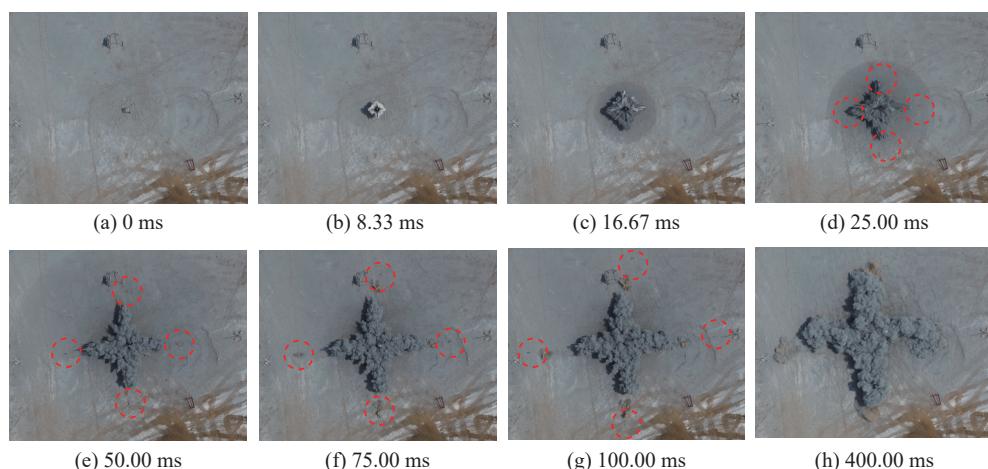


图 3 实验过程中不同时刻燃料分散及壳体破裂

Fig. 3 Fuel dispersion and shell rupture at different times during the experiment

2 方形装置作用过程数值仿真

2.1 计算模型

利用前处理软件 Hypermesh 建立方形抛撒装置的几何模型。为简化计算, 建立 1/4 模型进行求解计算, 如图 4 和图 5 所示。图 4 为有限元计算模型, 由里向外共有 5 部分, 即分散药、中心管、燃料、壳体和空气模型, 完全按照装置实际尺寸进行建模。壳体每个面各有 3 道刻槽, 简化模型中一个面仅显示两道刻槽, 将每个面靠近棱边处的刻槽命名为刻槽 1, 中间的刻槽命名为刻槽 2, 如图 5 所示。其中壳体、上下端板及中心管等装置结构通过共节点的方式连接, 壳体棱边处为直角结构, 刻槽形式为方形, 深度通过改变刻槽处壳体厚度来体现。

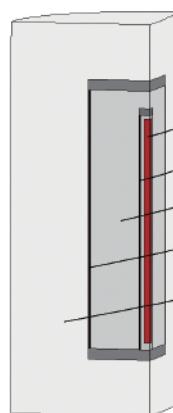


图 4 有限元计算模型

Fig. 4 Finite element model

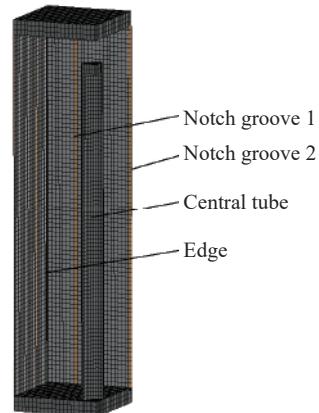


图 5 装置计算模型

Fig. 5 Mesh distribution of the device computing model

模型中空气区域为半径 40 cm、高度 56 cm 的 1/4 圆柱, 空气域采用无反射边界条件。计算方法采用流固耦合算法, 单元采用单点积分的 ALE 多物质单元, 即一个单元内可以包含多种物质。壳体、分散药管与端盖等采用拉格朗日网格, 分散药、燃料与空气域采用欧拉网格。

计算过程涉及的材料包括分散药、空气、燃料和壳体等。分散药选用 TNT, 采用高能炸药燃烧材料模型和 JWL 状态方程^[11]描述, JWL 状态方程形式为

$$p = A \left(1 - \frac{\omega}{R_1 V}\right) e^{-R_1 V} + B \left(1 - \frac{\omega}{R_2 V}\right) e^{-R_2 V} + \frac{\omega E}{V} \quad (1)$$

式中: p 为爆轰产物的压力, V 为相对比体积, E 为单位体积炸药的内能, A 、 B 、 R_1 、 R_2 、 ω 为 JWL 状态方程参数。计算参数见表 1^[12], 其中 ρ_0 为分散药初始质量密度, D 为爆速。

表 1 TNT 炸药的爆轰性能及 JWL 状态方程参数

Table 1 Detonation properties and JWL equation-of-state parameters of TNT explosive

$\rho_0/(\text{g}\cdot\text{cm}^{-3})$	$D/(\text{m}\cdot\text{s}^{-1})$	p/GPa	A/GPa	B/GPa	R_1	R_2	ω	$E/(\text{GJ}\cdot\text{m}^{-3})$
1.63	6 930	21	374	7.33	4.2	0.9	0.35	7

燃料为液固混合态, 其性能类似于水, 为此燃料材料模型选用水代替, 采用 MAT_NULL 材料模型和 Grüneisen 状态方程^[13], 计算参数见表 2, Grüneisen 状态方程形式为

$$p = \frac{\rho_0 C^2 \mu \left[1 + \left(1 - \frac{\gamma_0}{2}\right) \mu - \frac{\alpha}{2} \mu^2 \right]}{\left[1 - (S_1 - 1)\mu - S_2 \frac{\mu^2}{\mu + 1} - S_3 \frac{\mu^3}{(\mu + 1)^2} \right]^2} + (\gamma_0 + \alpha\mu)E \quad (2)$$

式中: γ_0 为 Grüneisen 指数; α 为 γ_0 的一阶体积修正量; $\mu = \rho/\rho_0 - 1$, ρ_0 为燃料的初始质量密度; C 、 S_1 、 S_2 、 S_3 为绝热冲击压缩过程中冲击波波速同质点速度间关系的拟合常数。计算参数见表 2。

空气采用 MAT_NULL 模型和 LINEAR_POLYNOMIAL 状态方程描述, LINEAR_POLYNOMIAL 状态方程形式为

$$p = C_0 + C_1\mu + C_2\mu^2 + C_3\mu^3 + (C_4 + C_5\mu + C_6\mu^2)E \quad (3)$$

式中: C_0 、 C_1 、 C_2 、 C_3 、 C_4 、 C_5 、 C_6 为常数; $\mu = \rho/\rho_0 - 1$, ρ_0 为空气初始质量密度; V_0 为初始相对比容; E 为比内能。计算参数见表 3。

表 3 空气计算参数
Table 3 Parameters for the computation of air

$\rho_0/(\text{g}\cdot\text{cm}^{-3})$	C_0	C_1	C_2	C_3	C_4	C_5	C_6	$E/(\text{J}\cdot\text{m}^{-3})$	V_0
0.00125	0	0	0	0	0.4	0.4	0	2.5×10^5	1.0

装置结构选用 MAT_PIECEWISE_LINEAR_PLASTICITY 材料模型描述。该模型可以较准确地描述爆炸过程中装置发生的弹塑性变形及破裂情况, 各部分结构的主要材料参数如表 4 所示。其中, E 为杨氏模量, ν 为泊松比, F 为等效应变, C_e 与 P_e 为应变率参数。计算中, 当壳体材料的等效应变超过等效失效应变时, 单元被删除, 空间由空气填充处理。

表 4 装置结构计算参数
Table 4 Computation parameters of device structure

Structure	Material	$\rho_0/(\text{g}\cdot\text{cm}^{-3})$	E	ν	F	C_e	P_e
Shell	5A06 Al	2.75	0.68	0.35	0.45	40	5
Plate, central tube and tube cap	2A12 Al	2.78	0.70	0.35	0.35	40	5

2.2 仿真结果

由于最终的抛撒结果很大程度上和抛撒初期相关, 因此在燃料抛撒的相关仿真研究中, 通常只考虑燃料抛撒的初期阶段。

图 6 为仿真得到的初期阶段燃料分散及壳体破裂结果俯视图。壳体从 4 条棱边上破裂, 随着壳体的破裂, 燃料逐渐发展为斜正方形, 斜正方形的 4 个尖角对应着装置破裂形成 4 块壳体, 与图 3 中前 25 ms 所显示的燃料分散及壳体破裂结果完全相同。

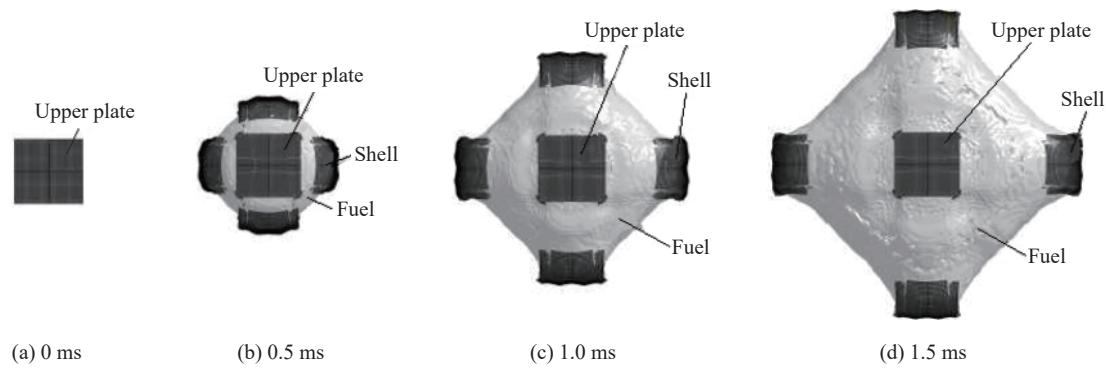


图 6 仿真过程中不同时刻燃料分散及壳体破裂结果

Fig. 6 Results of fuel dispersion and shell rupture at different time in the simulation process

由图6可知, 爆炸产生的冲击波能量随着壳体失效破裂泄压而有所降低, 而4片大块壳体位置的能量相对较大, 该处燃料的速度相对较大且传播距离较远, 最终在4块大片壳体运动方向形成4个尖锐刺状云雾。

分析壳体破裂过程的侧视应力云图如图7所示。壳体在分散过程中的应力分布不均, 棱边处应力集中, 而壳体刻槽处应力则与周围相比差别不大。至装置解体, 壳体与上下端板分离并向四周运动, 整个壳体在棱边处破裂形成4块壳体。

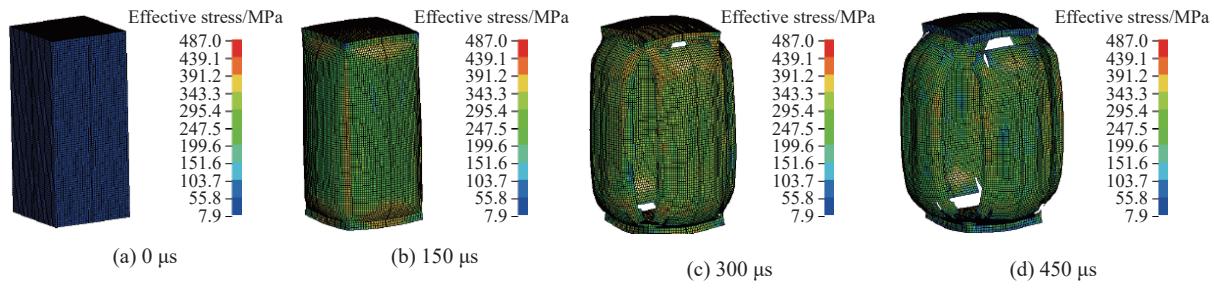


图7 壳体破裂过程的侧视应力云图

Fig. 7 Side-view of stress nephogram for the shell rupture process

为了达到燃料分散形成均匀云雾的目的, 应避免尖锐刺状云雾的出现, 为此需对壳体的破裂进行优化改进, 减少大块壳体的形成。

2.3 燃料分散速度的实验与仿真对比分析

仿真过程中, 需验证结果的准确性。进一步分析实验与仿真得到的燃料边界水平方向速度的变化趋势, 图8显示了实验和仿真计算得到的尖角方向上燃料速度随时间变化情况。在前0.5 ms内, 云雾速度在分散药的爆轰驱动作用下迅速膨胀而快速上升; 在0.5~1.0 ms内, 膨胀速率随着壳体失效破裂泄压而有所降低; 1.0 ms之后, 爆轰产物向外传播, 膨胀速率又开始呈现上升趋势。数值仿真结果与实验结果在总体趋势上是一致的, 从而验证了数值模拟结果的可靠性。

3 方形装置抛撒影响因素数值分析

3.1 倒圆角对壳体破裂的影响规律

针对棱边处应力集中导致大片壳体出现的现象, 通过在棱边处倒圆角的方式减小应力集中的影响。图9为棱边处无倒角及0.8、1.0、1.2 cm倒角的俯视图, 对应的棱边处和刻槽处最大应力及开裂时

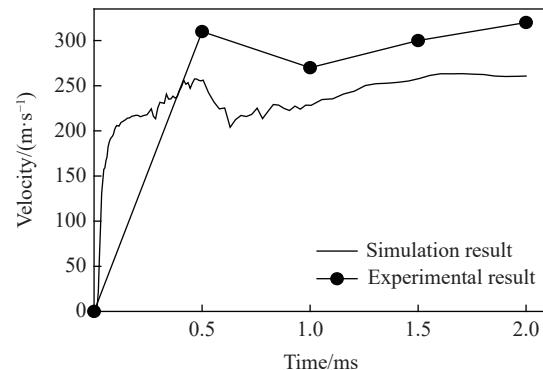


图8 燃料边界水平方向速度随时间的变化

Fig. 8 Horizontal velocity versus time at fuel boundary

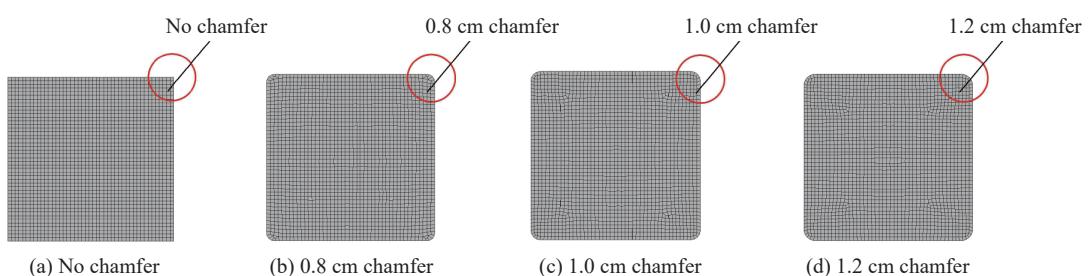


图9 壳体棱边处倒角俯视图

Fig. 9 Top view of chamfer at edge of shell

间的变化规律如表5所示,其中 σ_{\max} 为最大应力, t_{crack} 为破裂时间。如表5所示,随着棱边处圆弧倒角的增大,抛撒装置棱边处的最大应力逐渐减小,而刻槽1处的最大应力逐渐增大,刻槽2处的最大应力无明显变化,维持在356 MPa左右。

棱边处有0.8 cm倒角与棱边处无倒角相比并无较大变化,均为棱边处开裂而刻槽处未开裂;棱边处有1.0 cm或1.2 cm倒角时,棱边处不再开裂,而刻槽1处发生破裂,且其开裂时间随倒角的增大而缩短,而刻槽2处则始终未破裂,如图10所示。

由此可知,增加棱边处圆弧倒角可有效地减小棱边处应力集中的影响,有利于靠近棱边位置的刻槽1破裂,而对离棱边较远的刻槽2无明显作用。

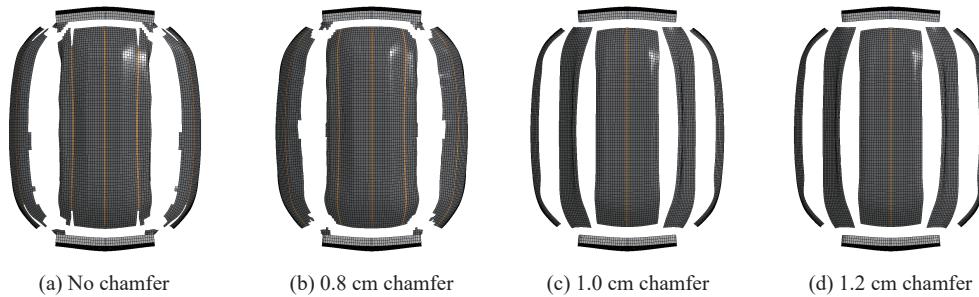


图10 400 μ s不同倒角大小时壳体破裂结果(正视图)

Fig. 10 Effect of shell rupture under different chamfer sizes at 400 μ s (front view)

3.2 刻槽深度对壳体破裂的影响规律

3.2.1 单深度刻槽的影响

为研究刻槽深度对壳体分散效果的影响,在棱边处无倒角的情况下,分别对刻槽深度为0.6、0.8、1.0、1.2及1.6 mm的情况进行了研究,壳体棱边处及刻槽处最大应力及开裂时间如表6所示。壳体棱边处最大应力在能使刻槽1破裂的刻槽深度下达到最大,之后随着刻槽深度的增大逐渐减小;刻槽1处的最大应力随着刻槽深度的增加逐渐增大;刻槽2处最大应力随着刻槽深度的增加变化趋势为:刻槽2处的最大应力在刻槽1开裂前,先逐渐增大,之后缓慢下降。

刻槽深度为0.8 mm时,壳体棱边处与刻槽位置上的分裂效果与刻槽深度为0.6 mm相比并无变化,仅棱边处开裂而刻槽位置未开裂;当刻槽深度为1.0 mm时,刻槽1位置开裂,其开裂时间比棱边处开裂时间晚10 μ s;而当刻槽深度为1.2 mm

表5 倒圆角对壳体棱边及刻槽的影响

Table 5 Effect of chamfer on edge and groove of shell

Shell	Position	σ_{\max} /MPa	Crack or not	t_{crack} / μ s
No chamfer	Edge	376	Yes	175
	Groove 1	361	No	
	Groove 2	355	No	
0.8 cm chamfer	Edge	374	Yes	205
	Groove 1	369	No	
	Groove 2	355	No	
1.0 cm chamfer	Edge	360	No	
	Groove 1	381	Yes	185
	Groove 2	356	No	
1.2 cm chamfer	Edge	359	No	
	Groove 1	385	Yes	175
	Groove 2	357	No	



表6 刻槽深度对壳体棱边及刻槽的影响

Table 6 Effect of groove depth on edge and groove of shell

Depth of groove/mm	Position	σ_{\max} /MPa	Crack or not	t_{crack} / μ s
0.6	Edge	376	Yes	175
	Groove 1	361	No	
	Groove 2	355	No	
0.8	Edge	371	Yes	175
	Groove 1	368	No	
	Groove 2	358	No	
1.0	Edge	378	Yes	175
	Groove 1	376	Yes	185
	Groove 2	366	No	
1.2	Edge	375	No	
	Groove 1	378	Yes	165
	Groove 2	366	No	
1.6	Edge	369	No	
	Groove 1	381	Yes	145
	Groove 2	364	No	

和1.6 mm时, 棱边处不再开裂, 仅刻槽1位置开裂, 其开裂时间随着刻槽深度的增加而缩短。随着刻槽深度的增加, 刻槽2处始终未开裂。

因此, 刻槽深度的增加有利于减小壳体棱边处应力集中的影响, 有利于靠近棱边位置的刻槽1破裂, 而对离棱边较远的刻槽2无明显作用。

3.2.2 多深度刻槽的影响

由3.2.1节可知, 刻槽2处的应力始终小于刻槽1的应力。为此, 可通过增加刻槽2的深度来减少壳体应力分布不均对壳体破裂产生的影响。保持刻槽1的深度为1.2 mm, 设定刻槽2的深度分别为1.4、1.5、1.6 mm, 结果如表7所示。由表7可知, 保持刻槽1的深度不变, 随着刻槽2深度的增加, 刻槽1的最大应力基本不变, 刻槽2的最大应力逐渐提高。当刻槽2的深度增加至1.4 mm时, 刻槽2处依旧未开裂; 刻槽2的深度增加至1.5 mm时, 刻槽2开裂, 其开裂时间较刻槽1晚10 μ s; 刻槽2的深度增加至1.6 mm时, 刻槽2与刻槽1同时开裂。在刻槽2深度增加的过程中, 刻槽1的开裂时间均为165 μ s。刻槽2的深度不同时壳体破裂结果如图11所示。

表7 多深度刻槽条件下增加刻槽2的深度对壳体破裂产生的影响

Table 7 Effect of increasing groove 2 depth on shell rupture under multi-depth grooving conditions

Depth of groove 2/mm	Position	σ_{\max}/MPa	Crack or not	$t_{\text{crack}}/\mu\text{s}$
1.4	Groove 1	378	Yes	165
	Groove 2	370	No	
1.5	Groove 1	382	Yes	165
	Groove 2	373	Yes	175
1.6	Groove 1	380	Yes	165
	Groove 2	377	Yes	165

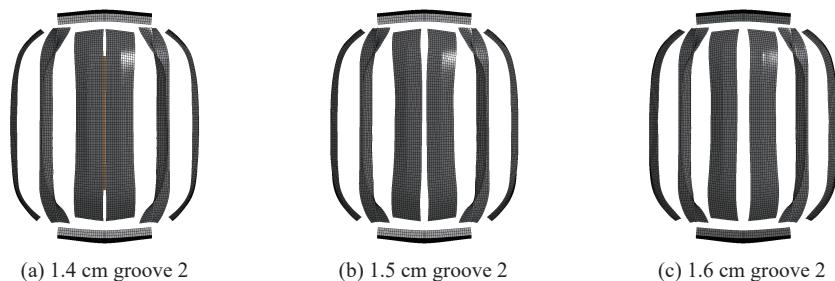


图11 400 μ s刻槽2深度不同时壳体破裂结果(正视图)

Fig. 11 Effect of shell rupture under different groove 2 depth at 400 μ s (front view)

保持刻槽1的深度不变, 增加刻槽2的深度有利于减小壳体应力分布不均而导致壳体破裂不均的现象, 当刻槽2的深度达到1.6 mm时, 装置壳体刻槽同时开裂。

3.3 倒圆角与刻槽深度两因素对壳体破裂的影响规律

在刻槽深度的单一影响下, 当刻槽1的深度为1.2 mm而刻槽2的深度达到1.6 mm时, 能保证壳体棱边处不破裂而刻槽位置同时破裂。而在实际情况下, 刻槽深度过大对壳体的强度有较大影响, 可能导致燃料在起爆前发生泄漏。

同时考虑倒圆角与刻槽深度两个因素, 由上述分析可知, 棱边处倒角大小为1.0 cm且刻槽深度为0.8 mm的情况与棱边处无倒角而壳体深度为1.2 mm的情况相同, 棱边处不再破裂, 刻槽1的破裂时间为165 μ s。因此保持棱边处倒角大小为1.0 cm, 刻槽1的深度为0.8 mm, 设定刻槽2的深度分别为1.0、1.1、1.2 mm, 得到结果如表8所示。

表8 两因素条件下增加刻槽2的深度对壳体破裂效果的影响

Table 8 Effect of increasing groove 2 depth on shell fracture under two factors condition

Depth of groove 2/mm	Position	σ_{\max}/MPa	Crack or not	$t_{\text{crack}}/\mu\text{s}$
1.0	Groove 1	383	Yes	165
	Groove 2	364	No	
1.1	Groove 1	382	Yes	165
	Groove 2	371	Yes	185
1.2	Groove 1	382	Yes	165
	Groove 2	376	Yes	165

表8结果与表7规律基本一致;刻槽2的深度为1.0 mm时,刻槽2未开裂;刻槽的深度为1.1 mm时,刻槽2开裂时间晚于刻槽1;当刻槽2的深度增加至1.2 mm时,刻槽2与刻槽1同时开裂。

3.4 倒圆角与刻槽深度对燃料分散的影响规律

基于上述优化结果,棱边处无倒角、刻槽1深度为1.2 mm、刻槽2深度为1.6 mm的多深度刻槽优化装置,与棱边处倒角为1.0 cm、刻槽1深度为0.8 mm、刻槽2深度为1.2 mm的两因素优化装置,都可以保证在爆炸抛撒过程中装置棱边处不破裂,刻槽位置在165 μ s时同时破裂。将最初的装置命名为方案1,多深度刻槽优化装置命名为方案2,倒圆角与刻槽深度两因素优化方案命名为方案3,3种方案参数如表9所示。

为了得到优化装置的燃料分散效果,将3种方案燃料抛撒速度进行对比。最初装置的燃料最大速度 v_{\max} 位于尖角位置,而最小速度 v_{\min} 在棱边方向。对比3种方案下位于尖角的最大速度与棱边方向的最小速度及其差值,如图12和图13所示。

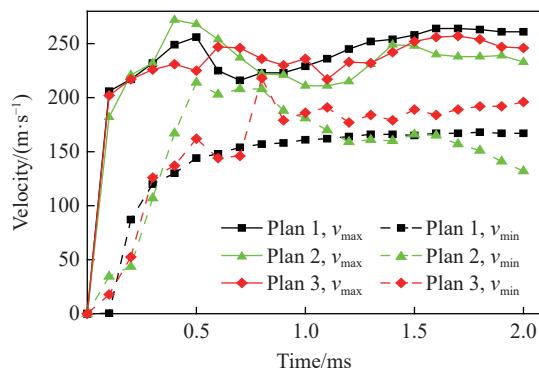


图12 3种方案中燃料的最大速度与最小速度

Fig. 12 Maximum and minimum fuel speed in three schemes

表9 方案参数

Table 9 Scheme parameters

Plan	Chamfer size/cm	Depth of groove 1/mm	Depth of groove 2/mm
1	0	0.6	0.6
2	0	1.2	1.6
3	1.0	0.8	1.2

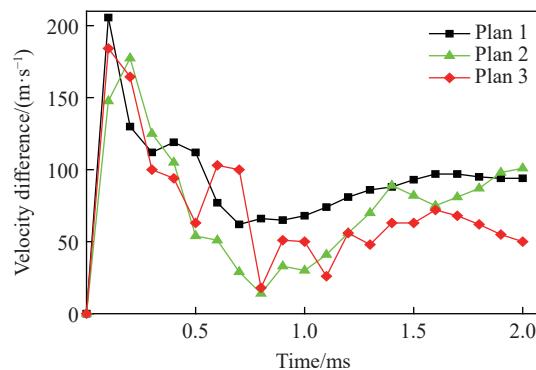


图13 3种方案中燃料的最大最小速度差

Fig. 13 Velocity difference of fuel in three schemes

图12显示了3种方案的燃料最大速度和最小速度随时间变化的趋势。可以看出:燃料最大速度的变化趋势基本一致,先迅速增大至某值,随即速度有所下降,之后又呈现上升趋势;1 ms之前3种方案的燃料速度波动较大;1 ms之后,方案1的最大速度最大,方案2的最大速度最小。最小速度的变化趋势有所不同:方案1的燃料最小速度在1 ms内缓慢提高至160 m/s,随后保持稳定;方案2的燃料最小速度在0.5 ms内升高至214 m/s,之后逐渐降低至132 m/s;方案3的燃料最小速度在0.8 ms内升高至218 m/s,随后迅速降低至191 m/s,之后基本趋于稳定。1 ms前方案2燃料速度最大,方案1燃料速度最小;1 ms后方案3燃料速度最大,而方案2燃料速度最小。

图13为3种方案燃料分散最大速度与最小速度的速度差随时间的变化。3种方案下燃料速度差的变化趋势基本一致,先迅速增大,然后逐渐减小,之后又缓慢上升。方案3燃料速度差在缓慢上升至1.6 ms后呈现下降趋势。1 ms前3个方案的燃料速度差波动较大;1 ms后方案3的燃料速度差最小,方案1的燃料速度差最大。整个过程中方案1的燃料速度差平均值为91 m/s;方案2的燃料速度差平均值为74 m/s,较方案1下降18.7%;方案3的燃料速度差平均值为71 m/s,较方案1下降22%。

4 结 论

在方形抛撒装置实验基础上,通过LS-DYNA软件对方形抛撒装置的3 mm厚壳体在爆炸冲击作用下的结构特性进行研究,分析壳体棱边处倒圆角及刻槽深度对壳体破裂及云雾抛撒效果的影响,为方形爆炸抛撒装置结构的合理设计提供依据。

(1) 壳体在爆炸冲击作用下应力分布不均, 直角棱边处应力集中易破裂。刻槽深度小于壳体厚度的 1/3 时, 刻槽不发生破裂。仅棱边处破裂时, 装置分散燃料后的云雾呈现尖锐四角星形。

(2) 增加棱边处倒圆角半径和刻槽深度都有利于减小壳体棱边处应力集中的影响, 棱边处倒圆角半径增至 10 mm 或刻槽深度增至 1.2 mm 时, 棱边处不再破裂而边部刻槽发生破裂; 同一装置壳体边部和中部位置采用不同深度的刻槽可有效减少壳体应力分布不均导致的破裂不均现象, 当边缘处和中间位置分别设置深度为 1.2 mm、1.6 mm 的刻槽时, 刻槽同时破裂; 棱边处倒 10 mm 圆角, 边缘处和中间位置分别设置深度为 0.8 mm、1.2 mm 的刻槽时, 即棱边倒圆角结合壳体边部和中部位置采用不同深度刻槽, 既能满足抛撒时刻槽同时开裂, 又可减小刻槽深度, 确保抛撒装置有较好的强度。

(3) 棱边处倒 10 mm 圆角, 边部和中部分别设置深度为 1.2 mm 和 0.8 mm 的刻槽时, 可将燃料分散的最大速度与最小速度的平均差值降低 22%, 有效消除燃料分散不均的现象。

参考文献:

- [1] 薛田, 徐更光, 黄求安, 等. 爆炸抛撒过程的研究进展 [J]. 科学技术与工程, 2015, 15(21): 60–67.
XUE T, XU G G, HUANG Q A, et al. Review on explosive dispersion [J]. *Science Technology and Engineering*, 2015, 15(21): 60–67.
- [2] LIU G, HOU F, CAO B. Experimental study of fuel-air explosive [J]. *Combustion, Explosion and Shock Waves*, 2008, 44(2): 213–217.
- [3] 韩宝成, 雷红飞, 徐豫新, 等. 液体灭火弹动态抛撒区域工程计算方法 [J]. *含能材料*, 2011, 19(3): 310–314.
HAN B C, LEI H F, XU Y X, et al. Computational model of dynamic dispersed area of liquid fire-extinguishing ammunition [J]. *Chinese Journal of Energetic Materials*, 2011, 19(3): 310–314.
- [4] 胡涛, 刁伟, 崔正辉, 等. 水袋在爆破水雾除尘技术中的应用 [J]. *水科学与工程技术*, 2012(4): 52–54.
HU T, DIAO W, CUI Z H, et al. Computational model of dynamic dispersed area of liquid fire-extinguishing ammunition [J]. *Water Sciences and Engineering Technology*, 2012(4): 52–54.
- [5] 高重阳, 施惠基, 姚振汉. 薄壁柱壳在内部爆炸载荷下膨胀断裂的研究 [J]. *爆炸与冲击*, 2000, 20(2): 160–167.
GAO C Y, SHI H J, YAO Z H. Dynamic fracture of thin cylindrical shells subject to internal explosive loading [J]. *Explosion and Shock Waves*, 2000, 20(2): 160–167.
- [6] 王晔, 白春华, 李建平. 弹壳体结构对燃料装药抛撒速率影响的数值模拟研究 [J]. *兵工学报*, 2017, 38(1): 43–49.
WANG Y, BAI C H, LI J P. Influence of shell structure on dispersing velocity of fuel-air mixture [J]. *Acta Armamentarii*, 2017, 38(1): 43–49.
- [7] 张奇, 白春华, 刘庆明. 壳体对燃料近区抛散速度的影响 [J]. *应用力学学报*, 2000, 17(3): 102–106.
ZHANG Q, BAI C H, LIU Q M. Influence of shell casting on fuel near-field dispersal velocity [J]. *Chinese Journal of Applied Mechanics*, 2000, 17(3): 102–106.
- [8] ZHANG Q, BAI C H, LIU Q M. Study on near field dispersal of fuel air explosive [J]. *Journal of Beijing Institute of Technology*, 1999, 8(2): 113–118.
- [9] 薛社生, 刘家骢, 彭金华. 液体燃料爆炸抛撒的近场阶段研究 [J]. 南京理工大学学报(自然科学版), 1997(4): 49–52.
XUE S S, LIU J C, PENG J H. Study on the near-field phase of explosive throwing of liquid fuel [J]. *Journal of Nanjing University of Science and Technology (Natural Science Edition)*, 1997(4): 49–52.
- [10] 王在成, 姜春兰. 机载布撒器弹仓总体技术的发展与分析 [J]. 飞航导弹, 1999(10): 21–28.
WANG Z C, JIANG C L. Development and analysis of the overall technology of airborne dispenser silo [J]. *Flying Missile*, 1999(10): 21–28.
- [11] LEE E L, HORMIG H C, KURY J W. Adiabatic expansion of high explosive detonation products: UCRL-50422 [R]. Livermore: Lawrence Livermore National Laboratory, 1968.
- [12] 陈明生, 白春华, 李建平. 燃料抛撒的初始速率与结构动态响应数值模拟 [J]. *含能材料*, 2015, 23(4): 323–329.
CHEN M S, BAI C H, LI J P. Simulation on initial velocity and structure dynamic response for fuel dispersion [J]. *Chinese Journal of Energetic Materials*, 2015, 23(4): 323–329.
- [13] MEYERS M A. Dynamic behavior of materials [M]. John Wiley & Sons, 1994: 124.

Structure Optimization of Square Explosive Dispersion Device

LI Jianping, LIU Siqi

(State Key Laboratory of Explosion Science and Technology, Beijing Institute of Technology, Beijing 100081, China)

Abstract: This paper presents a numerical model of the square dispersing device for simulating the process of shell failure and fuel dispersion by LS-DYNA software. Combined with the results of the field experiments, this model reveals in detail the influence of the fillet angle and groove depth on the shell rupture process and fuel dispersion speed. The results show that the shell edge would no longer rupture when the fillet radius increases to 10 mm or the groove depth increases to 1.2 mm, since different groove depth would effectively reduce the nonuniform shell rupture. And when the depth of edge and middle groove is 1.2 mm and 1.6 mm respectively, the shell is uniformly ruptured. In addition, a special dispersing device with 10 mm fillet angle, 0.8 mm edge groove depth and 1.2 mm middle groove depth, could not only make the shell uniformly ruptured, but also increase the strength of the shell. Meanwhile, it would reduce the average velocity difference of fuel dispersion by 22%, which effectively improve the fuel dispersing efficiency.

Keywords: square dispersion device; fuel dispersion; LS-DYNA; crack

炸药内爆驱动多层密绕螺线管的压缩稳定性

刘 亿, 李建明, 周中玉, 彭 辉, 宋振飞, 谷卓伟

(中国工程物理研究院流体物理研究所, 四川 绵阳 621999)

摘要: 多层密绕螺线管是炸药柱面内爆磁通量压缩多级 MC-1 装置的核心构件。设计了一套内爆磁通量压缩装置, 初步开展了两级内爆压缩多层密绕螺线管实验, 得到了较为清晰的高速摄影图像。密绕螺线管在炸药强爆轰驱动下的界面不稳定性发展是能否获取超高磁场和超高磁压力的关键因素。高速摄影实验结果显示, 多层密绕螺线管在内爆过程中没有出现垮塌, 套筒内界面仍保持对称性, 外界面出现强爆轰导致的周期扰动。为此建立了考虑磁压力的二维有限元内爆数值计算模型, 系统研究了密绕螺线管在炸药内爆驱动下的稳定性问题。计算结果表明, 炸药网络板多点起爆方式对套筒冲击不稳定性的发展影响较大, 网络起爆点数量的增加可以有效抑制套筒界面不稳定性增长。相比于环氧缓冲层, 在炸药与螺线管套筒之间添加 1~2 mm 的间隙可以更有效地衰减爆轰波引入的周期扰动。

关键词: 内爆磁压缩; 密绕螺线管; 界面不稳定性; 多级 MC-1 装置

中图分类号: O357

文献标识码: A

炸药柱面内爆磁通量压缩发生器技术(简称 MC-1 技术)是一种将炸药爆轰产生的高能量密度化学能转变为超强电磁能的动态加载技术^[1]。其工作原理是利用柱形炸药强爆轰向内压缩金属套筒, 使其内部预先引入的初始磁通量在短时间内迅速聚积得到超强磁场。该技术产生的超高压力作用于样品时引起的熵增小、温升低, 是一种应用前景广阔的高能量密度加载实验技术。对于单级 MC-1 装置, 金属套筒内爆压缩过程中界面不稳定性逐步发展, 在磁通量压缩后期加剧磁场沿套筒厚度的扩散, 此时测试样品腔经历一个磁等熵压缩与冲击过程, 磁场峰值与界面不稳定性发展密切关联。20世纪 80 年代, 俄罗斯实验物理研究院的 Pavlovskii 院士^[2]提出了使用同轴多级壳体代替单层套筒的多级 MC-1 技术思想, 通过施加十几特斯拉的初始磁场, 采用二级或三级套筒压缩方式, 获得了超过 1 000 T 的峰值磁场。多级 MC-1 实验原理如图 1 所示, 多层复合密绕螺线管作为多级 MC-1 装置的第一级套筒, 既要在初始阶段通电以提供初始磁场, 又要在炸药爆轰波作用下形成一个闭合金属套筒, 向内压缩磁通量并逐级传递到内层套筒, 最终使磁通量在轴心会聚, 实现磁场的有效放大。

中国工程物理研究院流体物理研究所自 2011 年开展 MC-1 技术的理论和实验研究^[3]以来, 完成了多发动态实验。通过炸药驱动套筒的结构优化设计, 金属套筒的界面不稳定性发展得到了较好的抑制, 获得了约 200 GPa 的等熵压力。为获取 300~400 GPa 压力范围的磁等熵压缩, 近年

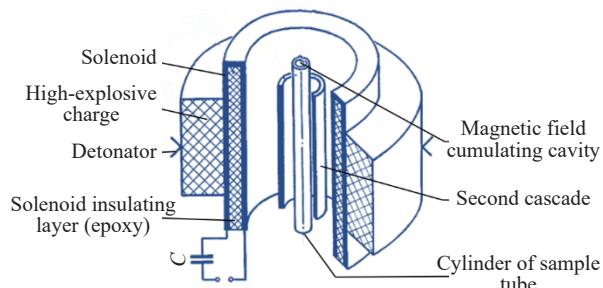


图 1 多级 MC-1 装置的工作原理

Fig. 1 Working principle of the cascade MC-1 device

* 收稿日期: 2020-06-18; 修回日期: 2020-11-11

基金项目: 国家自然科学基金(11672276)

作者简介: 刘 亿(1995—), 男, 硕士研究生, 主要从事磁流体力学数值模拟研究.

E-mail: liu_billion@foxmail.com

通信作者: 谷卓伟(1969—), 男, 博士, 研究员, 主要从事工程力学研究. E-mail: guzhw1969@126.com

来课题组开展了多级 MC-1 装置技术研究, 其中一级套筒——多层密绕螺线管的压缩稳定性是决定整个磁通量压缩过程的关键因素。鉴于多级 MC-1 装置分解实验周期长、原位诊断技术存在诸多不足的问题, 本研究以多级 MC-1 装置内爆高速摄影图像作为参考, 采用有限元方法模拟多层密绕螺线管套筒内爆压缩过程, 分析密绕螺线管结构设计及加工工艺的可行性, 讨论与界面不稳定性发展相关的诸多因素, 为后期实验装置优化提供参考。

1 多层密绕螺线管

1.1 结构及工艺

多层密绕螺线管作为内爆压缩阶段的第一级套筒, 既要在爆轰前期外接电容器以提供初始磁通量, 又要在爆轰波阵面冲击下作为第一级套筒压缩磁通量, 这对密绕螺线管的结构设计、力学强度、电气性能提出了很高的要求。如图 2 所示, 多层密绕螺线管分为螺旋层、回流层和内外环氧层, 正负极位于螺线管同侧^[4]。参照多级 MC-1 装置原理^[2], 本研究制备了一种多层密绕螺线管, 其内径为 136.6 mm, 外径为 150.0 mm, 总厚度为 6.7 mm, 根据材料和功能的差异, 分成 4 层, 由内向外分别为螺旋层、内环氧层、回流层、外环氧层。螺旋层采用 568 股漆包铜线 (QZY-0.25) 并绕, 线圈匝数为 2 匝, 螺旋绕线区域的轴向尺寸为 120.0 mm。

由于电容器组放电电流的上升前沿在 50~60 μs 之间, 为防止高频电流的趋肤效应对电流分布造成不均匀影响, 避免螺旋层和回流层出现密度急剧变化, 在制备过程中使用直径为 0.25 mm 的漆包铜线进行绕制。炸药内爆压缩多层密绕螺线管实验中, 螺线管套筒的对称性和均匀性是重要的几何指标。多层密绕螺线管为手工绕制, 螺线的直径小且数量大, 无法进行有效的无损检测, 需要严格控制多层密绕螺线管构件的制备工艺, 以降低螺线管加工不均匀性对实验结果的影响。

图 3 给出了密绕螺线管的具体制备工艺。首先根据复合密绕螺线管的内径尺寸定制心模, 并与有槽隔板组装, 如图 3(a) 所示, 定位隔板的环向凹槽用于固定漆包铜线。然后按两匝标准绕制漆包铜线,

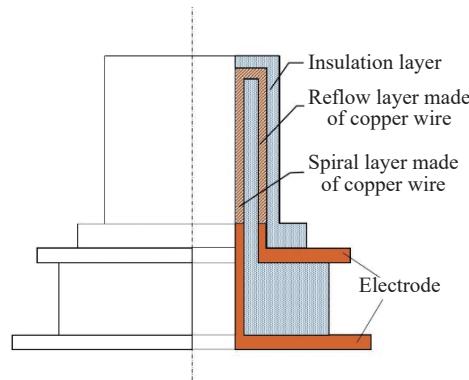


图 2 密绕螺线管结构示意图

Fig. 2 Schematic of the densely wound solenoid

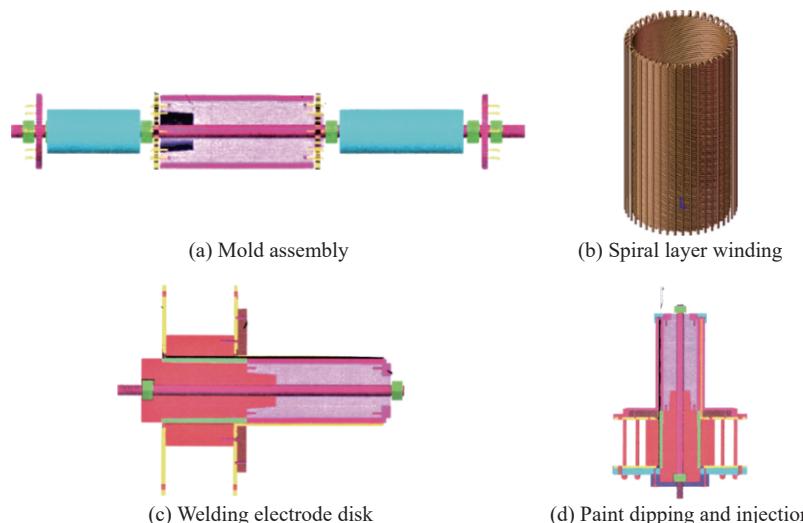


图 3 密绕螺线管主要工艺示意图

Fig. 3 Schematic of the fabrication of the densely wound solenoid

每8根铜线为一组,以同样的流程绕制8层,见图3(b)。螺旋层绕线结束后,在铜线外表面包裹一层厚度约1.4 mm的绝缘GHG复合纸(由聚酰亚胺薄膜粘接复合,外层包裹玻璃纤维布),耐压测试后,使用环氧树脂黏结。环氧层固化后,将线头一端引出,沿圆柱母线将铜线折返,均匀排布在绝缘层外表面。将正负电极盘装配到绝缘筒上,使用环氧树脂黏结。将装配好的绝缘筒和电极盘套入线圈自由端,保证电极盘与漆包铜线外表面之间的装配间隙小于0.2 mm,间隙处使用环氧胶黏结固定,见图3(c)。漆包铜线的两个自由端分别焊接到电极盘的正负极上,将半成品整体装配上环氧塑形外部模具,用螺钉固定后,放入烤箱内排潮,随后导入制备好的液态环氧树脂固化剂,经多次抽真空加压过程排除内部气泡后,进行烘烤固化,见图3(d)。最后依次拆除模具,使用车床对固化构件内外表面和环氧端面进行车削加工,以达到装配要求。

1.2 结构稳定性

密绕螺线管在内爆前需要与电容器组连接形成闭合回路,通过电容器组放电,在内部空腔生成轴向初始磁场。使用有限元分析软件ANSYS的电磁场模块,对通电过程进行结构稳定性分析。由于制备密绕螺线管所用的漆包铜线较细(直径0.25 mm),并且通过模具保证了铜线排布的均匀性,从制备过程中排除了高频电流趋肤效应对电流分布均匀性的影响,因此电流在整个金属导体层区域内可视为均匀分布。在数值模拟中,将螺旋层区域视为均匀绞线圈层,通过施加电流密度激励方式进行建模。如图4所示,数值模型使用Solid97单元,对空气域边界的 A_x 、 A_y 、 A_z 磁矢势进行约束,将0.5 MA电流载荷等效为电流密度进行加载,在螺旋层上基于24°螺旋升角施加环向和轴向电流密度,在回流层上仅施加轴向电流密度。数值结果显示,轴向上的磁场峰值约为4 T,与内爆实验中的初始磁场基本一致。

复合密绕螺线管套筒的螺旋层和回流层在导流过程中将承受径向电磁力 F_r 。如图5所示,计算表明:螺旋层上的最大电磁应力为53 kPa;由于螺旋层绕线具有一定的偏转角度,所产生的磁通量具有少量的径向分量,导致回流层也受到径向电磁力作用,最大值为15 kPa。计算的应力值均远低于环氧树脂强度30 MPa,因此复合多层密绕螺线管套筒在初始磁场建立阶段可以提供足够高的机械强度,不会在炸药起爆前发生结构垮塌。

2 内爆压缩实验

2.1 实验设计

应用中国工程物理研究院流体物理研究所研制的高速分幅相机系统,观察套筒的内爆压缩过程以及界面不稳定性的变化。超高速摄影测试布局如图6所示。脉冲氙灯光源通过照明物镜形成平行光后均匀照射被摄区域,经反射镜和相机物镜,成像在超高速同步分幅/扫描光电相机系统上。

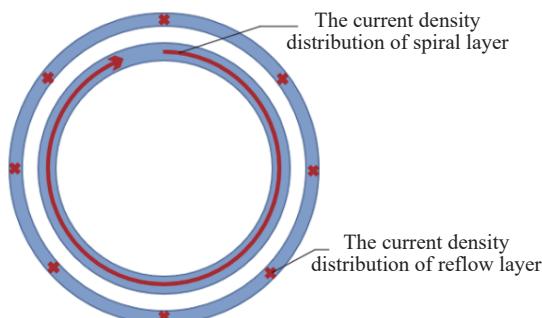


图4 螺线管各部分电流密度分布示意图

Fig. 4 Schematic of the current density distribution of the solenoid

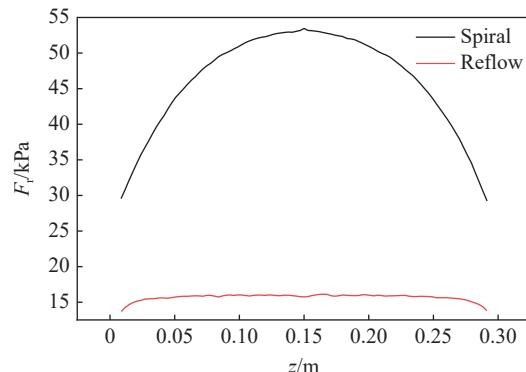


图5 螺线管中螺旋层轴向各位置的电磁力分布

Fig. 5 Electromagnetic force distribution of the solenoid along axial direction

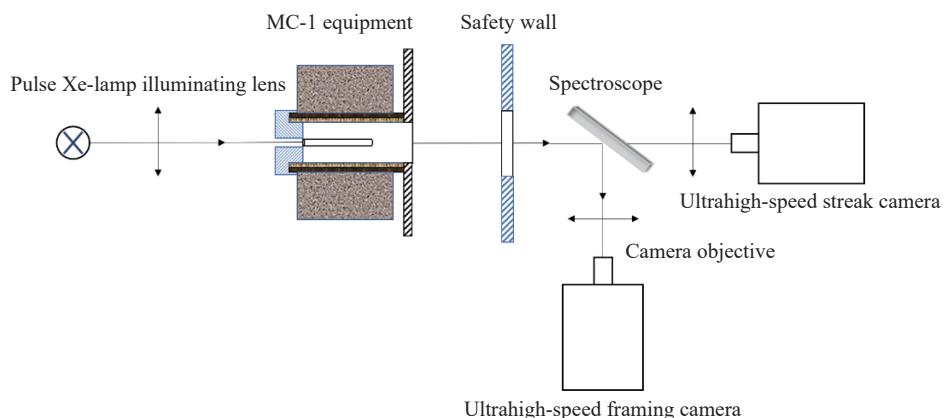


图6 高速摄影测试布局

Fig. 6 Layout of the high-speed photography

实验中多层密绕螺线管内部初始磁场约为4 T, 炸药采用RDX/TNT(60/40), 外径为300.0 mm, 内径为150.0 mm, 高180.0 mm, 约20 kg TNT当量, 在炸药外侧使用环向具有16个起爆模块的网络板进行起爆。其中, 一级套筒(密绕螺线管)外径150.0 mm, 内径136.6 mm, 二级套筒外径28.0 mm, 厚度2.0 mm。

2.2 结果分析

图7显示了采用高速摄影技术记录的初级套筒运动形貌。 $t=68 \mu\text{s}$ 时, 套筒处于静止状态。 $t=70 \mu\text{s}$ 时, 套筒在炸药强爆轰驱动下向内压缩运动, 环向出现16个发光点, 与网络起爆板的起爆模块数量一致。实验表明, 炸药环向多点起爆将发展出具有包络结构的爆轰波阵面, 沿炸药厚度方向传播75 mm后亦不能均匀化, 在套筒压缩初期引入周期性冲击扰动。 $t=72 \mu\text{s}$ 时, 螺线管套筒在惯性作用下向内高速运动, 套筒外侧的周期性扰动进一步增长, 发展出16个发光锥。当一级套筒与二级套筒碰撞后, $t=76 \mu\text{s}$ 时, 二级套筒外界面出现了肉眼可分辨的环向扰动, 但是基本保持结构对称性。

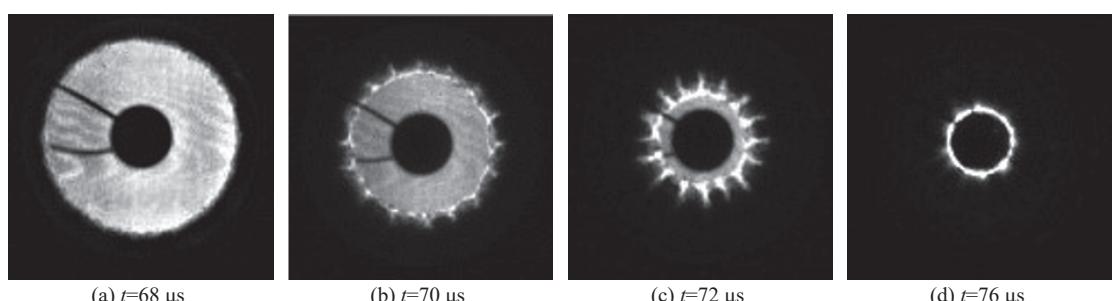


图7 套筒收缩过程的高速摄影图像

Fig. 7 High speed photographs of sleeve shrinking process

需要说明的是, 多层密绕螺线管中含有环氧材料, 在内爆冲击下可能发生离解和喷射, 从而遮挡内层金属界面的运动位置。根据摄影图像可计算一级套筒前沿的径向运动速度, $t=72 \mu\text{s}$ 时约为6.3 km/s, 显著高于金属套筒计算速度(约4.5 km/s), 说明套筒前沿存在低密度的离解环氧层。鉴于图像中套筒内侧表面的对称性较好, 推断套筒在压缩后期没有出现严重的坍塌。

3 数值模拟验证

3.1 力边界条件处理

内爆压缩过程中, 中心磁通量密度随空腔区域半径的减小而增大, 套筒内表面所受磁压力也相应增大。在一级套筒与二级套筒碰撞之前, 二级套筒的漆包铜线由于轴向排列而不能产生环向感应电流, 所以对于这一阶段的内爆压缩过程, 不考虑磁扩散效应。一级和二级套筒发生碰撞后, 由于二级套

筒环向导通, 磁通量密度快速增大, 内部磁压力迅速上升, 此时磁压对套筒内表面的作用不可忽略。应用一维磁流体程序 MC11D^[5], 在几何尺寸及材料参数保持一致的情况下, 计算初始磁场为 4 T 时二级套筒半径 r_2 和磁压力 p_B 随时间 t 的变化曲线。如图 8 所示, 二级套筒内表面在 26 μ s 左右发生运动, 磁压力急剧上升。以下有限元模拟计算中, 将 26 μ s 后的磁压力曲线作为磁压边界条件施加至二级套筒上。

3.2 内爆过程数值模拟

3.2.1 计算模型及材料参数

应用 LS-DYNA 开展套筒内爆压缩过程的数值模拟。由于内爆结构具有轴对称特点, 为减小计算量, 建立 1/4 计算模型(见图 9)。一级套筒由内向外的 4 层结构分别为螺旋层、环氧固结剂、回流层、环氧固结剂。炸药、螺旋层、回流层、二级套筒的网格数分别为 76 800、720、496、400, 内环氧层和外环氧层的网格数分别为 40 和 80。在模型左侧边界施加 x 方向位移约束, 下边界施加 y 方向位移约束。内爆磁压力边界条件通过 *LOAD_SEGMENT_SET 关键字施加到金属套筒单元上。

对于炸药, 采用高能炸药引爆燃烧材料模型, 用 JWL 状态方程描述爆轰冲击过程中压力 p_e 、比内能 E 及相对体积 V 的关系, 方程形式为

$$p_e = A \left(1 - \frac{\omega}{R_1 V} \right) e^{-R_1 V} + B \left(1 - \frac{\omega}{R_2 V} \right) e^{-R_2 V} + \frac{\omega}{V} E \quad (1)$$

式中: A 、 B 、 ω 、 R_1 、 R_2 为 JWL 状态方程参数。炸药参数列于表 1, 其中 ρ 为密度, D 为爆速, p_{CJ} 为爆压。

表 1 Comp B 炸药的模型参数

Table 1 Model parameters of Comp B explosive

ρ /(g·cm ⁻³)	D /(km·s ⁻¹)	A /GPa	B /GPa	R_1	R_2	ω	E /MPa	p_{CJ} /GPa	V
1.717	7.98	524.23	7.68	4.2	1.1	0.34	85	29.5	1

对于复合密绕螺线管套筒中的环氧材料, 使用流体弹塑性模型 *MAT_ELASTIC_PLASTIC_HYDRO 和 Grüneisen 状态方程描述, 其中材料的静水压 p_s 为

$$p_s = \frac{\rho_0 C^2 \mu \left[1 + \left(1 - \frac{\gamma_0}{2} \right) \mu - \frac{a}{2} \mu^2 \right]}{\left[1 - (S_1 - 1) \mu - S_2 \frac{\mu^2}{\mu + 1} - S_3 \frac{\mu^3}{(\mu + 1)^2} \right]^2} + (\gamma_0 + a\mu) E \quad (2)$$

式中: ρ_0 为初始密度, C 为冲击波速度-粒子速度(u_s - u_p)曲线的截距, S_1 、 S_2 、 S_3 为 $u_s(u_p)$ 展开式的系数, γ_0 为 Grüneisen 常数, a 为 γ_0 的一阶体积修正, $\mu = \rho/\rho_0 - 1$ 。环氧树脂材料参数如表 2 所示, 其中 G 为剪切模量, σ_Y 为屈服应力。

复合密绕螺线管的螺旋层、回流层以及二级套筒均由漆包铜线和环氧树脂构成, 差别仅在于漆包

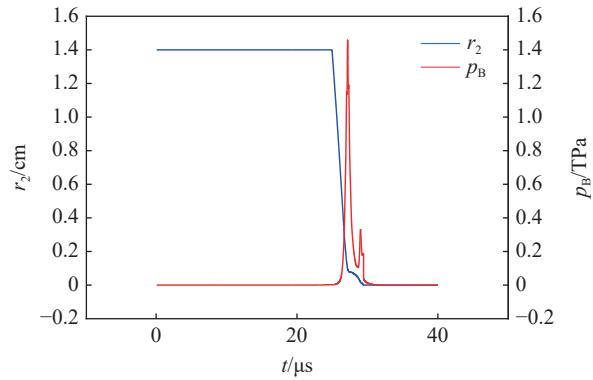


图 8 二级套筒内径及磁压力时程曲线

Fig. 8 Time-history of the inner diameter and the magnetic pressure of the secondary sleeve

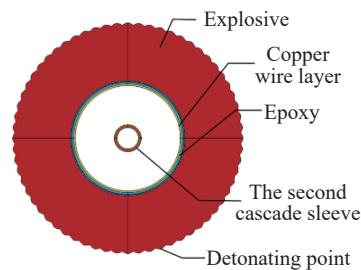


图 9 内爆压缩过程数值模型

Fig. 9 Numerical model of the implosion compression

铜线的排列角度。对这3部分结构,也使用流体弹塑性材料模型和Grüneisen状态方程进行描述,在模拟计算中密度通过体积分数计算得出,具体参数见表3。

表2 环氧材料模型参数

Table 2 Model parameters of epoxy material

$\rho/(\text{g}\cdot\text{cm}^{-3})$	G/GPa	σ_y/GPa	$C/(\text{km}\cdot\text{s}^{-1})$	S_1	S_2	S_3	γ_0	V
1.186	2.32	0.15	0.257	1.624	0	0	0.85	1

表3 漆包铜线排布层模型参数

Table 3 Model parameters of enameled copper wire arrangement layer

$\rho/(\text{g}\cdot\text{cm}^{-3})$	G/GPa	σ_y/GPa	$C/(\text{km}\cdot\text{s}^{-1})$	S_1	S_2	S_3	γ_0	V
7.268	24	0.02	0.394	1.490	0	0	2.02	1

3.2.2 套筒内爆压缩过程的模拟结果

在炸药环向设置64个起爆模块,炸药起爆和爆轰波发展过程如图10所示。起爆后炸药内部爆轰波出现包络结构,爆轰波在 $t=9.5\text{ }\mu\text{s}$ 左右到达一级套筒外表面,开始对套筒进行内爆压缩。

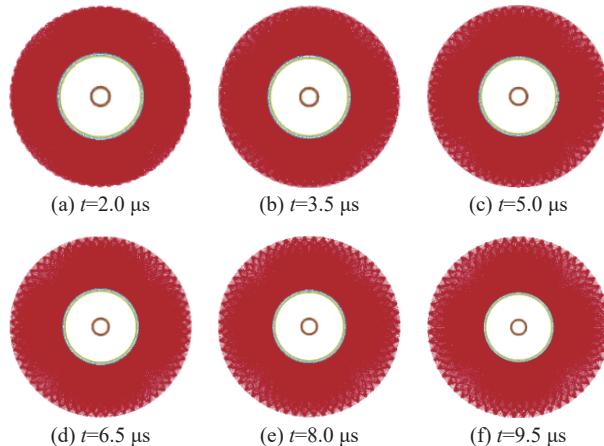


图10 炸药起爆过程

Fig. 10 Explosive detonation process

炸药爆轰波在 $t=9.5\text{ }\mu\text{s}$ 到达一级套筒外表面,推动套筒向内压缩。一级套筒在 $t=24.0\text{ }\mu\text{s}$ 时与二级套筒发生碰撞,驱动二级套筒向内继续压缩。根据磁压力时程曲线,磁压力在 $25.0\text{ }\mu\text{s}$ 后开始作用于套筒内表面,一级和二级套筒的形貌变化如图11所示。整个内爆压缩过程持续稳定进行,数值模拟结果表明套筒未出现结构失稳与垮塌情况。

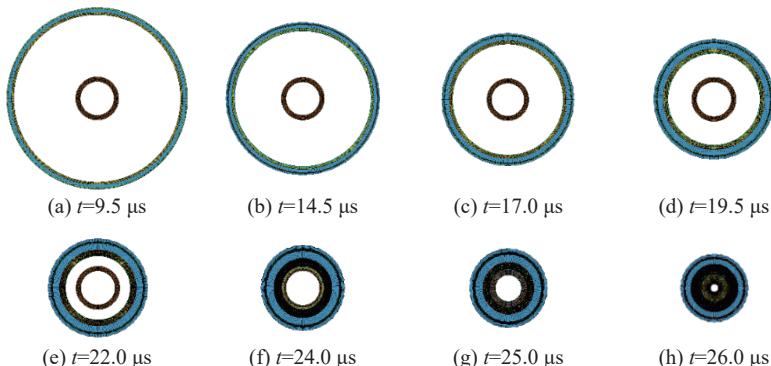


图11 套筒收缩过程云图

Fig. 11 Diagram of sleeve shrinking process

图12给出了一级和二级套筒的界面速度时程曲线。与二级套筒碰撞前,一级套筒速度达到4.5 km/s。碰撞后,二级套筒外层速度峰值约为4.0 km/s,内层速度峰值约为6.6 km/s,由于高速碰撞产生了复杂的应力波作用,套筒将经历压缩与卸载瞬态过程,界面速度出现振荡,直至发生会聚反弹。

3.3 套筒压缩稳定性的影响因素分析

3.3.1 起爆点对压缩稳定性的影响

高速摄影图像(见图7)揭示,炸药环形多点起爆将在套筒外表面产生显著的周期性冲击扰动,起爆点数量可能直接影响内爆后期套筒的界面不稳定性发展。计算模型中,设置环向起爆点数n分别为16、32、64,图13给出了不同时刻环向角度θ在0~π/2范围内套筒内表面速度分布。计算结果显示,随着起爆点数的增加,套筒内表面速度的扰动呈减小趋势。当环向起爆点数为16和32时,界面速度呈典型的周期性振荡分布;当起爆点数增加至64时,速度的周期性振荡消失,界面速度呈现随机涨落。

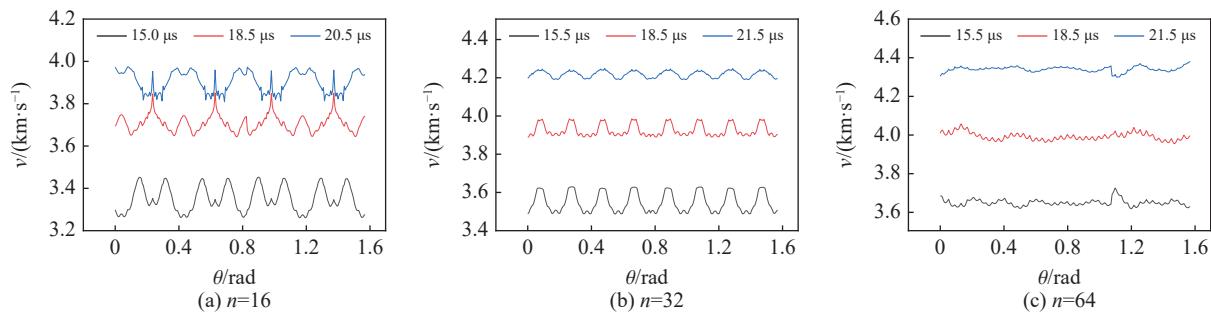


图13 起爆点数增加对套筒内表面界面速度分布的影响

Fig. 13 Influence of increasing initiation points on the velocity distribution of the inner surface of the sleeve

为了直观显示起爆点数对复合密绕螺线管套筒界面不稳定性发展的影响,计算了一级套筒内表面速度方差(δ)随时间(t)的变化曲线,如图14所示。起爆10 μs后套筒内表面开始运动,爆轰波携带的周期性扰动导致界面速度方差迅速增长达到峰值,随着套筒的惯性压缩运动,速度方差呈现衰减且振荡走势。当n=16时,速度方差峰值为0.037,达到峰值后方差的振荡幅值仍保持高位,呈现不规则发展趋势;当n=32时,速度方差峰值为0.012,方差达到峰值后小幅攀升,然后呈单调下降趋势;当n=64时,速度方差峰值低至0.003,方差下降后基本稳定在0.002的较低水平。计算结果表明:增加环向起爆点数可以显著降低界面速度方差峰值,有效抑制内爆套筒界面不稳定性发展。

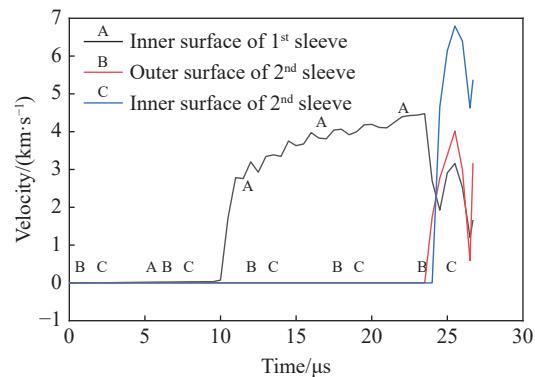


图12 套筒界面速度时程曲线

Fig. 12 Time-history curves of sleeve interface speed

计算模型中,设置环向起爆点数n分别为16、32、64,图13给出了不同时刻环向角度θ在0~π/2范围内套筒内表面速度分布。计算结果显示,随着起爆点数的增加,套筒内表面速度的扰动呈减小趋势。当环向起爆点数为16和32时,界面速度呈典型的周期性振荡分布;当起爆点数增加至64时,速度的周期性振荡消失,界面速度呈现随机涨落。

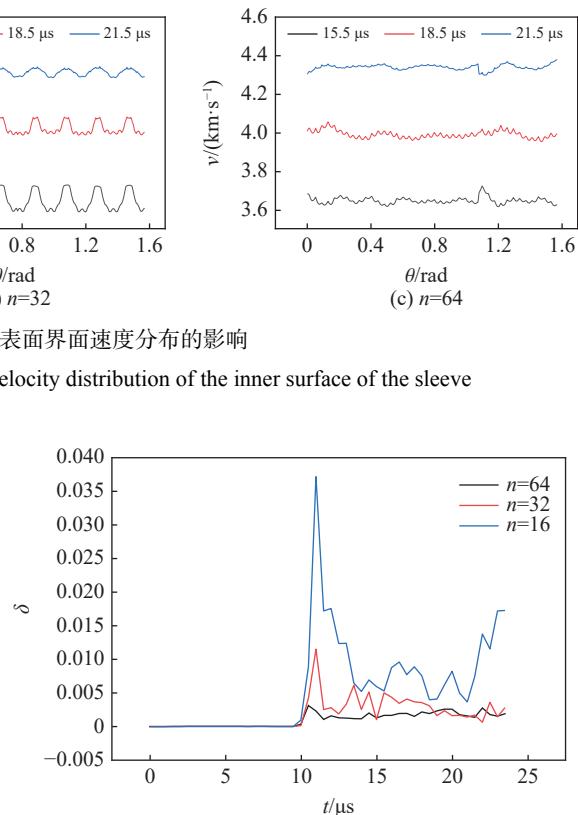


图14 起爆点数不同时套筒界面速度方差时程曲线

Fig. 14 Time-history curves of the velocity variance on the sleeve interface with various number of the initiating points

为了进一步揭示炸药的非均匀加载效应,图15给出了炸药内界面的环向速度分布方差。比较图14和图15可以看出,当起爆点数相同时,炸药内界面与套筒内界面的速度方差峰值基本一致,说明套筒界面速度的初始扰动主要来自于炸药爆轰波。

3.3.2 结构优化设计探讨

为研究套筒强度对炸药爆轰波初始冲击扰动的抑制作用,在数值模拟程序中将漆包铜线排列层的强度增加至20 MPa。复合密绕螺线管套筒的整体强度取决于环氧固结剂的黏结性质。当环向64点起爆时,计算结果(见图16)表明,漆包线层强度对套筒界面稳定性的作用可忽略不计。

多层密绕螺线管套筒的外层环氧树脂不仅增加螺线管的结构稳定性,也具有衰减炸药强爆轰化学峰的作用,有利于保持套筒的冲击压缩稳定性。为进一步优化炸药强爆轰驱动套筒的结构设计,计算模型中在套筒与炸药之间分别添加1.0 mm厚的环氧树脂层和空腔。当炸药环向设置64个起爆点时,套筒内界面速度方差计算曲线(见图17)表明,相比于环氧缓冲层,空腔构型显著地降低了冲击扰动峰值,并且后续速度方差涨落维持在较低的水平。因此,在螺线管套筒前设置1~2 mm的空腔将有效地抑制炸药爆轰波引入的初始冲击扰动。

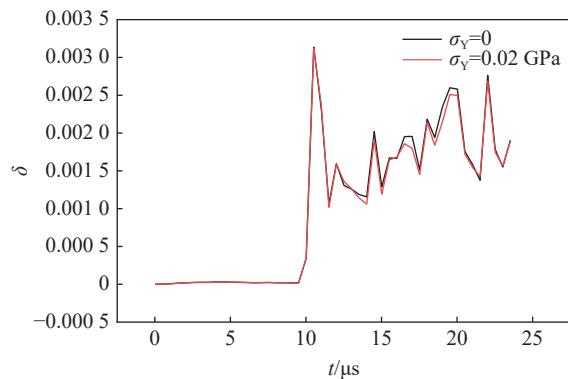


图16 强度不同时套筒界面速度方差时程曲线

Fig. 16 Time-history curves of velocity variance on sleeve interface with different strengths

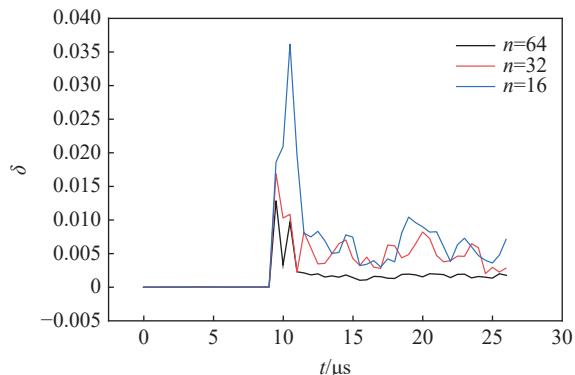


图15 起爆点数不同时炸药界面速度方差时程曲线

Fig. 15 Time-history curves of the velocity variance on the explosive interface with various number of initiating points

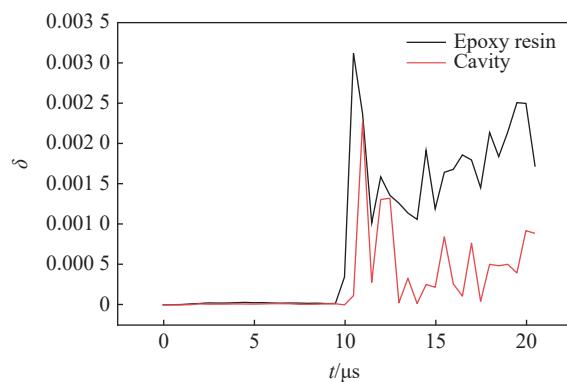


图17 缓冲介质不同时套筒界面速度方差时程曲线

Fig. 17 Time-history curves of velocity variance on sleeve interface with different buffer medium

4 结 论

对直径为150.0 mm的多层次密绕螺线管开展了初始磁场为4 T的炸药强爆轰柱面内爆压缩实验,得到了较清晰的套筒运动高速摄影图像。实验图像显示,炸药冲击压缩螺线管套筒时引入了显著的初始冲击扰动,虽然套筒内表面前沿形成离解的环氧层,但是金属结构未出现垮塌迹象。密绕螺线管内爆压缩过程中,套筒外层发展出16个环向周期分布的发光锥,与炸药起爆网络板的环向模块数一致。炸药爆轰波沿厚度方向传播75 mm后,多点起爆形成的包络结构仍未退化为均匀的平面(或柱面)爆轰波。炸药爆轰波阵面的周期扰动是导致套筒界面不稳定性发展的主要因素之一,值得深入研究。

利用显式动力学分析程序,对炸药驱动密绕螺线管内爆压缩过程进行数值模拟,计算结果显示了套筒的界面速度方差时程曲线。炸药多点网络起爆引入的初始冲击扰动将直接影响套筒的压缩稳定性,起爆点数的增加可以显著抑制界面失稳发展。同时,多层次密绕螺线管强度低,在炸药与复合套筒之间引入厚度为1~2 mm的空腔,将有效衰减初始爆轰波扰动。

感谢中国工程物理研究院流体物理研究所的全延锦、唐小松、匡学武、畅里华、何徽等在实验中提供的帮助!

参考文献:

- [1] ALTGILBERS L L, BROWM M D J, GRISHNAEV I, et al. 磁通量压缩发生器 [M]. 孙承纬, 周之奎译. 北京: 国防工业出版社, 2008.
- [2] ALTGILBERS L L, BROWM M D J, GRISHNAEV I, et al. Magnetocumulative generators [M]. Translated by SUN C W, ZHOU Z K. Beijing: National Defense Industry Press, 2008.
- [3] PAVLOVSKII A I. Reproducible generation of multimegagauss magnetic fields [C]//TURCHI P J. Megagauss Physics and Technology. New York: Plenum Press, 1980: 627.
- [4] GU Z W, LUO H, ZHANG H D, et al. Experimental research on the technique of magnetic flux compression by explosive cylindrical implosion [J]. Acta Physica Sinica, 2013, 62(17): 176–181.
- [5] BYKOV A I, DOLOTENKO M I. An MC-1 cascade magnetocumulative generator of multimegagauss magnetic fields: ideas and their realization [J]. Instruments and Experimental Techniques, 2015, 58(4): 531–538.
- [6] 张恒第. MC-1 型爆磁压缩发生器一维内爆: 磁流体力学模拟 [D]. 绵阳: 中国工程物理研究院, 2012.
- [7] ZHANG H D. 1D implosion and MHD simulation of MC-1 flux compression generator [D]. Mianyang: China Academy of Engineering Physics, 2012.

Compression Stability of Multi-Layer Composite Close-Wound Solenoid Driven by Explosive Implosion

LIU Yi, LI Jianming, ZHOU Zhongyu, PENG Hui, SONG Zhenfei, GU Zhuowei

(Institute of Fluid Physics, CAEP, Mianyang 621999, Sichuan, China)

Abstract: The tightly wound solenoid is the core component of a cascade explosive cylindrical implosion magnetic flux compression device. We designed a solenoid cylinder with composite structure, and carried out two-cascade implosion magnetic flux compression experiment. It is known that the growth of interfacial instability of the solenoid cylinder will determine the amplification of the magnetic field and/or magnetic compressive stress. In the implosion compression event, the projection images of the solenoid by high-speed photography revealed that the inner surface kept in a circle without visible collapse, but cyclic disturbances were observed on the outer surface resulting from explosive detonation. A 2D finite element model was built to study the instability growth of the solenoid under the explosive implosion. The simulation results displayed that the multi-point network detonation of the explosive played an important role on the solenoid instability. The instability growth can be effectively inhibited by both increasing the number of detonation points and introducing a 1–2 mm thick cavity between the explosive cylinder and the solenoid.

Keywords: implosion magnetic compression; composite densely wound solenoid; interfacial instability; cascade MC-1 device

内爆驱动式超高速发射技术的初步研究

王马法¹, HIGGINS Andrew J², 焦德志¹, 黄洁¹, 柳森¹

(1. 中国空气动力研究与发展中心, 四川 绵阳 621000;
2. 麦吉尔大学工程力学系, 魁北克 蒙特利尔 H3A2K6, 加拿大)

摘要: 为获得 10 km/s 左右的超高速发射能力, 以内爆发射器为研究对象, 利用 AUTODYN 2D 软件对口径为 8 mm 的内爆发射器进行有限元仿真分析, 获得了典型状态下的弹丸发射速度。研制了口径为 8 mm 的内爆发射器, 并在压缩管中填充 5 MPa 氮气进行实验, 分别获得了 0.55 g 铝合金弹丸 7.95 km/s 和 0.37 g 镁合金弹丸 10.28 km/s 的发射速度, 与有限元仿真计算结果的速度偏差分别为 15.3% 和 3.7%。结果表明, 设计的内爆发射器具备 10 km/s 发射能力, 满足空间碎片撞击和防护研究的超高速发射需求。

关键词: 发射技术; 超高速; 内爆驱动式

中图分类号: O521.3

文献标识码: A

随着空间科学的研究发展, 为进一步开展空间碎片毁伤效应、防护结构以及超高速碰撞等研究工作, 提出了 10 km/s 以上的超高速发射需求。国内外常用的发射技术(设备)包括: 二级/三级轻气炮、磁驱动飞片、聚能射流、等离子体加速器、激光驱动飞片装置等^[1-6]。其中二级轻气炮是目前应用最广泛、技术最为成熟的发射设备。然而, 受到炮体材料性能的限制, 二级轻气炮的稳定发射速度基本都低于 8 km/s, 如果超过该速度, 发射管将发生严重的烧蚀破坏^[7]。虽然有些发射技术能够实现 8 km/s 以上的超高速发射, 但是这些发射技术要么难以控制弹丸的质量和形状, 要么只能发射很薄的飞片状弹丸或质量很小的弹丸^[8], 因此将其应用到超高速碰撞实验研究中受到了一定的限制。在 20 世纪 60 年代, 内爆驱动式超高速发射技术已经实现了 2 g 弹丸 12.2 km/s 的发射速度^[9-10]; 进入 21 世纪后, 加拿大麦吉尔大学^[1, 11-13]又实现了 15 g 弹丸 7.5 km/s 左右的发射速度, 这是一项发射质量和速度都超过二级轻气炮的超高速发射技术, 能够满足空间碎片撞击的研究需求。

内爆驱动式超高速发射技术(国外有 Explosive hypervelocity launcher^[9]、Explosively driven gun^[10]、Implosion-driven launcher^[11-13]等不同说法, 国内也有炸药爆轰驱动高速激波管发射技术^[14]、炸药驱动枪^[15]等不同名称, 本文以 Implosion-driven launcher 说法为准, 简称内爆发射器)是一种利用炸药爆炸线性挤压压缩管内轻质气体, 通过被压缩的轻质气体驱动弹丸的一种发射技术^[11], 作用过程与二级轻气炮中活塞压缩高压轻质气体类似, 不同的是其活塞速度为炸药爆速。国内一些文献中对该技术进行了相关介绍, 但尚未见相关实验和仿真研究报道^[14-15]。

为了掌握内爆发射技术, 获得 10 km/s 以上的发射能力, 通过与加拿大麦吉尔大学的 Higgins 教授合作, 以 8 mm 口径内爆发射装置为研究对象, 对内爆发射器的发射能力和研究方法进行了初步探索, 开展了内爆发射器内弹道分析和结构设计, 并利用 AUTODYN 软件对设计结构进行了初步仿真分析, 最终针对典型状态开展了初步验证实验。

* 收稿日期: 2019-12-23; 修回日期: 2020-01-20

基金项目: 国家自然科学基金(11802330)

作者简介: 王马法(1986—), 男, 博士, 助理研究员, 主要从事超高速发射与毁伤技术研究。

E-mail: fujianwmf@163.com

通信作者: 柳森(1967—), 男, 博士, 研究员, 主要从事超高速碰撞与动能毁伤研究. E-mail: hvi@cardc.cn

1 内爆发射器工作原理

内爆发射器主要由炸药线性压缩段、高压段和发射管组成,其中炸药线性压缩段包括外壳、装药、压缩管、驱动气体等,发射器的结构如图1所示,作用过程如图2所示。左端炸药起爆后,压缩管向内塌缩,形成锥形结构,当炸药爆轰波传播时,锥形结构向右运动并压缩驱动气体。该过程与二级轻气炮中活塞压缩高压轻质气体类似,因此该锥形结构可看成虚拟活塞,当冲击波到达弹丸底部时,高压驱动气体开始推动弹丸加速运动。

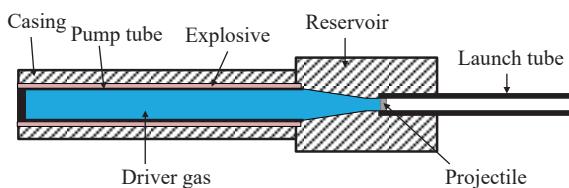


图1 内爆式超高速发射器结构示意图^[11]

Fig. 1 Structural diagram of implosion-driven hypervelocity launcher^[11]

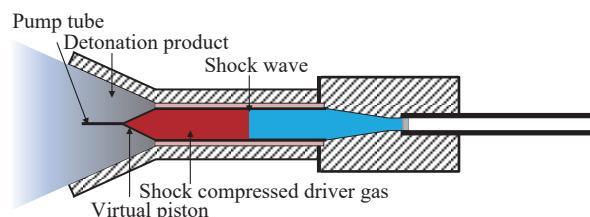


图2 内爆式超高速发射器工作原理^[11]

Fig. 2 Working diagram of implosion launcher after ignition^[11]

2 内爆发射过程的仿真分析

设计了内径16 mm、长度500 mm的压缩管和内径8 mm、长度300 mm的发射管组成的内爆发射器,高压段采用锥段连接压缩管和发射管,锥段半锥角度为5°。采用AUTODYN软件对该内爆发射器的工作过程进行了仿真计算。

2.1 仿真模型及方法

采用有限元中的流固耦合方法进行仿真。将模型分为Euler模型和Lagrange模型两个部分:Euler模型包括填充的氦气、压缩管、装药以及周围空气介质;Lagrange模型包括压缩段外壳、高压段、发射管以及弹丸。外壳、高压段、压缩管、发射管均采用4340钢。本构模型采用Johnson Cook模型,状态方程为Linear。装药采用爆速为7 km/s左右的季戊四醇四硝酸酯(PETN),状态方程为JWL;驱动气体为氦气,采用理想气体状态方程;弹丸本构模型为Steinberg Guinan,状态方程为Shock。材料参数均选自AUTUDYN数据库。

为了使弹丸能够约束初始状态的高压氦气,在弹丸与高压气体交界处增加一层Lagrange网格。该网格与高压段和弹丸均采用共节点的方式固定,并将该部分的材料失效应变设置为0.5,当达到失效应变时自动删除该部分的网格,使其不会对弹丸发射造成过大影响。

2.2 仿真计算相关参数

针对弹丸材料和充气压力两个参数,共进行4个状态的仿真计算,相关参数以及各状态下获得的弹丸出炮口速度见表1。

表1 不同弹丸材料和充气压力下仿真计算参数

Table 1 Simulation parameters of launchers with different projectile materials and filling pressure

No.	Material of projectile	Filling pressure/MPa	Diameter of launch tube/mm	Diameter of pump tube/mm	Muzzle velocity/(km·s ⁻¹)
1	Aluminum alloy	4	8	16	8.62
2	Aluminum alloy	5	8	16	9.17
3	Aluminum alloy	6	8	16	9.25
4	Magnesium alloy	5	8	16	10.66

2.3 仿真结果

2.3.1 内爆发射器工作过程

图3给出了内爆式超高速发射装置发射铝弹丸的仿真结果,其中弹丸尺寸为 $\varnothing 8\text{ mm} \times 4\text{ mm}$,质量为0.55 g。零时刻从装药的左端面开始点火,装药爆炸后开始挤压压缩管形成锥形活塞,并在氦气(初始压力5 MPa)中形成压力达到500 MPa左右的冲击波向右传播,外壳达到失效后被删除,如图3(b)所示,压力超过1 GPa时显示为红色;在55 μs 左右,冲击波到达弹丸底部反射,形成峰值压力高达5 GPa的气体推动弹丸加速运动;70 μs 左右炸药爆轰结束;在108 μs 左右弹丸离开发射管,达到最高发射速度。

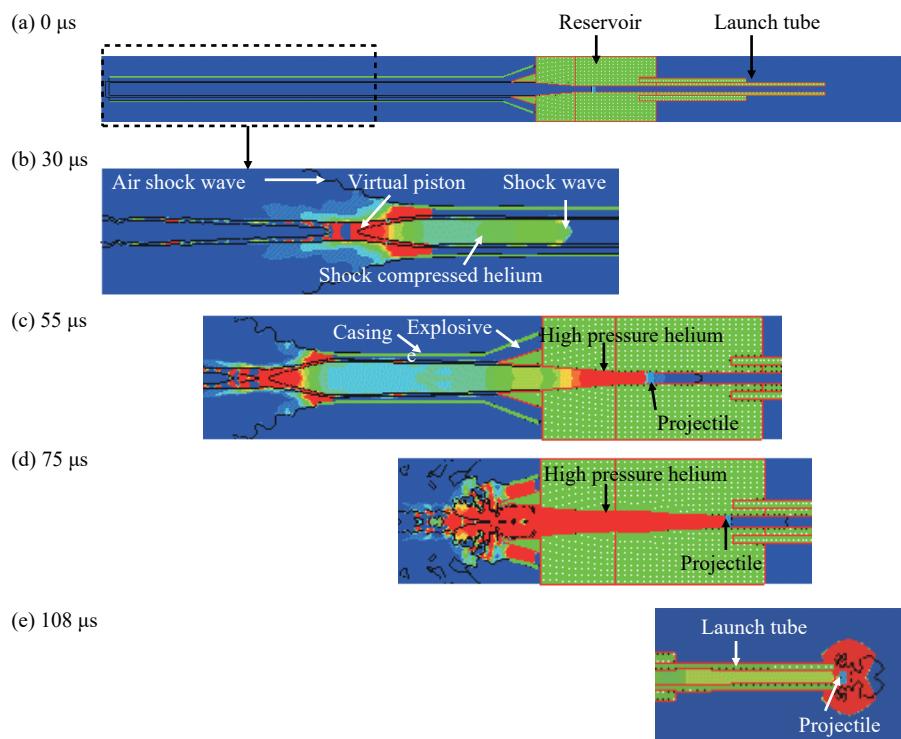


图3 8 mm口径内爆式发射装置工作过程
Fig. 3 Launch process of 8 mm caliber implosion launcher

2.3.2 不同初始充气压力下弹丸的发射速度

图4给出了充气压力分别为4、5和6 MPa状态下铝弹丸的速度-时间历程。从速度-时间曲线上可以看到,弹丸加速过程有较为明显的二次冲击加载。初始冲击加载是由先导冲击波到达弹丸底部产生的;二次冲击加载是弹丸底部反射的冲击波到达左端后再次反射冲击波,该冲击波追赶上弹丸产生的。从表1中的数据可知,4、5和6 MPa充气压力下弹丸的出炮口速度分别为8.62、9.17和9.25 km/s。可以看到,炮口速度随充气压力的增加而增加,但增加幅度缩小。可能是由于当充气压力从5 MPa增加至6 MPa时,压缩管、高压段内壁的膨胀显著增加,削弱了驱动压力增加的增速效果。

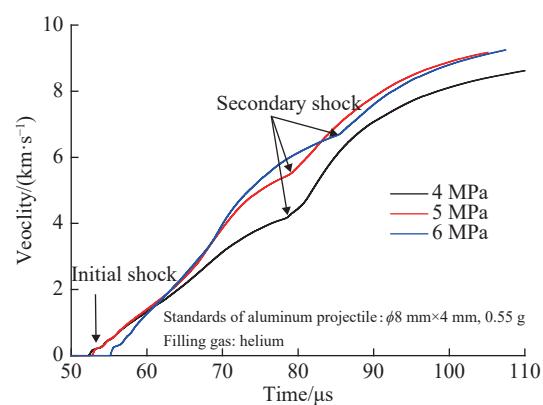


图4 不同充气压力下铝弹丸的速度-时间历史
Fig. 4 Velocity-time history of aluminum projectiles with different filling pressure

2.3.3 不同弹丸材料的发射速度

根据建立的仿真模型对尺寸为 $\varnothing 8\text{ mm} \times 4\text{ mm}$ 的铝合金弹丸和镁合金弹丸进行发射过程的计算, 初始填充5 MPa氦气, 计算结果如图5所示。0.55 g铝合金弹丸的最终发射速度为9.17 km/s; 0.37 g镁合金弹丸的发射速度为10.66 km/s, 比铝合金弹丸速度高1.49 km/s。

3 实验设计及结果

3.1 发射器结构

发射器总长度为914 mm, 最大部位直径为81.4 mm, 主要包括发射管、发射管护套、高压段、外壳、压缩管、弹丸和装药等。其中: 发射管内径为8 mm, 长度为304 mm; 压缩管内径为16 mm, 长度为495 mm。装药为柱壳装药, 厚度约为5 mm, 装药量约为300 g, 采用两层以黑索金(RDX)为基底的片状挠性炸药包裹而成, 挠性炸药的爆速为7.1 km/s。弹丸直径为8 mm, 高度为4 mm。弹丸材料有两种, 分别是铝合金和镁合金, 其中铝合金弹丸质量约为0.55 g, 镁合金弹丸质量约为0.37 g, 安装完成后的发射器如图6所示。



图6 内爆式超高速发射器实物

Fig. 6 Image of implosion-driven hypervelocity launcher

3.2 实验装置总体布局

实验装置布局如图7所示。实验装置主要包括发射器、测试系统、真空系统和防护系统等。发射器放置在厚壁防护筒内, 防止爆炸产生的碎片向外飞散, 损伤实验装置和设备。采用激光测速系统和

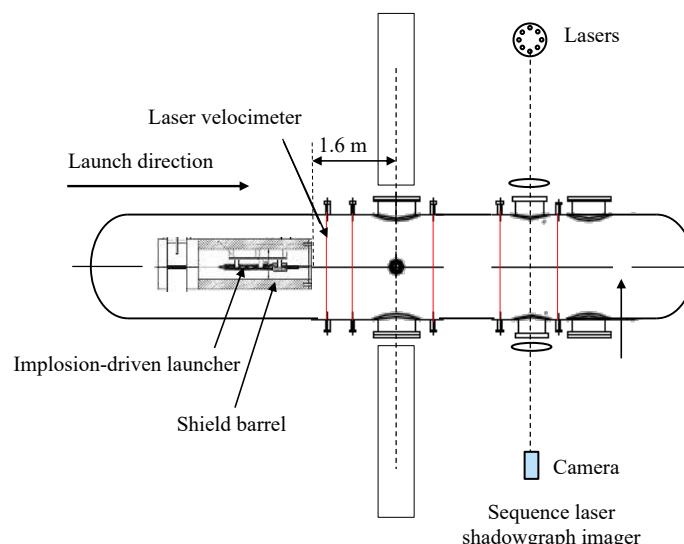


图7 实验装置布局示意图

Fig. 7 Layout of experimental equipment

靶网测速装置等测量弹丸的发射速度,并采用序列激光阴影成像仪拍摄模型的飞行姿态和形貌。实验中发射器压缩管内充5 MPa氦气,从端面起爆装药。

3.3 实验结果与分析

共开展了7次实验,其中铝合金弹丸实验3次,镁合金弹丸实验4次,具体实验参数如表2所示。

表2 内爆发射器实验相关参数

Table 2 Parameters of the implosion-driven launchers in tests

No.	Material of projectile	Mass of projectile/g	Filling pressure/MPa	Diameter of launch tube/mm	Diameter of pump tube/mm	Maximum velocity/(km·s ⁻¹)
ILT04						7.26
ILT07	Aluminum alloy	0.55	5	8	16	6.96
ILT14						7.95
ILT08						9.73
ILT09						10.28
ILT11	Magnesium alloy	0.37	5	8	16	9.36
ILT12						9.77

3.3.1 回收发射器

实验后的发射器压缩管和外壳完全碎裂,高压段外壳明显膨胀变形并出现裂纹,回收的典型发射器装置如图8所示。



(a) Fragments of the pump tube and casing

(b) The reservoir and launching tube

图8 ILT08实验发射器装置回收

Fig. 8 Recycle launcher of test ILT08

3.3.2 铝合金弹丸速度测试结果

3次铝合金弹丸实验结果如图9所示,其中横坐标为测点位置离炮口的距离,纵坐标为测得的速度,各次实验测得的最大速度见表2。其中,实验中测得的弹丸最高出炮口速度为7.95 km/s,比仿真预测速度9.17 km/s低1.22 km/s,相对偏差为15.3%。实验速度偏低可能是许多因素共同影响的结果,例如装置加工误差、装药松紧程度、发射管与弹丸有摩擦阻力等,而仿真状态则相对理想,没有考虑这些因素的影响。另外,实验中弹丸的速度也有1 km/s左右的偏差,挠性炸药装填、装药爆轰的圆周同步性、发射管与弹丸的配合程度等问题都会对实际发射速度造成一定影响,导致重复实验出现一定的偏差。

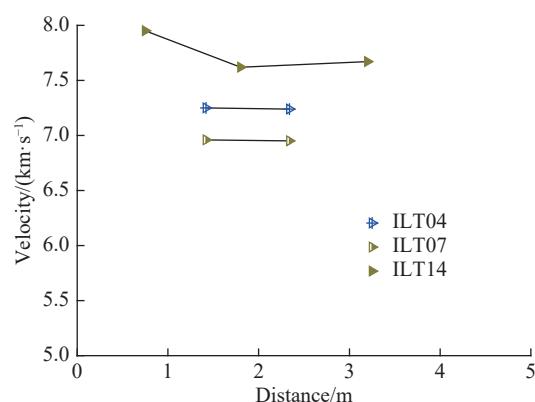


图9 0.55 g铝合金弹丸速度测试结果

Fig. 9 Experimental muzzle velocities of 0.55 g aluminum projectile

3.3.3 镁合金弹丸速度测试结果

4次镁合金有效实验获得的速度结果如图10所示,实验测得的最大速度见表2。4次实验获得的最高发射速度与仿真预测速度10.66 km/s非常接近,相对偏差为3.7%。镁合金弹丸在实验中的速度偏差为1 km/s左右,产生偏差的原因可能与铝合金弹丸相同。

3.3.4 弹丸成像结果

通过超高速八序列激光阴影成像仪拍摄弹丸在实验过程中的飞行情况,图11为3次实验拍摄的照片,其中ILT11、ILT12为镁合金弹丸,ILT14为铝合金弹丸。在图11中可以看到,实验过程中的弹丸仍保持为一个整体弹丸,但存在一定程度变形,其中实验ILT12的弹丸变形非常明显。发生变形的原因可能是材料强度不够,也可能是发射器结构存在一定的缺陷,有待进一步深入研究。

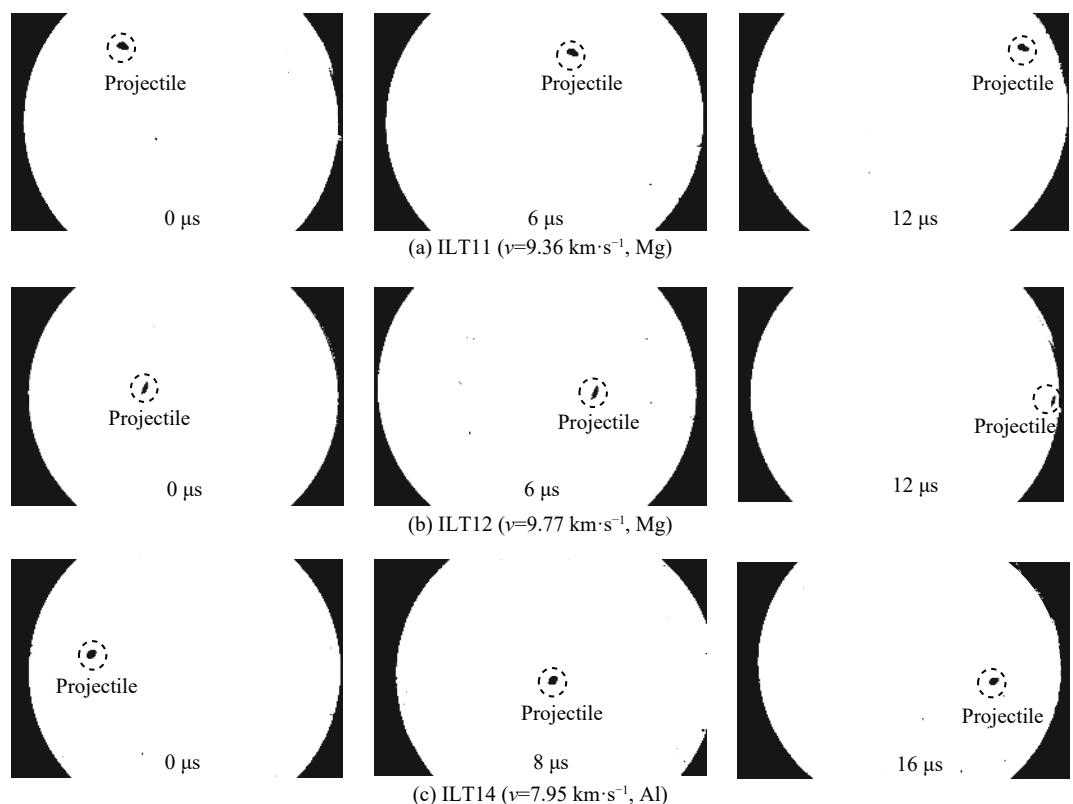


图11 弹丸序列激光阴影成像结果

Fig. 11 Projectile photos shot by sequence laser shadowgraph imager

4 结 论

通过与加拿大麦吉尔大学合作,初步设计了8 mm口径内爆式超高速发射器结构,采用AUTODYN软件对内爆式超高速发射器内弹道进行数值模拟,所获得的发射器作用过程中弹底压力最高可达5 GPa,并计算了铝合金弹丸和镁合金弹丸的发射速度。最终通过开展验证实验,证明了设计的

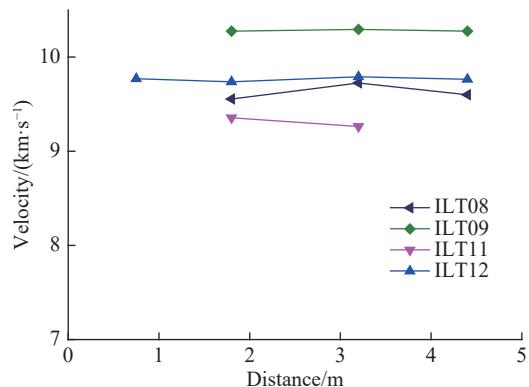


图10 0.37 g 镁合金弹丸速度测试结果

Fig. 10 Experimental muzzle velocities of 0.37 g magnesium projectile

内爆发射技术能够将尺寸为 $\varnothing 8\text{ mm} \times 4\text{ mm}$ 、质量为0.37 g的柱状镁合金弹丸发射到10.28 km/s, 将尺寸为 $\varnothing 8\text{ mm} \times 4\text{ mm}$ 、质量为0.55 g的柱状铝合金弹丸发射到7.95 km/s。实验获得的发射速度与数值仿真结果吻合较好。实验结果也证明了内爆式超高速发射技术的可行性, 在空间碎片的撞击与防护方面具有较强的应用前景。利用超高速八序列激光阴影成像仪拍摄弹丸的飞行情况, 获得了弹丸发射后的形状, 发现发射后的弹丸是一个整体弹丸, 但与原始柱形结构相比, 存在不同程度的变形。未来将深入探索提高内爆发射器速度的方法, 分析弹丸发生变形的原因, 并在保持弹丸初始形状的发射器结构设计等方面开展进一步的研究工作。

感谢中国空气动力研究与发展中心的罗庆、龙耀、宋强、周毅、覃金贵、李俊玲、姜林、邹胜宇、李文光、廖强、刘晓龙、廖富强、丁建文等同事在实验过程中提供的无私帮助。

参考文献:

- [1] HUNEAULT J, LOISEAU J, HIGGINS A J. Coupled lagrangian gasdynamic and structural hydrocode solvers for simulating an implosion-driven hypervelocity launcher [C]//51st AIAA Aerospace Science Meeting Including the New Horizons Forum and Aerospace Exposition. Grapevine, 2013: 1–21.
- [2] 王翔, 王青松, 彭建祥, 等. 三级炮超高速发射技术在空间碎片防护研究中的初步应用 [C]//第八届全国空间碎片学术交流会. 北京, 2015: 350–358.
WANG X, WANG Q S, PENG J X, et al. Preliminary application of three-stage gas gun hypervelocity launcher techniques in space debris protection research [C]//8th National Symposium on Space Debris. Beijing, 2015: 350–358.
- [3] 张旭平, 谭福利, 王桂吉, 等. 基于CQ4的磁驱动10 km/s以上超高速飞片发射 [C]//第八届全国空间碎片学术交流会. 北京, 2015: 385–390.
ZHANG X P, TAN F L, WANG G J, et al. Magnetically driven flyer plates to velocities above 10 km/s on CQ4 [C]//8th National Symposium on Space Debris. Beijing, 2015: 385–390.
- [4] 文尚刚, 赵峰, 王建, 等. 气炮加载下炸药强爆轰驱动技术的初步实验研究 [J]. *高压物理学报*, 2011, 25(1): 36–40.
WEN S G, ZHAO F, WANG J, et al. Primary experimental study on driving technique of strong detonation using gas gun [J]. *Chinese Journal of High Pressure Physics*, 2011, 25(1): 36–40.
- [5] 赵士操, 宋振飞, 姬广富, 等. 一种基于二级轻气炮平台的超高速弹丸发射装置设计 [J]. *高压物理学报*, 2011, 25(6): 557–564.
ZHAO S C, SONG Z F, JI G F, et al. A novel design of a hypervelocity launcher based on two-stage gas gun facilities [J]. *Chinese Journal of High Pressure Physics*, 2011, 25(6): 557–564.
- [6] 邢柏阳, 刘荣忠, 郭锐, 等. 强爆轰驱动超高速碎片发射装置设计因素分析 [J]. 国防科技大学学报, 2018(4): 151–158.
XING B Y, LIU R Z, GUO R, et al. Analysis on design factors of hypervelocity fragment launcher using strong detonation drive [J]. *Journal of National University of Defense Technology*, 2018(4): 151–158.
- [7] 林俊德, 张向荣, 朱玉荣, 等. 超高速撞击实验的三级压缩气炮技术 [J]. *爆炸与冲击*, 2012, 32(5): 483–489.
LIN J D, ZHANG X R, ZHU Y R, et al. The technique of three-stage compressed-gas gun for hypervelocity impact [J]. *Explosion and Shock Waves*, 2012, 32(5): 483–489.
- [8] 王青松, 王翔, 郝龙, 等. 三级炮超高速发射技术研究进展 [J]. *高压物理学报*, 2014, 28(3): 340–345.
WANG Q S, WANG X, HAO L, et al. Progress on hypervelocity launcher techniques using a three-stage gun [J]. *Chinese Journal of High Pressure Physics*, 2014, 28(3): 340–345.
- [9] MOORE J E T. Explosive hypervelocity launchers: PIFR-051 [R]. Physics International Company, 1968.
- [10] WATSON J D. High-velocity explosively driven guns: CR-1533 [R]. Physics International Company, NASA, 1970.
- [11] LOISEAU J, HUNEAULT J, HIGGINS A J. Development of a linear implosion-driven hypervelocity launcher [J]. *Procedia Engineering*, 2013, 58: 77–87.
- [12] HUNEAULT J, LOISEAU J, HILDEBRAND M, et al. Down-bore velocimetry of an explosively driven light-gas gun [J]. *Procedia Engineering*, 2015, 103: 230–236.

- [13] HILDEBRAND M, HUNEAULT J, LOISEAU J, et al. Down-bore two-laser heterodyne velocimetry of an implosion-driven hypervelocity launcher [J]. AIP Conference Proceedings, 2017, 1793: 160009.
- [14] 田杨萌, 王莹. 炸药爆轰驱动高速击波管发射技术 [J]. 弹箭与制导学报, 2003, 23(3): 221–224.
- TIAN Y M, WANG Y. A propulsion technology of the fast shock tube driven by high explosive [J]. Journal of Projectiles Rockets Missiles and Guidance, 2003, 23(3): 221–224.
- [15] 北京工业学院八系. 爆炸及其作用 (上册) [M]. 北京: 国防工业出版社, 1979: 214–219.
- No.8 Department of Beijing Industrial College. Explosion and its application [M]. Beijing: National Defense Industrial Press, 1979: 214–219.

Preliminary Simulation and Experimental Study on Implosion-Driven Hypervelocity Launching Technology

WANG Mafa¹, HIGGINS Andrew J², JIAO Dezhi¹, HUANG Jie¹, LIU Sen¹

(1. China Aerodynamics Research and Development Center, Mianyang 621000, Sichuan, China;

2. Department of Mechanical Engineering, McGill University, Montreal H3A2K6, Quebec, Canada)

Abstract: For achieving the hypervelocity launching of about 10 km/s, an implosion-driven launcher with the caliber of 8 mm diameter was analyzed using the AUTODYN 2D software. The projectile launching velocities under typical operation condition were obtained. Based on numerical simulation results, several tests of the implosion-driven launcher with the caliber of 8 mm diameter were carried out. The driven gas of helium with the pressure of 5 MPa was filled in the compressed pipe. The experimental results show that the 0.55 g aluminum and 0.37 g magnesium projectiles could be launched to the velocity of 7.95 km/s and 10.28 km/s, respectively, and the relative deviations between the numerical and experimental results are 15.3% and 3.7%, respectively. Consequently, the designed implosion-driven launcher can realize the launching of the projectiles to 10 km/s or even higher which could provide a new ground-test method for investigating the impact features of orbital debris and corresponding shield technologies.

Keywords: launching technique; hypervelocity; implosion-driven

太帕压力下声速连续测量的高精度靶制备

张红平¹, 张黎², 罗斌强², 李建明², 王峰³, 谭福利², 李牧⁴

(1. 深圳技术大学大数据与互联网学院, 广东 深圳 518118;
2. 中国工程物理研究院流体物理研究所, 四川 绵阳 621999;
3. 中国工程物理研究院激光聚变研究中心, 四川 绵阳 621999;
4. 深圳技术大学先进材料测试技术研究中心, 广东 深圳 518118)

摘要: 声速反映小应力扰动在介质中的传播特征, 是材料在一定热力学状态下的重要属性, 是研究材料状态方程、相变(包括固-固相变)以及物质构成等的重要手段。超高压声速测量对于地球和行星物理、惯性约束聚变以及第一性原理的建模等多个物理研究领域具有重要意义。基于侧向稀疏方法连续测量冲击绝热线上的体声速是获取超高压声速的全新方法。该方法对靶的制备要求很高。为此, 详细介绍了基于该方法的靶的制备要求, 探讨了制备工艺、测量技术以及影响实验精度的主要因素, 并根据“神光Ⅲ”原型装置的实验结果进行相应的分析。

关键词: 声速; 高压; 页贡纽; 靶物理

中图分类号: O521.3

文献标识码: A

材料在高压下的响应特性对于地球和行星物理、惯性约束聚变以及第一性原理的建模等多个物理研究领域具有重要意义^[1-4]。在材料响应特性的各种表征中, 声速反映小应力扰动在介质中的传播特征, 携带了材料的模量信息, 是材料在一定热力学状态下的一种力学属性, 是研究材料状态方程、本构关系、相变(包括固-固相变)以及物质构成等的重要手段^[3, 5-9]。

对于大多数透明材料, 当压力达到几百吉帕甚至太帕量级时, 冲击波后的状态为流体状态(声速等价于体声速), 电介质会发生绝缘体金属相变或者处于电离状态, 冲击波阵面表现出很高的反射率, 速度干涉仪可以直接对冲击波速度进行测量^[10]。在满足一维平面冲击加载条件下, 通过靶的设计引入侧向稀疏波(声波), 稀疏区域压力下降, 受影响区域的冲击波速度下降, 冲击波面在稀疏区发生弯曲。利用线成像 VISAR(Velocity interferometer system for any reflector)测量冲击波阵面速度历史已经成为冲击动力学领域的常用手段, 但是线成像 VISAR 携带的空间分辨能力却长期被忽略^[9, 11]。当线成像 VISAR 的物镜参数 f/D 较大时, 测量面微小的倾斜会使探测光的回光无法进入成像透镜, 导致信号丢失, 所以当引入侧向稀疏时, 冲击波波阵面发生弯曲, 弯曲部分在 VISAR 像面不会有反射信号, 因而可以在记录系统中测到平面冲击波和弯曲冲击波的边界随时间的横向位移。该位移数据反映了冲击波后侧向小扰动的传播过程(声速), 可与冲击波速度直接关联, 进而获得主冲击绝热线上的连续声速变化曲线。更为详细的原理参考文献^[9]。

基于侧向稀疏法的连续声速测量技术对物理驱动条件和靶的制备提出了很高的要求。本工作主要针对靶的制备问题, 探讨靶的制备要求, 研究靶的制备工艺、测量技术以及影响实验精度的主要因素, 为基于侧向稀疏法的连续声速测量提供技术保障。

* 收稿日期: 2020-03-06; 修回日期: 2020-04-13

基金项目: 国家自然科学基金(11972330, 11974321, 11772310, 11472255); 国防基础科研科学挑战专题(TZ2016001)

作者简介: 张红平(1981—), 女, 博士, 副教授, 主要从事冲击动力学及材料物性研究. E-mail: zhp0506@163.com

通信作者: 李牧(1979—), 男, 博士, 教授, 主要从事高功率激光加载技术和极端条件下的物理研究.

E-mail: limu@sztu.edu.cn

1 实验设计要求

根据侧向稀疏法连续声速测量原理,物理驱动条件和靶的制备要求较为苛刻,主要体现在以下3方面。

(1)从靶的结构设计和驱动激光的控制上实现入射冲击波较高的平面性和平整性。侧向稀疏的主要特征是冲击波面由理想平面到边侧出现弯曲,如果入射冲击波的平面性和平整性不够好,将导致信号误差放大,因此要考虑驱动激光的空间均匀性和靶的空间均匀性及平整性。

(2)通过靶和驱动条件的优化实现对辐射预热和致盲的显著抑制,获得清晰、干净的实验信号。高功率激光驱动过程会产生超热电子和X射线辐射,形成两种对实验不利的因素,即预热和致盲。预热会改变样品的初始热力学条件,温度、压力和比容都会发生变化,尤其是比容的变化会造成冲击实验测量结果严重偏离主雨贡纽线。致盲是指靠近加载面的透明样品突然对探测激光明显地吸收,导致回光信号极弱。致盲的原因非常复杂,也存在较大的争议。我们认为,对不同的样品,致盲机制存在差异,主要与超热电子有关,在烧蚀材料的选择上也尽可能降低高能X射线的剂量。解决致盲问题是获得信号的最低要求,解决预热问题是获得可信数据的关键。

(3)保证冲击波进入样品的同时引入侧向稀疏波,并在观测系统中实时获得高精度时空分辨图像。在与冲击波传播方向垂直的横向引入稀疏波的最直接方法:让冲击波从基板(用以支撑待测样品的承力薄膜)穿过后,一部分进入样品,一部分进入零阻抗(相对于样品)的真空,即样品仅覆盖基板的一部分,样品侧边垂直于基板平面,这样就需要对薄片样品的侧边进行精密抛光,还要确保侧边与上、下表面完全垂直,无崩边。激光实验中在确保透明样品中冲击波维持高反射的条件下,样品厚度一般只有100~200 μm。保证冲击波沿厚度方向进入样品的同时从侧边引入横向稀疏波扰动,则要求侧边与上、下表面的交界处形成接近理想的交线,不能出现崩边。普通的光学加工方法一般采用机械切割或激光切割技术处理超薄样品的边界,但是这种处理方法无法满足实验要求,因此需要进行特殊的考虑。

2 物理靶的设计与制备

根据实验物理需求,冲击波平面性和辐射屏蔽主要与烧蚀材料和驱动基板有关,需要一并考虑,而侧向稀疏的引入则是样品自身设计和制备问题,总体装配也是实现实验目标的关键一步。

2.1 基板的选材与设计

激光驱动强冲击波实验中的烧蚀层和基板的选择与制备是动高压研究领域的一个经典问题。对此,近年来美国Livermore国家实验室已经取得了重要进展,其高密度碳夹金的三明治结构已经成功在多项实验中得到推广,取得了非常好的效果,但是其制备工艺难度大,成本过高。我国仍然采用碳氢烧蚀层与金属基板相结合的方式,其中铝因具备加工容易、表面反射率高等优势得到了大量使用。对于铝基板,在制备过程中需要重点关注其厚度的均匀性、平整性、表面粗糙度。装配前,先选择大片材料进行抛光、延展,使其表面光亮、平整,经过厚度测量和粗糙度分析后进行切割成型,短脉冲(飞秒、皮秒)激光切割是激光驱动实验靶的理想切割方式。

基板通常为金属薄膜,金属与激光相互作用会产生较硬的X射线,在入射激光一侧通常增加一层低原子序数材料作为烧蚀层。随着原子序数的降低,内壳层电子能级下降,热等离子体以韧致辐射为主,因此高能部分大幅下降,很难穿透基板进入样品。如何选择驱动方式、屏蔽材料及厚度、基板厚度等是实验成功与否的关键。我们在实验中尝试了多种驱动方式和屏蔽措施,结果如表1所示。根据实验结果,选择直接驱动方式;对于聚苯乙烯样品,采用25 μm PI(聚酰亚胺)+12 μm Cu+40 μm Al基板,对于石英样品,选择25 μm PI+40 μm Al基板。

表1 基于“神光III”原型装置的驱动方式和靶参数对致盲及预热的影响
Table 1 Effects of drive modes and target parameters on sample preheating and reflection of probe beam in SGIII prototype laser experiments

Drive mode	Laser inject	Ablator/pusher	Sample	Flatness of shock	Preheating and blindness
Indirect drive	$\varnothing 2.0 \text{ mm} \times 1.7 \text{ mm}$ gold hohlraum, one end, 8 beams of laser, 3ω , 4.8 kJ	40 μm Al	Polystyrene	Excellent	Very serious at both blindness and preheating, $> 1500 \text{ }^\circ\text{C}$
		15 μm Al (ablator) + 10 μm Au + 15 μm Al	Polystyrene	Acceptable	No blindness, no observable preheating
Indirect drive	$\varnothing 1.5 \text{ mm} \times 1.4 \text{ mm}$ gold hohlraum, one end, 8 beams of laser, 3ω , 2.8 kJ	15 μm Al (ablator) + 10 μm Au + 15 μm Al	Polystyrene	High uniformity at incident, follows with chaos	Observable blindness, no observable preheating
		15 μm Al (ablator) + 10 μm Au + 15 μm Al	α -quartz	High uniformity at incident, follows with chaos	No blindness, no observable preheating
Direct drive	Overlap of 4 beams of laser with $\varnothing 2 \text{ mm}$ CPP, incidence angle 45° , 3ω , 2–3 kJ	25 μm PI + 40 μm Al	Polystyrene	Acceptable	Slightly dim VISAR, no observable preheating
		25 μm PI + 40 μm Al	α -quartz	Acceptable	Unobservable
		25 μm PI + 70 μm Al	Polystyrene	Acceptable	Unobservable
		25 μm PI + 12 μm Cu + 40 μm Al	Polystyrene	Acceptable	Unobservable

2.2 透明样品垂直侧边的抛光工艺

要完成精确的侧向稀疏测量, 物理样品侧边须垂直于基板平面, 故需要加工一个侧边与薄片样品两个平面垂直且精确抛光、无崩边的样品。普通的光学加工方法一般采用机械切割或激光切割来处理超薄样品的边界, 然而这种处理方法无法达到实验要求。为了解决上述现有技术存在的超薄样品厚度方向抛光精度差等问题, 我们提出了一种用于超高压声速测量的侧向稀疏靶制备方法。该制备方法能够实现微米级薄片样品厚度方向的抛光处理, 且保证样品的侧面与其上下两个平面的交线处的缺陷尺寸不超过样品厚度的1%。侧向稀疏靶制备方法是通过把非常薄的样品叠加在一起形成足够的厚度, 并胶合成整体, 然后对整体侧面进行光学加工和抛光, 最后将抛光后的整体进行处理并分片使用。此方法能够实现微米级厚度薄片样品的侧面(沿厚度方向)抛光处理, 能够一次加工完成多个样品, 且误差小, 避免了现有技术对薄片样品直接加工和抛光而造成样品侧面与其上下平面交线处产生较大缺陷的问题, 满足了超高压声速测量的实验要求。

超高压声速测量的侧向稀疏靶制备方法包括以下步骤:

- (1) 将透明材料加工成 n 片厚度为 d 的薄片样品;
- (2) 将 n 片厚度为 d 的薄片样品初步加工成比样品设计值大1~2倍的尺寸;
- (3) 每两层之间用慢干环氧胶粘接, 采用能够保证两面平行的夹具夹紧, 每增加一层夹紧一次, 最后将 n 片薄片样品固定为一个整体;
- (4) 将封装好的 n 片薄片样品整体从中间垂直于样品平面的方向切开;
- (5) 对垂直样品平面的断面进行研磨、抛光, 在加工过程中保证抛光面与样品平面垂直;
- (6) 将抛光后的薄片样品整体放入有机溶剂中浸泡, 直到封装的胶完全脱开;
- (7) 取出靠中间位置的薄片样品, 对其进行清洗、晾干、检验。

薄片样品侧面抛光过程和结果如图1所示。

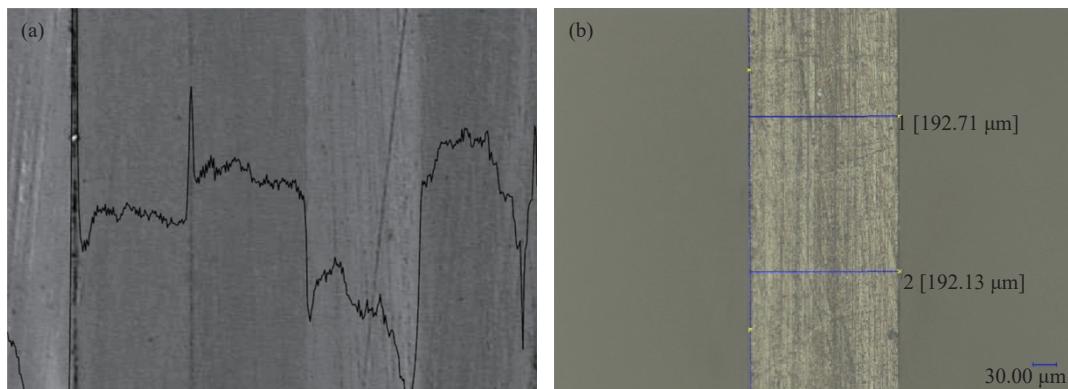


图1 多层聚苯乙烯压片侧面抛光(a)及单片测量结果(b)

Fig. 1 Side view of polished multiple (a) and single (b) polystyrene sample

2.3 高精度平面驱动靶的装配与测试

高精度靶的装配是实验成功和数据可靠的基础,在获得高质量侧边抛光的透明样品后,还需要将其与激光驱动的多层基板粘接到一起并固定到靶架上。最重要的步骤如图2所示(其中 α 为冲击波入射方向与弯曲点轨迹的夹角, t_0 为冲击波的某基准时刻, u_s 为冲击波速度, u_p 为波后粒子速度, C_b 为扰动波速),基板和样品紧密贴合,样品侧面(Y 轴)与基板垂直,并精密抛光。理想的靶结构要求透明样品与基板之间没有缝隙,也不能有胶,尤其在透明样品侧面与基板表面之间的夹角处(图2虚线箭头所指区域),若遗留有胶则会导致侧向卸载不明显,不利于确定起始卸载的起始点。

为提高实验效率,可以在一次实验中设置两块样品,其自由稀疏的侧边平行,相距150~200 μm,如图3所示。在这种情况下,条纹相机可以同时记录两块样品中的侧向稀疏过程,并且互相矫正以消除系统误差,从而进一步提高实验数据的可靠性。从另外一个角度来看,引入两块样品还可以使样品装配简化,比如VISAR瞄准孔(图3中的圆孔)的后续粘接会变得更加容易,无需提供额外的垫片。瞄准孔通常用厚度约100 μm的不锈钢片加工而成,中间用化学腐蚀方法加工一个直径为1 mm的小孔,小孔中心与选好的样品待测区域重合,如图3所示。其中绿色细长方框为扫描相机狭缝对应的测量区域,扫描区域尽可能与样品抛光的侧边垂直(侧向稀疏过程沿侧边的法向传播,两条侧边的间距也按法向测量,相机标定过程实际上消除了扫描区域与侧边不垂直的影响)。

在正式实验前,需要对样品的实际放大倍数进行精确标定,以确定每个像素对应的实际尺寸,这是声速计算的基准,每一发实验都要单独进行。完成样品装配后,首先测量图3中两个侧边的垂直间距,然后打开条纹相机,采用静态成像模式进行标定。图3显示了实际测量区域以及该区域的静态图像。根据显微镜测量的实际大小,就可以对应到实验结果图像上。扫描区域可以在条纹相机的狭缝上直接观察到,在条纹相机的实际测量过程中很难保证狭缝与侧边完全垂直,但是只要将实际静态条纹相机的结果与显微镜测量的侧边间距相对应,就可以保证实验精度。条纹相机CCD的分辨率可达到一个像素对应靶面1 μm,但是光阴极的实际分辨率达25~30线对每毫米,可获得2~3 μm的真实分辨率。

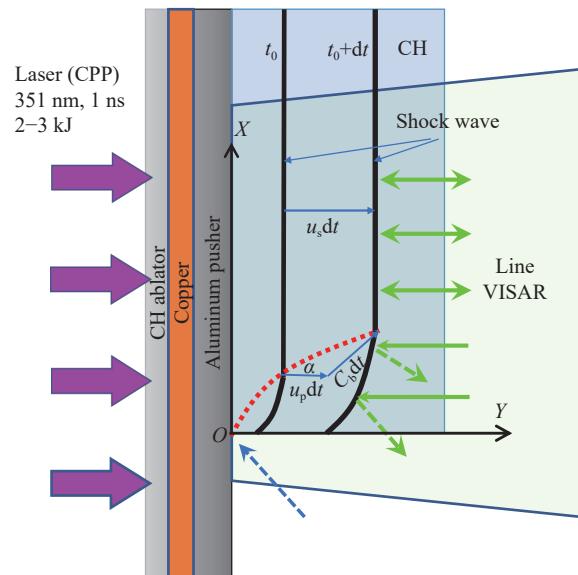


图2 “神光Ⅲ”原型上使用的侧向稀疏靶装配示意图

Fig. 2 Illustrations of assembled lateral-release target or SG III prototype laser experiments

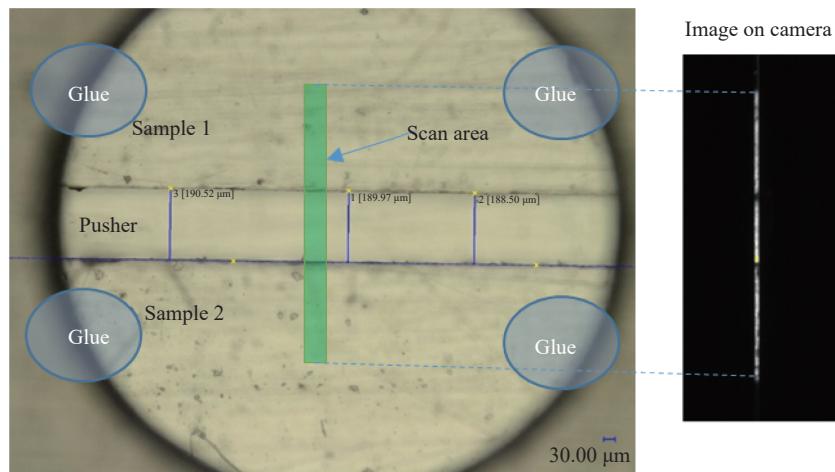


图3 单次实验靶使用两块样品的装配实物、测量区域与条纹相机静态图像

Fig. 3 Scanned area of a target with two samples for one shot and calibration result on streak camera

对于CH样品,其本身通常有一定程度的翘曲,在实际制靶时,要选择合适的方向进行切割抛光。假如选择CH薄膜卷材,则沿周向切割抛光形成样品的稀疏侧边。与烧蚀基板粘接时,让凸起的一面靠近铝基板,翘起的两端粘接在基板上,靠样品自身的预应力消除测量区域样品与基板的缝隙。基板与样品之间沿Y方向的间隙会导致基板先卸载,然后以较低的密度再撞击样品加载面。从铝基板信号丢失至样品中出现条纹变化之间有一段时间的暗区,这段时间就是铝基板自由卸载后以自由面飞行的时间,如图4所示。基板一旦从太帕压力发生自由卸载,其卸载过程会形成一定的密度下降,在空间上形成类似梯度飞片的密度分布,在铝前沿撞击后续透明介质时,速度会出现短时间的上升(冲击加强阶段),图4中明显地显示了这种速度信号。这种由于靶的间隙导致的复杂加载过程不利于信号的处理与分析,数据分析时需要把速度上升的那一段去掉。

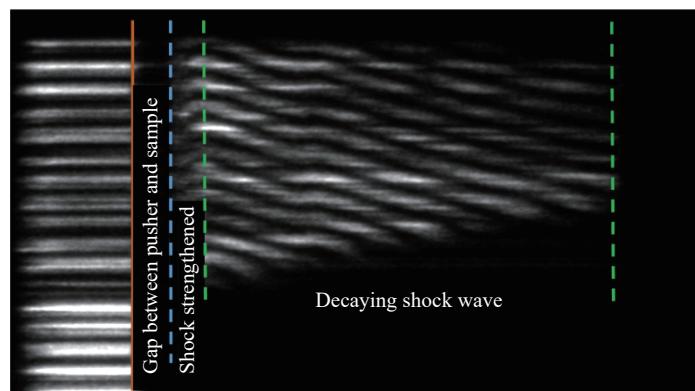


图4 基板与透明样品之间存在间隙时的典型 VISAR 信号

Fig. 4 VISAR data with a gap between pusher and transparent sample

从上面的检测、实验和分析来看,靶的装配需要按如下步骤进行:

- (1) 将 25 μm 厚 PI 烧蚀层与 40 μm 厚铝基板(铝前可加 12 μm 厚铜箔)复合,中间用胶(环氧树脂)粘接,用平行平板压紧,胶的固化时间以 1~2 h 为宜;
- (2) 将透明样品粘接到基板上铝的那一面,点胶的位置按照图3所示位置进行,保证在测试区不会有胶溢出,然后用平板将两者压紧直至胶固化;
- (3) 利用大景深显微镜观测样品上下表面和侧面的质量,避开缺陷区域,确定测量位置;
- (4) 将瞄准孔覆盖到透明样品一侧,孔中心与待测位置重合,用瞬干胶固定;
- (5) 将上述整体反过来粘接到驱动激光瞄准孔板上,将驱动激光瞄准孔与测量激光瞄准孔重合即可。

3 实验验证

碳氢聚合物在惯性约束聚变研究中占据非常重要的位置,这是因为这些塑料能够较容易地达到聚变靶丸壳层的制备精度要求,可以实现超高的内外表面光滑度、球形度和同心度。到目前为止,碳氢类壳层材料仍然是点火靶丸的主要选项。除了聚变点火的需求,C、H是宇宙中最丰富的元素,在巨行星、褐矮星以及行星碰撞事件中,研究碳氢的高压物性对认识行星科学的形成、发展和运行都具有重要意义。

根据上述碳氢高压声速靶型设计,在中国工程物理研究院“神光Ⅲ”原型装置上进行了实验验证。实验中,加载激光波长为351 nm,采用直接驱动模式,使用4路激光,光斑通过连续相位板(Continuous phase plate, CPP)匀滑后,其直径为2 mm,最大加载功率为3 kJ/ns。烧蚀层为25 μm 厚的碳氢层,以降低烧蚀区域硬X射线的产额,从而减弱对样品的预热。实验时,在碳氢烧蚀层和40 μm 厚铝基板之间增加一层厚度为12 μm 的铜箔,由此几乎完全消除了辐射致盲现象。初始的聚苯乙烯(商品膜)具有较好的透明性,但是含有气孔及其他缺陷,表面存在难以避免的少量划痕。实验样品为聚苯乙烯(Goodfellow样品,密度1.04 g/cm³),其外表面不容易镀增透膜,冲击阻抗远低于铝基板,对532 nm探测激光的折射率为1.59,厚度为191~199 μm 。

通过双通道VISAR,获得了冲击波在聚苯乙烯中的传播过程,清晰地记录了弯曲点历史轨迹和冲击波速度历史,如图5所示,其中绿色曲线为冲击波在聚苯乙烯内部传播的速度历史,蓝色曲线为侧向稀疏边界,白色虚线框为样品空间,点线为冲击波峰值时刻。从VISAR信号强度的变化还可以获得冲击波面的反射率变化。双通道中用一个通道测量速度,标准矩为22 mm,如图5(a)所示;另外一个通道记录回光亮度,从而更准确地获取弯曲边界和反射率,如图5(b)所示。

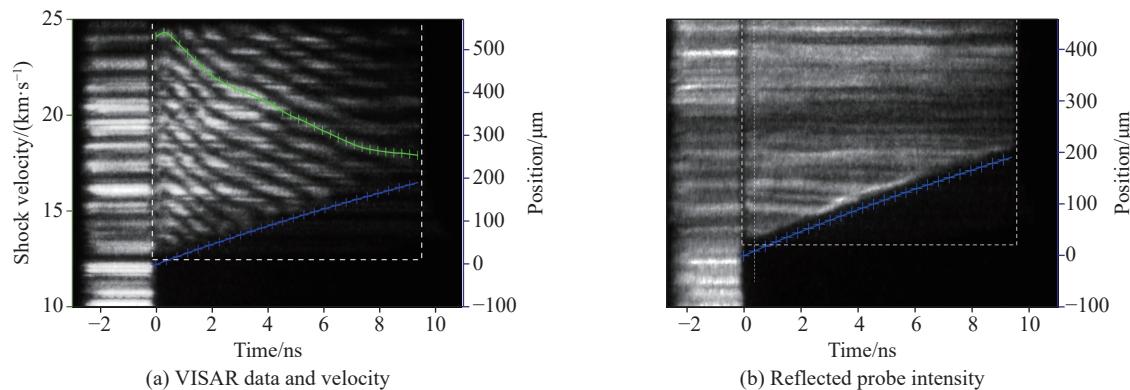


图5 聚苯乙烯超高压冲击加载侧向稀疏测量的实验结果

Fig. 5 Experimental results of lateral-release of shocked polystyrene

4 结 论

基于侧向稀疏连续测量冲击绝热线上体声速方法是获取超高压声速的全新方法,目前仍处于发展阶段。由于实验对制靶提出了非常高的要求,因此材料准备、装配和检测都需要系统的研究。针对该类实验过程中影响实验结果的主要因素进行了分析,包括激光驱动模式、烧蚀预热问题、平面性和测量问题等。基于对上述问题的考虑和实验具体需求,发展了侧向稀疏靶的材料制备工艺、装配诊断技术、标定方法等,并基于“神光Ⅲ”原型装置,开展了碳氢样品的超高压声速实验验证,得到了理想的实验效果。

感谢中国工程物理研究院激光聚变研究中心“神光Ⅲ”原型运行团队的大力支持!

参考文献:

- [1] FORBES J W. Shock wave compression of condensed matter [M]//PRIMER A. Shock Wave and High Pressure Phenomena. Berlin: Springer Berlin Heidelberg, 2012.
- [2] DUFFY T, MADHUSUDHAN N, LEE K KM. Mineralogy of super earth planets [M]//Treatise on Geophysics. Elsevier, 2015: 149–178.
- [3] DUFFY T S, AHRENS T J. Sound velocities at high pressure and temperature and their geophysical implications [J]. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 1992, 97(B4): 4503–4520.
- [4] DUFFY T S, VOS W L, ZHA C, et al. Sound velocities in dense hydrogen and the interior of Jupiter [J]. *Science*, 1994, 263(5153): 1590–1593.
- [5] HU J B, ZHOU X M, DAI C D, et al. Shock induced bcc–bcc transition and melting of tin identified by sound velocity measurements [J]. *Journal of Applied Physics*, 2008, 104(8): 083520.
- [6] NISSIM N, ELIEZER S, WERDIGER M. The sound velocity throughout the P - ρ phase space with application to laser induced shock wave in matter precompressed by a diamond anvil cell [J]. *Journal of Applied Physics*, 2014, 115(21): 213503.
- [7] OHTANI E, MIBE K, SAKAMAKI T, et al. Sound velocity measurement by inelastic X ray scattering at high pressure and temperature by resistive heating diamond anvil cell [J]. *Russian Geology and Geophysics*, 2015, 56(1/2): 190–195.
- [8] MCCOY C A, KNUDSON M D, ROOT S. Absolute measurement of the Hugoniot and sound velocity of liquid copper at multimegabar pressures [J]. *Physical Review B*, 2017, 96(17): 174109.
- [9] LI M, ZHANG S, ZHANG H P, et al. Continuous sound velocity measurements along the shock Hugoniot curve of quartz [J]. *Physical Review Letters*, 2018, 120(21): 215703.
- [10] BRADLEY D K, EGGERT J H, HICKS D G, et al. Shock compressing diamond to a conducting fluid [J]. *Physical Review Letters*, 2004, 93(19): 195506.
- [11] MCCOY C A, GREGOR M C, POLSIN D N, et al. Measurements of the sound velocity of shockcompressed liquid silica to 1100 GPa [J]. *Journal of Applied Physics*, 2016, 120(23): 235901.

High Precision Targets Fabrication for Sound Velocity Measurements in Terapascal Pressure

ZHANG Hongping¹, ZHANG Li², LUO Binqiang², LI Jianming², WANG Feng³, TAN Fuli², LI Mu⁴

(1. College of Big Data and Internet, Shenzhen Technology University, Shenzhen 518118, Guangdong, China;

2. Institute of Fluid Physic, CAEP, Mianyang 621999, Sichuan, China;

3. Research Center of Laser Fusion, CAEP, Mianyang 621999, Sichuan, China;

4. Center for Advanced Material Diagnostic Technology, Shenzhen Technology University,

Shenzhen 518118, Guangdong, China)

Abstract: Sound velocity is an intrinsic property of material, which is equal to the spread velocity of weak perturbation. Measurements of sound velocity are very important for the research of equation of state, phase transition and component of matter at extreme conditions. A continuous side-release method which can work to terapascal pressure was newly developed. In this paper, we described details of high precision targets fabrication of this method, including requirements, methodology and detection. Also, key factors which lead to fatal issues are analyzed for better signals and reliability. Experimental results on SGIII prototype laser facility are shown to validate the technology of targets fabrication.

Keywords: sound velocity; high pressure; Hugoniot curve; target physics

PVDF压电传感器及敏感单元设计关键技术

张 旭¹, 覃 双², 杨舒棋², 彭文杨², 赵 锋¹, 于 君¹, 钟 斌¹

(1. 中国工程物理研究院流体物理研究所, 四川 绵阳 621999;
2. 中国工程物理研究院研究生部, 四川 绵阳 621999)

摘要: 研究了聚偏二氟乙烯 (PVDF) 柔性压电传感器敏感单元设计关键技术。通过传感器敏感单元设计、电极制作、极化和封装研究实现功能, 结合动态冲击压缩实验, 对自主研制的 PVDF 传感器在不同压力段进行标定和 A 类不确定度评价, 实验数据的 A 类不确定度优于 10%, 说明所研制的 PVDF 压电传感器精度高、重复性好, 能够满足 0.3~10.0 GPa 动态冲击压力测量应用需求。目前产品设计水平已达到 6 级, 后续将进一步开展更高压段有效性的应用设计、温度补偿效应研究和工程化产品设计。

关键词: PVDF 压电传感器; 电极制作; 极化封装; 动态标定

中图分类号: O521.3; TJ55

文献标识码: A

传感器技术、通信技术、计算机技术构成了现代信息技术的 3 大支柱。压电式传感器以频响高、体积小、质量轻、频带宽等特点^[1-3], 成为高技术领域中制备小型化及多功能化器件的重要元件之一。薄膜型压电传感器的敏感单元为铁电聚合物薄膜, 在电子、超声、水声、红外、导航、生物等多个领域应用广泛。早在 19 世纪 40 年代人们便开始了高分子聚合物压电性能研究^[4-6], 但直到 70 年代才将其制成压电薄膜传感器。压电聚合物通常为非导电性高分子材料, 从原理上看没有可移动的电子电荷, 但在某些特定的条件下(经延展拉伸、极化等), 带负电荷的引力中心可以被改变, 从而成为具有压电性的高分子压电薄膜。常见的高分子压电薄膜有聚氟乙烯(PVF)、聚偏二氟乙烯(PVDF)、聚氯乙烯(PVC)、尼龙 11 等。

动高压聚合物薄膜测量技术的核心内容之一是敏感单元压电性能研究^[7-9]。PVDF 传感器的敏感单元是 PVDF 压电薄膜。PVDF 薄膜属于半结晶的高分子聚合物, 晶区至少存在 4 种晶型结构(α 相、 β 相、 γ 相和 δ 相), 其压电性能直接与极性 β 相相关。在常温常压下, 通过 PVDF 溶液挥发或熔融结晶得到的 PVDF 初始膜主要以非极性 α 相为主; 对 PVDF 初始膜进行单轴拉伸或高电压极化处理, 可产生具有更多压电 β 相的 PVDF 压电薄膜。

本研究首先探讨 PVDF 传感器的设计和制作工艺, 包括初始膜制备、单轴拉伸取向诱导压电相、高压热极化试验、封装技术等; 然后采取溶液等温结晶法制备初始 PVDF 薄膜, 对初始膜进行单轴拉伸试验, 分析不同拉伸倍率、拉伸速率和拉伸温度对 PVDF 薄膜中结晶相的影响; 接着在高电场交流极化实验中, 分析不同电场频率和幅值对 PVDF 薄膜位移电流的影响, 获得薄膜本征位移电流曲线; 最后对传感器的形状、尺寸、厚度进行设计, 封装完成 PVDF 压电薄膜传感器。希望本研究结果有助于提高 PVDF 薄膜材料在动态冲击过程中的检测能力和可靠性, 推进响应快、测量范围宽、灵敏度高的聚合物薄膜测量技术在动高压冲击实验中的应用。

* 收稿日期: 2019-06-26; 修回日期: 2019-07-14

基金项目: 国防科工局技术基础项目(JSZL2016212C001); 科学挑战计划(TZ20118001)

作者简介: 张 旭(1972-), 男, 研究员, 博士生导师, 主要从事流体动力学研究. E-mail: caepzx@sohu.com

1 PVDF 敏感单元设计

PVDF 压力计上、下电极的重合部分为其敏感单元。当外力使 PVDF 压力计的敏感单元发生变形时, 薄膜敏感单元表面就会产生与应力大小成正比的电荷量。本研究设计的敏感单元尺寸为 $3\text{ mm} \times 3\text{ mm}$, 薄膜厚度选用 $20\text{ }\mu\text{m}$ 或 $30\text{ }\mu\text{m}$ 。PVDF 传感器总厚度小于 0.1 mm , 有利于提高响应时间。敏感单元电极结构如图 1 所示。

1.1 电极制作和极化

敏感单元使用双层电极结构, 下电极 Pt 的厚度为 50 nm , 上电极 Au 的厚度为 250 nm 。敏感单元的尺寸直接影响 PVDF 薄膜的铁电性能测试, 因此要精确控制敏感单元的尺寸。为了获得特定形状的内电极金属结构, 使用掩膜法在 PVDF 薄膜衬底上的特定位置沉积金属电极结构。为了提高敏感单元面积精度, 采用双面掩膜板结构, 上、下掩膜板的对位精度控制在 $\pm 0.05\text{ mm}$ 以内。PVDF 薄膜的居里温度约为 $170\text{ }^\circ\text{C}$, 对热敏感, 在镀电极过程中温度的上升会引起电极与 PVDF 薄膜间的热应力增大, 影响电极和 PVDF 薄膜的黏结度, 且对薄膜性能造成影响, 因此在沉积金属电极时, 需对沉积温度进行严格控制。上电极 Au 的导电性好, 但与 PVDF 薄膜的黏合度较差, 而金属 Pt 与 PVDF 薄膜的黏合度较好, 但是活性较低, 所以采用 Au/Pt 双层金属电极结构, 能够发挥两种金属的各自优点, 使电极结构的附着力强、导电性好。

在溅射金属薄膜电极过程中, 有两个溅射参数需要重点关注, 即溅射功率和工作压强。当溅射功率较大时, 电离出的 Ar^+ 的能量较大, 轰击靶材溅射出更多的粒子, 粒子的迁移速率变大, 易形成连续电极结构; 但溅射功率过高时, 溅射出的高能粒子将会产生反溅射作用, 对薄膜衬底造成损害。当工作压强增大时, 溅射粒子向薄膜运动的过程中受到室内气体散射的几率增大, 薄膜上沉积的粒子能量减少, 且平均粒径减小。过高的工作压强会降低沉积速率, 不利于形成连续电极; 而过低的工作压强会使沉积的电极表面粗糙度增大。本实验采用多次间歇溅射, 溅射温度为室温。所得的 PVDF 薄膜衬底沉积金属薄膜内电极结构如图 2(a) 所示, 可见, 金属电极与薄膜无褶皱, 电极边界清晰。

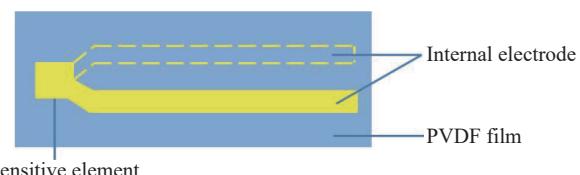
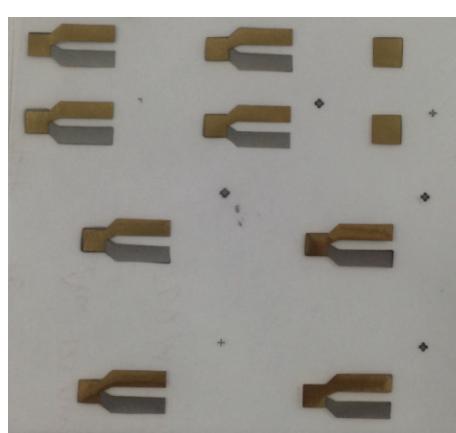
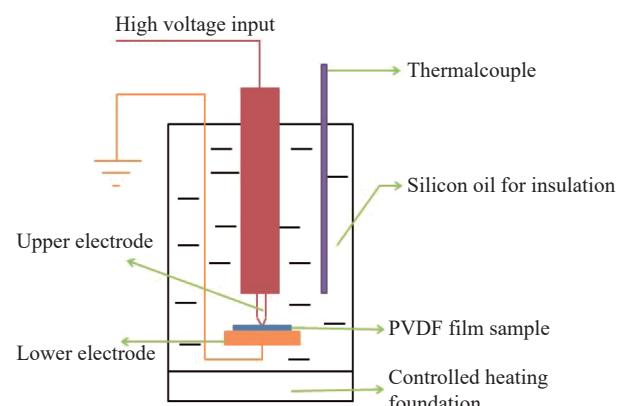


图 1 敏感单元形状设计

Fig. 1 Sensitive element design



(a) Internal electrode deposition of PVDF film



(b) Schematic of the thermal poling method

图 2 PVDF 薄膜电极结构和热极化装置

Fig. 2 Schematic diagram of PVDF film electrode and thermal polarization

对于 PVDF 薄膜, 一般采用拉伸工艺获得含量较多的压电 β 相, 但此时薄膜中的偶极子排列无序, 宏观上不显电性, 需要经过人工极化处理。通过施加高电压可使薄膜中的偶极子沿外电场方向有序排

列,当去除电场后,一部分偶极取向瞬间消失,另一部分偶极取向保留下来,称为剩余极化强度,它直接反映PVDF薄膜的压电性。PVDF是偶极电荷型压电铁电聚合物,极化以偶极子的转向优先,常采用热极化方法和电晕放电方法极化,此时偶极子取向由沉积在电介质中的空间电荷场诱导产生。电晕极化是在薄膜表面注入新的导电载流子,使薄膜的电导增强,击穿场强降低。热极化方法具有设备简单、操作方便、极化彻底等优点。因为空气的击穿场强较低,所以本研究采用热极化方法对PVDF薄膜进行高压热极化处理,如图2(b)所示。在样品盒内充满绝缘油,本研究选用硅油。硅油的介电常数高,将硅油作为绝缘介质时,可避免高电压的边缘飞弧,可施加极高的极化电压。热极化过程中伴随着分子链、离子、空间电荷的运动,导致薄膜表面弯曲变形,影响敏感面积的稳定极化,因此极化过程需要对样品施加一定的压强。

图3(a)显示了对20 μm厚PVDF薄膜施加不同幅值极化电场时所得的位移电流曲线。可以看出,随着电场强度的增加,位移电流的电阻、电容效应越来越弱,说明350 MV/m的场强为20 μm厚PVDF薄膜的最佳热极化条件,此时的位移电流和电滞回线如图3(b)所示。

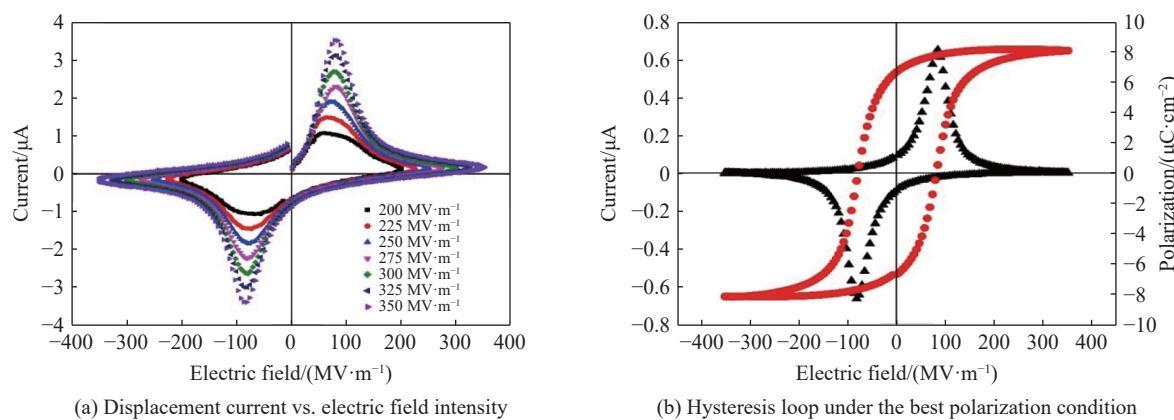


Fig. 3 20 μm 厚 PVDF 薄膜的热极化

Fig. 3 Effect of polarized electric field on 20 μm thick PVDF film

1.2 敏感单元封装

使用磁控溅射完成PVDF传感器内电极的制作后,内电极为Au/Pt双层金属电极结构,总厚度为300 nm。使用紫铜箔作为外电极,并用聚酰亚胺(PI)薄膜进行封装。因为PVDF本身为高阻元器件,外部保护膜的阻抗应大于传感器本身阻抗2个数量级以上,PI薄膜的电阻率为 $1\ 014\sim1\ 015\ \Omega\cdot\text{m}$,PVDF薄膜体积电阻率为 $1\ 011\ \Omega\cdot\text{m}$,所以PI薄膜厚度应不小于PVDF薄膜厚度的1/10即可满足使用要求。本研究使用的PVDF薄膜的厚度分别为20 μm 和30 μm ,PI封装薄膜厚度为25 μm 。图4为PVDF传感器所示3层结构封装示意图,上、下内电极的重叠部分为敏感单元,其尺寸为3 mm × 3 mm,内电极与外电极铜箔使用冷压技术连接,然后将低损耗同轴电缆与外电极铜箔焊接。

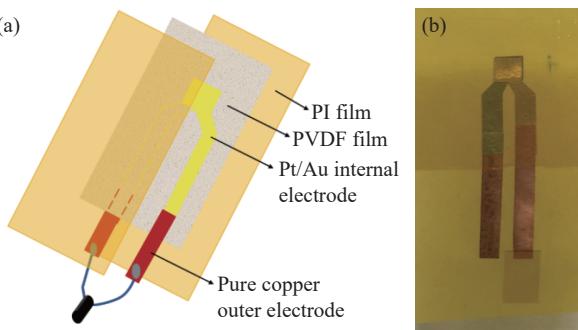


图4 PVDF传感器结构

Fig. 4 PVDF sensor structure

2 动态冲击设计和标定

2.1 测试系统组件选择

当外界压力使压电材料发生变形时,压电材料的表面会产生与应力大小成正比的电荷量,电介质

内部的电偶极子排序改变上下表面的电势,与表面接触的两个电极上的电荷重新调整,以平衡PVDF表面电势,因此在电路中存在电荷流动。将PVDF压电薄膜等效为电容,测量所产生的电荷,可采用两种模式测量:电流模式和电荷模式。电荷法适合信号变化要求不高的数据采集模式,频响(上升时间)受电荷积分器响应特性的影响;电流法适合于高频率数据采集,尤其是压力高于20 GPa的数据采集,缺点是误差与测试电缆长度的关联性高。考虑到本研究在低压范围标定,电荷积分器满足频率响应,因此选取电荷模式。

电荷模式是将传感器并联一个匹配电容,将其产生的电荷 $Q(t)$ 导入该电容,然后外接显示设备,输出与外界压力 $\sigma(t)$ 直接对应的电压信号 $u_i(t)$,该方法也称直接测量法,如图5(a)所示,其中 R_a 传感器内阻。电荷测试部分采用无源 RC 积分电路,如图5(b)所示。在无源 RC 积分电路中,若时间常数 $\tau = RC$ 足够大,则外加电压时,电容上的电压只能慢慢上升。所以在测量时间远小于时间常数 τ 的时间范围内,电路达到稳态的时间长,电容 C 两端的电压很小,输入电压主要降落在电阻 R 上,此时充电电流 i_c 和输出电压 $u_0(t)$ 为

$$i_c = u_i(t) / R \quad (1)$$

$$u_0(t) = \frac{1}{C} \int_0^t i_c dt = \frac{1}{C} \int_0^t \frac{u_i(t)}{R} dt = \frac{1}{RC} \int_0^t u_i(t) dt \quad (2)$$

式中: $u_i(t)$ 为输入电压。可以看出,输出电压 $u_0(t)$ 近似与输入电压 $u_i(t)$ 的时间积分值成比例。 $\int_0^t [u_i(t)/R] dt$ 为流过电阻 R 的电流积分,即电路中所产生的电荷 $Q(t)$,所以该种测量方式为电流模式,此时电路中的电荷为

$$u_0(t) \cdot C = Q(t) \quad (3)$$

测试元件中电容 C 的选择依据: RC 积分电路中时间常数 τ 远远大于输入脉冲宽度(一般超过10倍)。计算时间常数 τ ,若电容 C 的单位为F, R 的单位为 Ω ,则时间常数 τ 的单位为s。当 $C = 0.1 \mu\text{F}$ 时

$$\tau = RC = 50 \times 0.1 \times 10^{-6} \text{ s} = 5000 \text{ ns} \quad (4)$$

对于所测系统而言,频响(上升时间)为50~150 ns,所以选用 $C = 0.1 \mu\text{F}$ 的电容,能够保证 $\tau \gg t$ (10倍以上)。

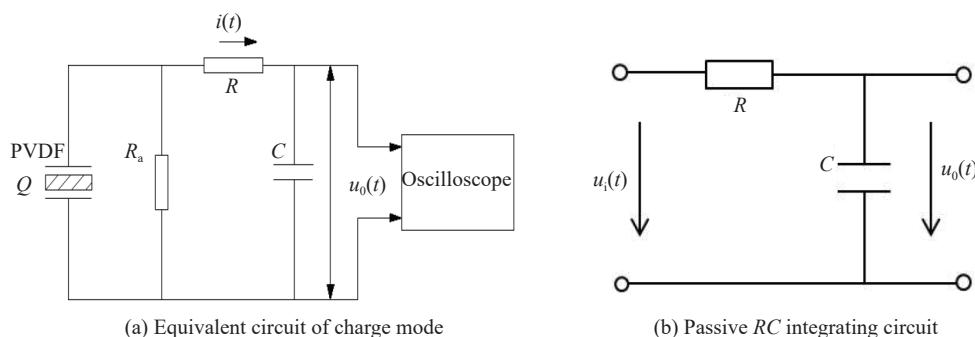


图5 压电薄膜传感器电荷模式等效电路

Fig. 5 The equivalent circuit of electric charge mode of PVDF film sensor

本研究选用 50Ω 特征阻抗的同轴电缆,阻抗匹配的测试系统电路如图6所示,其中 C_1 为电缆电容, R_1 为传感器泄漏电阻和电缆电阻, Z_0 为同轴电缆特征阻抗(50Ω), R_c 是与同轴电缆阻抗匹配的电阻阻值(50Ω), C 为 $0.1 \mu\text{F}$ 。

2.2 PVDF传感器动态冲击压缩实验标定方法

采用对称碰撞方法(飞片和靶为同种材料)标定PVDF传感器的动态压缩曲线。所选材料为PMMA、LY12铝和45钢,将PVDF传感器粘在样品和飞片的撞击面上,如图7所示。飞片击靶速度

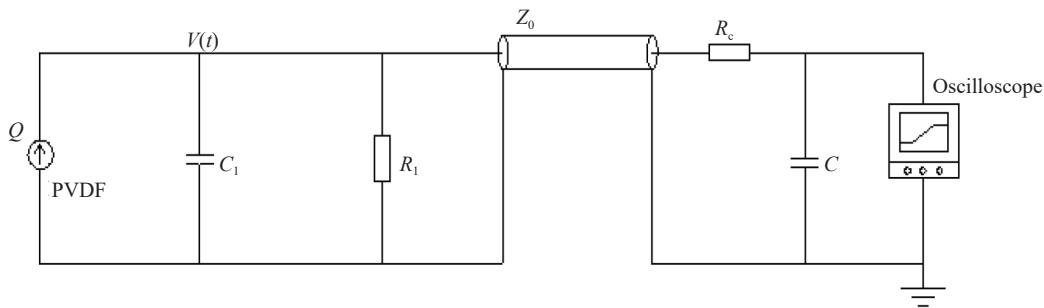


图6 测试系统测量电路

Fig. 6 Measurement circuit of PVDF film sensor test system

u_0 采用激光遮断法测量,利用飞片遮断测速环中不同路光纤的激光信号得到相应的时间差,测速环由3路光纤组成,每路光纤间距8.5 mm。

按照应力波理论中的阻抗匹配法,对称碰撞过程中靶中冲击波阵面后粒子速度 u_p 是飞片击靶速度 u_0 的1/2,结合样品材料的冲击Hugoniot关系式,通过测量撞击速度 u_0 可确定标定压力值

$$\sigma = \rho_0 D u_p = \rho_0 (c_0 + \lambda u_p) u_p = \frac{1}{2} \rho_0 \left(c_0 + \frac{1}{2} \lambda u_0 \right) u_0 \quad (5)$$

式中: D 为冲击波速度,km/s; ρ_0 为样品初始密度,g/cm³; c_0 为线性Hugoniot关系式中常系数,km/s; λ 为线性Hugoniot关系式中常系数; u_0 为飞片撞击速度,km/s; u_p 为样品中的粒子速度,km/s。式(5)给出了撞击压力 σ 与飞片击靶速度 u_0 的对应关系。实验中所使用撞击材料的Hugoniot参数列于表1。

PVDF压电传感器的输出电荷由电荷积分器采集,然后由示波器输出电压得到聚合物薄膜敏感压力-电荷密度标定曲线。

2.3 30 μm 厚 PVDF 传感器动态冲击压缩实验标定

对于敏感单元厚度为30 μm的PVDF传感器,在0.3~10.0 GPa压力区间由电荷法得到的实验结果如表2所示,其中:低压段采用气炮加载方式,高压段采用火炮加载方式, U_{\max} 为电压峰值, $(Q/A)_{\max}$ 为电荷密度峰值, d_{33} 为压电常数, P_r 为剩余极化强度。

PVDF传感器在一定压力范围内具有线性度,但是在较宽压力范围内不具备线性响应特性。本研究中,为了提高标定曲线的精度,选取幂函数、线性函数和多项式分别进行拟合。结果表明,幂函数的拟合精度最高,为此选择幂函数拟合标定曲线。采用幂函数,分别对表2中0.35~2.30 GPa和2.4~10.7 GPa压力区间的实验数据进行拟合。低压段拟合结果如图8所示,拟合曲线方程为

$$\frac{Q}{A} = (1.00166 \pm 0.03118) \cdot \sigma^{(0.56511 \pm 0.04567)} \quad (6)$$

其相关指数为0.989,剩余标准差为6.611%。高压段采用 $\frac{Q}{A} = a\sigma^b$ 函数进行拟合,如图9所示,拟合曲线方程为

$$\frac{Q}{A} = (0.77960 \pm 0.09140) \cdot \sigma^{(0.49843 \pm 0.05681)} \quad (7)$$

其相关指数为0.979,剩余标准差为10.015%。

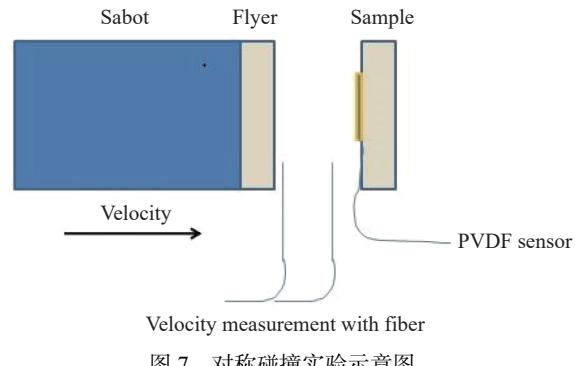


图7 对称碰撞实验示意图

Fig. 7 Experimental scheme of symmetrical impact

表1 Al和45钢的Hugoniot参数

Table 1 Hugoniot parameters of Al and 45 steel

Material	$\rho_0/(g \cdot cm^{-3})$	$c_0/(km \cdot s^{-1})$	λ
Al	2.785	5.328	1.338
45 steel	7.850	4.483	1.332

表2 电荷法实验结果

Table 2 Experimental results by charge method

Exp.No.	Material of flyer	$u_0/(\text{m}\cdot\text{s}^{-1})$	p/GPa	U_{\max}/V	$(Q/A)_{\max}/(\mu\text{C}\cdot\text{cm}^{-2})$	$d_{33}/(\text{pC}\cdot\text{N}^{-1})$	$P_r/(\mu\text{C}\cdot\text{cm}^{-2})$
0830-1	LY12 Al	48.434	0.361 2	0.598 67	0.665 2	12.0	8.279 7
0830-2	45 steel	83.384	1.473 0	1.097 90	1.219 9	10.8	7.528 9
0830-3	45 steel	109.557	1.942 8	1.367 27	1.519 2	10.5	7.878 1
0830-4	45 steel	129.536	2.303 8	1.433 01	1.592 2	15.5	7.987 1
0831-1	LY12 Al	126.221	0.950 6	0.813 58	0.904 0	15.2	10.301 7
1128-1	LY12 Al	47.137	0.351 5	0.459 01	0.510 0	15.1	7.806 1
1030	LY12 Al	628.531	5.395 0	1.636 01	1.817 8	15.6	6.934 0
1026	PMMA	1 004.704	2.426 1	1.120 07	1.244 5	15.3	7.832 2
1107	LY12 Al	970.275	8.069 3	1.883 43	2.092 7	11.4	7.216 3
1108	LY12 Al	1 250.441	10.725 5	2.357 62	2.619 6	12.8	8.287 2

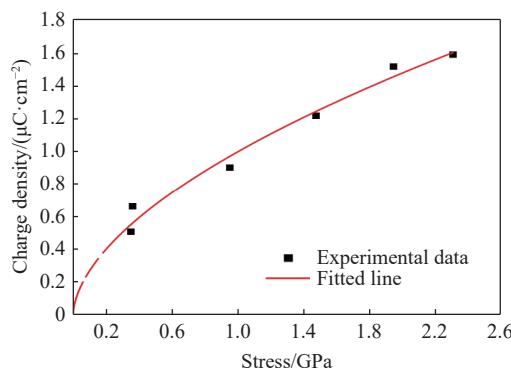


图8 30 μm-PVDF传感器低压段标定曲线

Fig. 8 Calibration curve of 30 μm-PVDF in low pressure

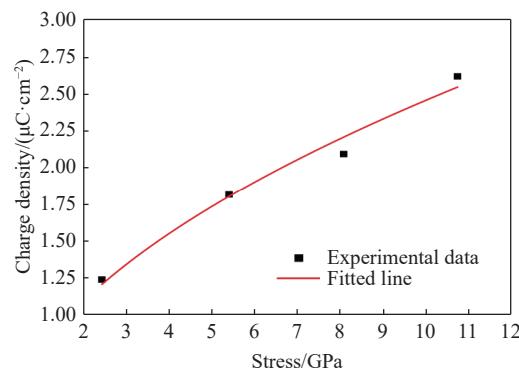


图9 30 μm-PVDF传感器高压段标定曲线

Fig. 9 Calibration curve of 30 μm-PVDF in high pressure

3 结 论

介绍了PVDF传感器研制过程的关键技术和工艺;在此基础上采用气炮加载装置进行了低压段和高压段一维平面应力标定方法研究,使用电荷测量模式,得到了敏感单元厚度为30 μm的PVDF传感器在0.35~2.30 GPa和2.4~10.7 GPa压力范围的冲击压力与电荷密度关系。为了得到最佳的标定曲线,使用幂函数分别对低压段和高压段进行拟合,相关指数接近1,且剩余标准差最小。在标定实验过程中,当冲击压力大于10 GPa时,敏感单元厚度为30 μm的PVDF传感器的响应时间为37.2 ns,说明传感器具有较高的频率响应特性。

参考文献:

- [1] KAWAI H. The piezoelectricity of poly (vinylidene fluoride) [J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 1969, 8(7): 975~976.
- [2] BAUER F. Method and device for polarizing ferroelectric materials: 4611260 [P]. 1986-09-09.
- [3] BAUER F, LICHTENBERGER A. Use of PVF2 shock gauges for stress measurements in Hopkinson bar [C]// SCHMIDT S C, HOLMES N C. Shock Waves in Condensed Matter. California, 1987: 751~755.
- [4] OBARA T, BOURNE N K, MEBAR Y. The construction and calibration of an inexpensive PVDF stress gauge for fast pressure measurements [J]. *Measurement Science and Technology*, 1995, 6(4): 345.
- [5] SALISBURY D A, WINTER R E, TAYLOR P, et al. The response of foams to shock compression [J]. AIP Conference

- Proceedings, 2000, 505(1): 197–200.
- [6] FIELD J E, WALLEY S M, PROUD W G, et al. Review of experimental techniques for high rate deformation and shock studies [J]. *International Journal of Impact Engineering*, 2004, 30(7): 725–775.
- [7] GAMA B A, LOPATNIKOV S L, GILLESPIE Jr J W. Hopkinson bar experimental technique: a critical review [J]. *Applied Mechanics Reviews*, 2004, 57(4): 223–250.
- [8] YANG L M, SHIM V P W. An analysis of stress uniformity in split Hopkinson bar test specimens [J]. *International Journal of Impact Engineering*, 2005, 31(2): 129–150.
- [9] 席道瑛, 郑永来. PVDF压电计在动态应力测量中的应用 [J]. 爆炸与冲击, 1995, 15(2): 174–179.
- XI D Y, ZHENG Y L. Application of PVDF gauges to dynamical stress measurements [J]. *Explosion and Shock Waves*, 1995, 15(2): 174–179.

Key Design Techniques for PVDF Sensitive Element Used in Dynamic Compression Experiments

ZHANG Xu¹, QIN Shuang², YANG Shuqi², PENG Wenyang², ZHAO Feng¹, YU Jun¹, ZHONG Bin¹

(1. Institute of Fluid Physics, CAEP, Mianyang 621999, Sichuan, China;
2. The Graduate School of CAEP, Mianyang 621999, Sichuan, China)

Abstract: This paper introduces key design techniques for PVDF sensitive element used in dynamic compression experiments. Based on the sensitive element design, electrode design, sensitive element polarization and sealing, PVDF dynamic pressure sensors are well design and produced. We also made dynamic experiments in order to calibrate the PVDF sensor. The results show that A-type uncertainty is less than 10%, which can be used in the dynamic pressure range of 0.3–10.0 GPa. We will extend the application to higher pressure range and consider the temperature effects.

Keywords: PVDF piezo-electric sensor; PVDF sensor electrode; polarization and sealing; dynamic calibration

钝感炸药冲击起爆反应过程的 PDV 技术

杨舒棋, 张 旭, 彭文杨, 舒俊翔, 刘寿先, 覃 双, 钟 斌

(中国工程物理研究院流体物理研究所, 四川 绵阳 621999)

摘要: 为研究 A 型钝感炸药冲击起爆反应演化过程, 进行了火炮驱动蓝宝石飞片的一维平面冲击实验。实验中采用光子多普勒测速仪 (Photonic Doppler velocimetry, PDV) 技术测量冲击起爆后台阶型炸药的粒子速度。在炸药不同厚度台阶的后界面固定镀铝膜的楔形氟化锂 (LiF) 窗口, 利用阻抗匹配将 PDV 测量的 LiF 窗口波后粒子速度转化为炸药样品波后粒子速度。比较组合式电磁粒子速度计和 PDV 两种测速技术, 结果表明, 相较于组合式电磁粒子速度计, PDV 测量的粒子精度更高。简要分析了 PDV 测速探头角度、探头孔径、窗口折射率等影响, 得到 PDV 测速的相对不确定度小于 1%。

关键词: 光子多普勒测速仪 (PDV); 台阶型钝感炸药; 边侧稀疏角; 组合式电磁粒子速度计

中图分类号: O384

文献标识码: A

钝感炸药 (Insensitive high explosive, IHE) 的安全性能是弹药设计的重点。以三硝基三氨基苯 (TATB) 为基的钝感高能炸药在国防领域有着广泛应用, 本研究中所用的 A 型炸药为我国研制的以 TATB 和黏结剂为主要成分的塑性黏结炸药, 密度为 1.895 g/cm^3 , 爆速为 7.660 km/s 。

在研究钝感炸药冲击起爆反应演化过程的测量方法中, 高精度的激光干涉测速技术被国内外学者广泛使用^[1]。美国洛斯阿拉莫斯国家实验室 (LANL) 和桑迪亚国家实验室 (SNL) 使用光子多普勒测速仪 (Photonic Doppler velocimetry, PDV) 和数据分析工具开展了大量测速实验, Jensen 等^[2] 和 Dolan 等^[3] 研究了影响 PDV 测速的不确定度因素。Gustavsen 等^[4] 采用 PDV 技术, 测量了 TATB 基和 HMX 基炸药的粒子速度, 准确获得了 TATB 基炸药的反应区。张涛等^[5] 采用自行研制的波分时复用多点激光干涉测速系统, 研究了钝感高能炸药 JBO-9021 的冲击起爆性能, 结合楔形炸药样品, 得到了冲击波进入炸药特定深度位置的波后粒子速度剖面。裴红波等^[6] 采用光子多普勒测速技术, 测得了 TATB 基 JB-9014 炸药的粒子速度剖面, 对粒子速度剖面求取时间的一阶导数, 利用时间导数拐点确定了炸药反应区宽度和反应时间, 测速的相对不确定度优于 2%。综合国内外研究发现, 激光干涉测速技术是研究炸药冲击起爆过程和爆轰性能的一种有效方法。

国内研究 A 型钝感炸药冲击起爆反应演化过程主要采用电磁粒子速度计测试方法。由于电磁法本身存在缺陷, 导致测量数据具有不准确性, 因而需要采用高精度的 PDV 测量技术进行测量。在运用 PDV 测量技术研究炸药不同深度处的粒子速度时, 需采用不同厚度的圆柱形样品进行多发实验, 然而由于火炮加载的不可控性, 火药装药量相同时的入射压力依然存在差异。为此, 本研究设计了台阶形状的 A 型钝感炸药样品, 采用 PDV 技术测量其粒子速度, 实现了在同一发实验中测量不同厚度样品的粒子速度。

* 收稿日期: 2019-11-11; 修回日期: 2019-11-30

基金项目: 军科委基础加强重点项目(2019-JCJQ-ZD-203); 科学挑战专题(TZ2018001)

作者简介: 杨舒棋(1993-), 女, 硕士研究生, 主要从事冲击起爆研究. E-mail: yangshuqi77@126.com

通信作者: 张 旭(1972-), 男, 研究员, 博士生导师, 主要从事流体动力学研究. E-mail: caepzx@sohu.com

1 实验原理

1.1 PDV 实验装置

采用火炮加载系统驱动蓝宝石飞片撞击炸药, 进行一维平面冲击实验。实验装置主要包括火炮驱动系统、蓝宝石飞片、炸药样品、LiF 窗口、光纤测速探头、PDV、示波器等。

火炮口径为 57 mm, 采用尺寸为 $\varnothing 55 \text{ mm} \times 12 \text{ mm}$ 的蓝宝石飞片撞击炸药产生一维平面波。通过改变火药装药量得到递增的蓝宝石飞片撞击速度, 实验所用火药装药量为 1 000、1 100 和 1 150 g, 分别命名为 Shot 01、Shot 02 和 Shot 03。炸药样品为台阶型, 中心小圆柱处厚度为 10 mm, 5 个扇面的厚度分别为 2、3、4、5 和 7 mm。实验安装 6 个光纤探头, 分别正对炸药中心和 5 个不同高度的扇形台阶中心。实验装置和炸药安装如图 1 所示。

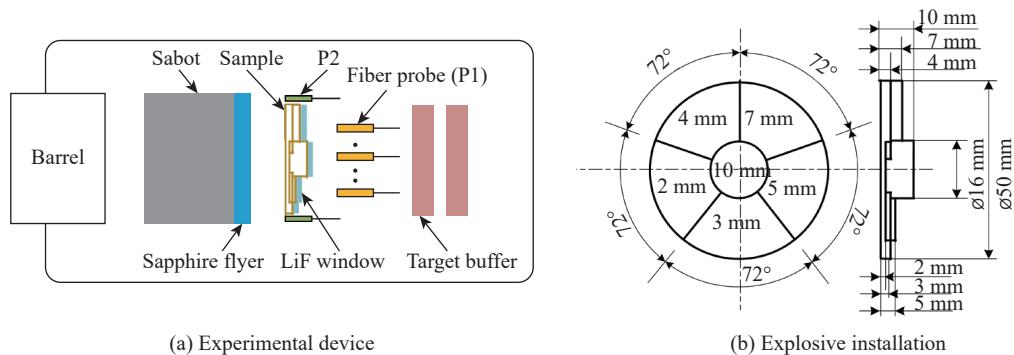


图 1 PDV 实验装置和炸药安装示意图

Fig. 1 Schematic of PDV experimental device and explosive installation

实验所用的 PDV 为全光纤结构, 其光电探测器带宽为 12.5 GHz, 输出激光波长为 1 550 nm。实验中配合使用的示波器带宽为 13 GHz, 最高采样速率为 40 GS/s。

利用 PDV 测速系统测量炸药爆轰产物的界面粒子速度时, 需在炸药背面安装 1 个尺寸为 $\varnothing 15 \text{ mm} \times 11 \text{ mm}$ 、5 个尺寸为 $\varnothing 20 \text{ mm} \times 11 \text{ mm}$ 的楔形 LiF 窗口, 窗口和炸药之间涂少量硅油, 排除二者之间的空气。LiF 窗口与样品接触一端镀厚度为 0.7 μm 的铝膜, 并且为避免输入激光在靠近光纤探针侧表面的 LiF 窗口处的反射光对测试信号光产生影响, LiF 窗口的上表面与水平的下表面存在 3°的倾角。实验采用了两种直径的测速探头, 其中测量界面粒子速度的探头直径为 3.2 mm, 测量蓝宝石飞片速度的探头直径为 1.8 mm, 测试探头输出激光的焦斑直径约为 0.2 mm, 光纤芯径为 90 μm 。探头到 LiF 窗口的测试距离为 35~42 mm, 实验装置及炸药安装实物如图 2 所示。

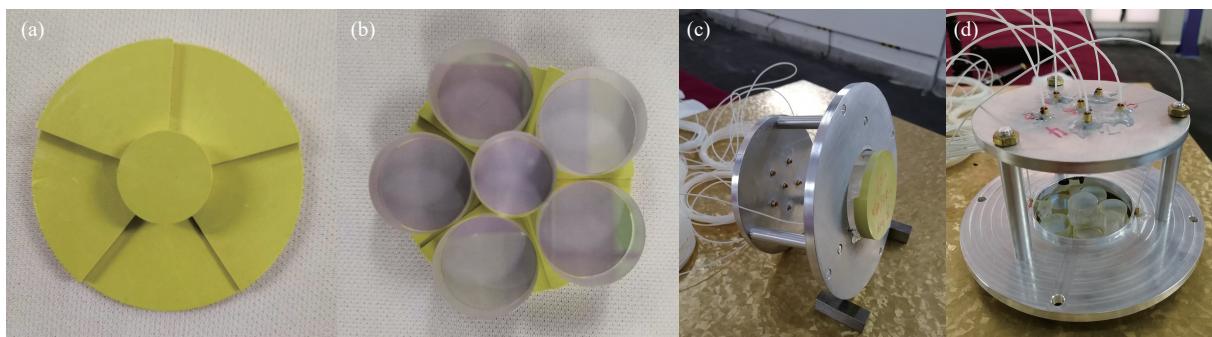


图 2 PDV 实验装置及炸药安装实物

Fig. 2 Images of PDV experimental device and explosive installation

1.2 组合式电磁粒子速度计测试实验装置

组合式电磁粒子速度计测试采用相同的火炮加载系统进行一维平面冲击实验。实验装置如图 3(a) 所示。通过改变火药装药量来控制蓝宝石飞片速度, 进而控制初始入射压力。所用火药装药量与 PDV 实验同为 1 000、1 100 和 1 150 g, 分别命名为 Shot 04、Shot 05 和 Shot 06。

A 型炸药是 $\varnothing 42 \text{ mm} \times 30 \text{ mm}$ 的圆柱形组合药柱, 为测量炸药样品不同深度的冲击波后粒子速度, 炸药样品以 30° 角被切割成两块楔形炸药, 用环氧树脂把组合式电磁粒子速度计嵌入两块楔形炸药中。实验采用激光测速环测量蓝宝石飞片速度, 通过飞片测速环遮挡 3 组激光的时间差值计算飞片速度, 同时在炸药表面用环氧树脂粘贴 3 个电磁粒子速度计, 用于测量蓝宝石飞片撞击炸药表面瞬时的界面粒子速度。在冲击波传播方向, 铝基组合式电磁粒子速度计的 8 个电磁粒子速度计测量炸药样品的深度间隔为 1 mm, 3 个冲击波示踪器的间距为 0.5 mm, 组合式电磁粒子速度计炸药安装如图 3(b) 所示。

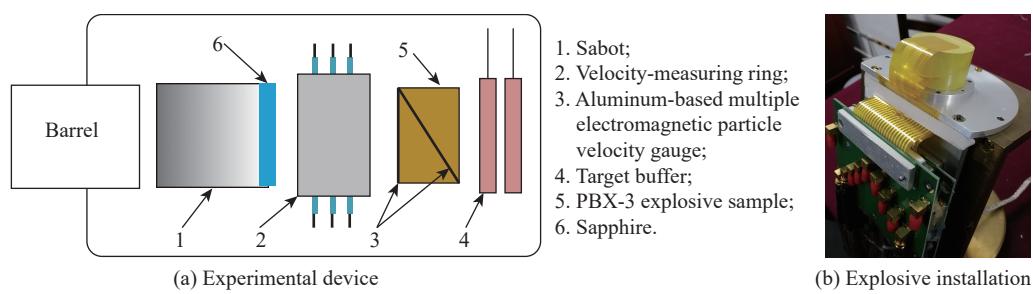


图 3 组合式电磁粒子速度计实验装置和炸药安装

Fig. 3 Experimental device and explosive installation of multiple electromagnetic particle velocity gauge

2 数据分析

2.1 入射冲击压力的计算

利用阻抗匹配法分析计算蓝宝石飞片撞击炸药产生的入射压力^[7]

$$p_{0L} = \rho_{0L} D_L (u_{imp} - u_p) \quad (1)$$

$$p_{0S} = \rho_{0S} D_S u_p \quad (2)$$

式中: p_{0L} 为蓝宝石初始入射冲击压力, GPa; p_{0S} 为炸药样品初始入射冲击压力, GPa; ρ_{0L} 为蓝宝石初始密度, g/cm^3 ; ρ_{0S} 为炸药样品初始密度, g/cm^3 ; D_L 为蓝宝石中的冲击波速度, km/s ; D_S 为炸药样品的入射冲击波速度, km/s ; u_{imp} 为蓝宝石飞片的撞击速度, km/s ; u_p 为波后粒子速度, km/s 。

根据蓝宝石材料和 A 型炸药的 Hugoniot 关系, 将式(1)和式(2)写为

$$p_{0L} = \rho_{0L} [C_{0L} + \lambda_L (u_{imp} - u_p)] (u_{imp} - u_p) \quad (3)$$

$$p_{0S} = \rho_{0S} (C_{0S} + \lambda_S u_p) u_p \quad (4)$$

式中: $\rho_{0L} = 3.985 \text{ g}/\text{cm}^3$; C_{0L} 、 λ_L 为蓝宝石的 Hugoniot 系数, $C_{0L} = 11.19 \text{ km}/\text{s}$, $\lambda_L = 1.00$ ^[7]; C_{0S} 、 λ_S 为炸药样品的 Hugoniot 系数, $C_{0S} = 2.42 \text{ km}/\text{s}$, $\lambda_S = 2.14$ ^[8-9]。

由界面连续性可知, $p_{0L} = p_{0S}$, 结合式(3)和式(4), 得到未反应炸药的波后粒子速度 u_p , 并计算得出实验的初始入射冲击压力 p_0 , 结果如表 1 所示。

2.2 样品/LiF 窗口界面粒子速度转换炸药样品波后粒子速度

由于 PDV 采用双光束混频干涉技术, 测量得到的干涉信号需进行时频分析, 使用中国工程物理研究院流体物理研究所开发的软件进行数据处理, 采用窗口傅里叶变换方法, 得到 PDV 测量炸药样品/LiF 窗口界面粒子速度。由于炸药样品和窗口材料的阻抗不匹配, 所以由 PDV 测得的 LiF 窗口波后粒子速度 u_w 并不等于炸药样品冲击波后粒子速度 u_s 。炸药样品波后粒子速度 u_s 的转换公式为^[8]

$$u_s = \frac{u_w [\rho_{0w} (C_{0w} + \lambda_w u_w) + \rho_{0s} D_s]}{2\rho_{0s} D_s} \quad (5)$$

式中: u_w 为 PDV 测得的 LiF 窗口波后粒子速度, km/s; ρ_{0w} 为窗口材料初始密度, $\rho_{0w} = 2.641 \text{ g/cm}^3$ ^[10]; C_{0w} 、 λ_w 为窗口材料系数, $C_{0w} = 5.176 \text{ km/s}$, $\lambda_w = 1.353$ ^[10]; D_s 为炸药样品内冲击波速度, km/s。

表 1 台阶型炸药平面冲击实验参数

Table 1 Parameters of plane impact experiments on stepped explosive

Shot No.	$\rho_{0s}/(\text{g}\cdot\text{cm}^{-3})$	$u_{\text{imp}}/(\text{km}\cdot\text{s}^{-1})$	$u_p/(\text{km}\cdot\text{s}^{-1})$	p_0/GPa
01	1.897	1.385	1.151	10.66
02	1.897	1.502	1.240	11.93
03	1.895	1.550	1.277	12.47

由于实验过程中高速蓝宝石飞片在撞击炸药样品时会存在微小角度, 并且不同示波器的响应时间存在偏差, 线路损耗不同, 导致测量得到的台阶型炸药样品的起跳时间存在误差, 因此需要对实验数据进行修正。根据本课题组使用相同火炮加载系统和测速系统进行的 A 型炸药 Hugoniot 关系测量实验的结论^[8-9], 炸药的冲击 Hugoniot 关系为 $D_s = 2.41877 + 2.13961u_s$ 。结合冲击 Hugoniot 关系和式(5), 计算得到的波后粒子速度 u_s 和冲击波速 D_s 如表 2 所示。PDV 测量得到的炸药样品波后粒子速度-时间 (u_s-t) 曲线如图 4 所示。

表 2 台阶型炸药平面冲击实验数据

Table 2 Data of plane impact experiments on stepped explosive

Step thickness/mm	$u_w/(\text{km}\cdot\text{s}^{-1})$			$u_s/(\text{km}\cdot\text{s}^{-1})$			$D_s/(\text{km}\cdot\text{s}^{-1})$		
	Shot 01	Shot 02	Shot 03	Shot 01	Shot 02	Shot 03	Shot 01	Shot 02	Shot 03
2	0.886	0.982	1.041	1.224	1.334	1.402	5.038	5.273	5.419
3	0.895	0.985	1.033	1.235	1.338	1.393	5.060	5.281	5.399
4	0.895	1.007	1.064	1.235	1.363	1.428	5.060	5.335	5.474
5	0.922	1.030	1.113	1.266	1.389	1.483	5.127	5.390	5.591
7	0.985	1.128	1.383	1.338	1.500	1.782	5.281	5.627	6.232
10	1.075	1.346	1.800	1.439	1.741	2.228	5.498	6.143	7.186

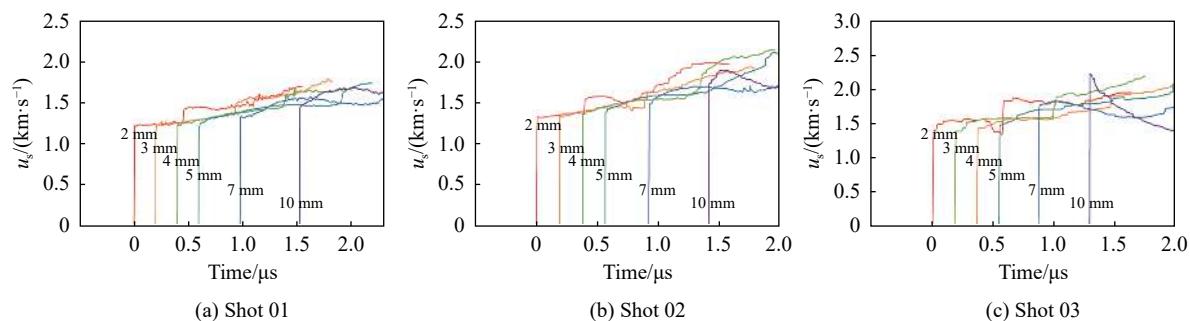


图 4 PDV 测量的炸药样品粒子速度-时间关系

Fig. 4 Particle velocity-time relationship of explosive measured by PDV

由炸药样品波后粒子速度 u_s 可以看出, A 型台阶炸药会发生二次加速现象, 根据图 4 可以得出不同厚度台阶样品二次加速的时间间隔, 如表 3 所示。其中 Δt_2 、 Δt_3 、 Δt_4 、 Δt_5 分别代表 2、3、4 和 5 mm 厚的台阶炸药样品发生二次加速的时间间隔。

由图 4 可知, 2、3、4 和 5 mm 厚样品粒子的速度发生了二次加速, 但 3、4、5 mm 厚样品的波后粒子速度的二次加速并不明显。由于 LiF 窗口和炸药样品的阻抗相差较大, 冲击波到达样品和 LiF 窗口的

接触面时会发生反射, 反射的冲击波在炸药样品内传播到达炸药样品和蓝宝石飞片的交界面发生二次反射后, 追赶上测量界面的粒子, 因此在图4中可以看到粒子速度二次加速。由于7 mm和10 mm的炸药样品较厚, 反射的冲击波在测量范围内未追赶上测量界面的粒子。

在入射压力分别为10.66 GPa(Shot 01)和11.93 GPa(Shot 02)的两发实验中, 如图4(a)和图4(b)所示, 冲击波分别在2、3、4和5 mm厚的台阶样品内传播时, 随着样品发生化学反应释放能量, 粒子速度增长缓慢, 二次加速后速度信号呈现明显的“驼峰”形状。随着冲击波强度的增加, 炸药反应速率不断加快, “驼峰”形状逐渐尖锐, 但并没有转变为爆轰。当入射压力高达12.47 GPa(Shot 03)时, 如图4(c)所示, 2 mm厚样品的波后粒子速度发生二次加速之前, 已呈现明显的“驼峰”形状, 并且PDV测量的相邻两个速度波形时间间隔逐渐减小, 说明此时化学反应释放的能量使冲击波逐渐加强, 最终转变为稳定的爆轰波, 图4(c)中10 mm处的粒子速度曲线已呈明显的三角爆轰波, 说明完成了冲击转爆轰过程(SDT)。

2.3 两种测速方法的实验数据对比

在炸药冲击起爆的研究中, 国内外采用的测试技术主要为PDV和组合式电磁粒子速度计技术。在课题组提供的使用组合式电磁粒子速度计测量A型楔形炸药样品的实验数据中, 选取了炸药密度相近、火药装药量相同的实验数据进行对比, 组合式电磁粒子速度计测量实验所用楔形炸药的参数如表4所示, 测量得到的实验数据如表5所示, 其中 ρ_{01} 、 ρ_{02} 分别为位于上方和下方的两块楔形炸药样品的初始密度; 组合式电磁粒子速度计测量得到的粒子速度如图5所示。

表3 炸药二次加速时间间隔

Table 3 Time interval of secondary acceleration of explosive

Shot No.	$\Delta t_2/\mu\text{s}$	$\Delta t_3/\mu\text{s}$	$\Delta t_4/\mu\text{s}$	$\Delta t_5/\mu\text{s}$
01	0.435	0.714	0.962	1.291
02	0.388	0.695	0.833	1.310
03	0.575	0.800	1.085	1.415

表4 楔形炸药平面冲击实验参数

Table 4 Parameters of plane impact experiments on wedge-shaped explosive

Shot No.	$\rho_{01}/(\text{g}\cdot\text{cm}^{-3})$	$\rho_{02}/(\text{g}\cdot\text{cm}^{-3})$	$u_{\text{imp}}/(\text{km}\cdot\text{s}^{-1})$
04	1.898	1.893	1.356
05	1.897	1.894	1.489
06	1.895	1.900	1.567

表5 楔形炸药平面冲击实验数据

Table 5 Data of plane impact experiments on wedge-shaped explosive

Depth/mm	$D_s/(\text{km}\cdot\text{s}^{-1})$			$u_s/(\text{km}\cdot\text{s}^{-1})$		
	Shot 04	Shot 05	Shot 06	Shot 04	Shot 05	Shot 06
3	4.717	4.748	4.988	1.151	1.263	1.481
4	4.808	5.123	5.470	1.184	1.293	1.335
5	4.659	5.166	5.371	1.191	1.330	1.396
7	4.753	5.274	5.721	1.281	1.537	1.671
10	5.208	6.701	7.417	1.346	2.177	2.041

将PDV和组合式电磁粒子速度计测得的相同厚度样品的数据进行对比, 如图6所示。由图6可知, 随着入射压力的增加, 两种测试方法得到的相同厚度样品的速度曲线的时间差逐渐减小, 说明在高入射压力下, 两种测试方法得到的速度曲线逐渐接近。但组合式电磁粒子速度计所测粒子速度较PDV测量的速度结果偏小, 这是由于组合式电磁粒子速度计属于接触式测量, 测量设备的制造工艺、装配方式、磁场的均匀性、飞片撞击的平面性、测试线路等均会影响测量结果, 并且组合式电磁粒子速度计呈30°角嵌入楔形炸药中, 在飞片撞击炸药样品后, 会随着样品运动, 并对流场产生破坏。Cau^[11]对比了电磁粒子速度计在倾斜放置和水平放置时的测试结果, 发现倾斜放置的电磁粒子速度计影响了原本的一维反应流场, 测得的粒子速度信号幅度低于水平放置的电磁粒子速度计所测的实验结果。由

图5(d)可知,组合式电磁粒子速度计测得的粒子速度曲线相较于PDV测量结果存在很大噪声,楔形炸药样品表面0 mm处和沿冲击波传播方向3 mm处速度计测量的粒子速度存在速度尖峰,使数据点读取存在较大误差。而PDV属于非接触测量,不会对流场产生影响,粒子速度-时间曲线更加平滑,数据精度更高。

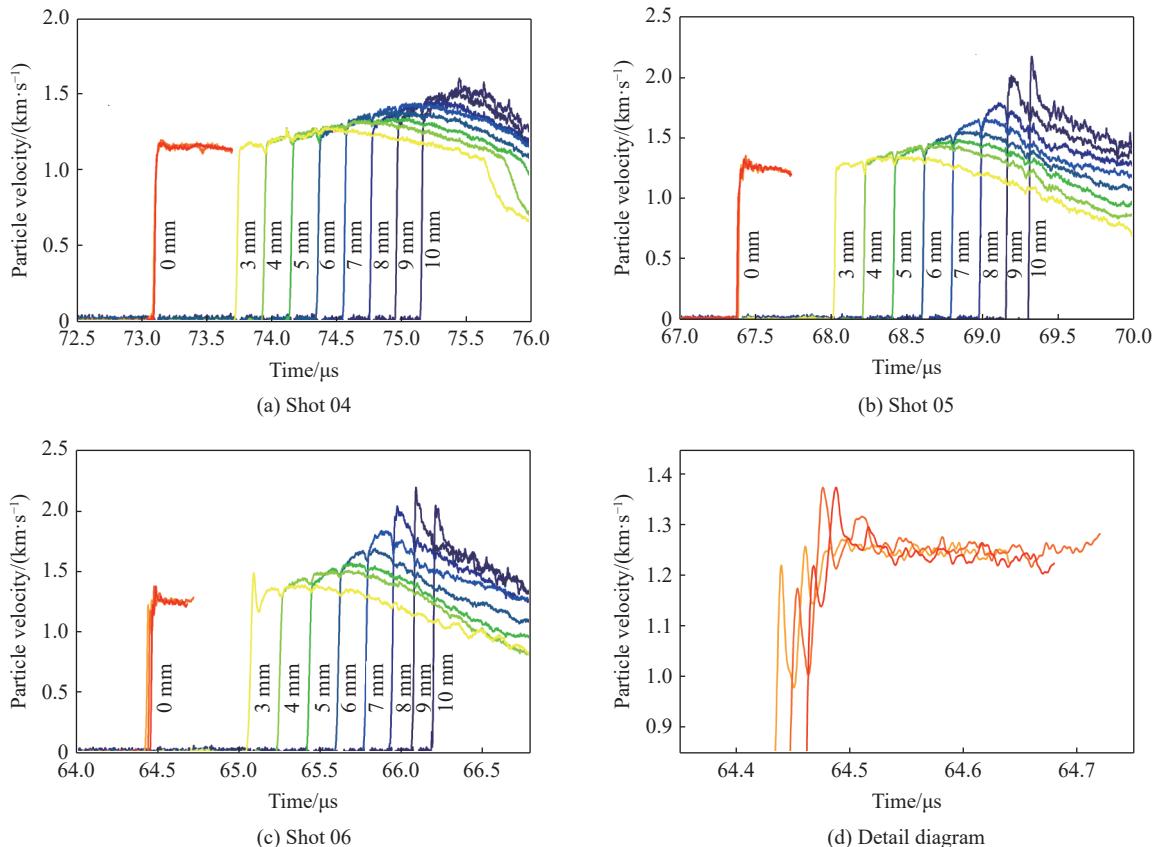


图5 组合式电磁粒子速度计测量的粒子速度历史

Fig. 5 History of particle velocity measured by multiple electromagnetic particle velocity gauge

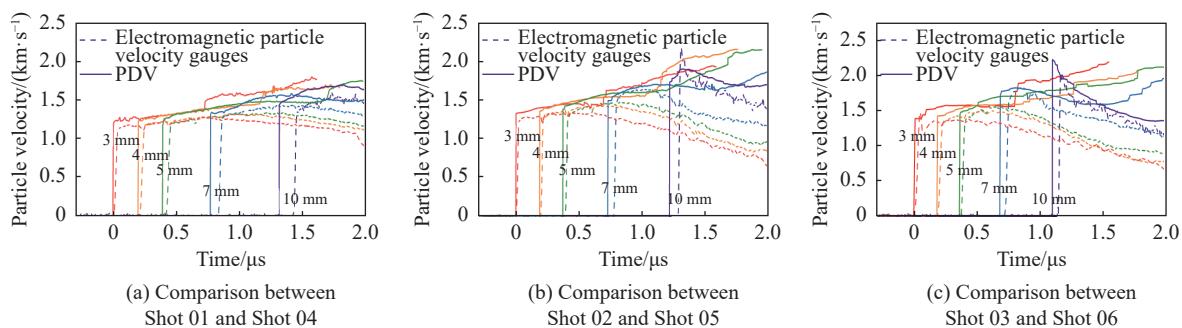


图6 两种方法测量得到的粒子速度对比

Fig. 6 Comparison of particle velocities obtained by two methods

3 误差分析

3.1 边侧稀疏波

由于炸药样品为不同厚度的台阶型炸药,需要考虑边侧稀疏波对激光探头测速的影响^[12]。PDV的6个探头分布在以炸药为圆心、直径为33 mm的圆周上,如图7所示。每个探头到达扇形炸药边缘的距离为8.5 mm,到达其他厚度炸药边缘的垂直距离为9.698 mm。

边侧稀疏波相对于冲击波后的物质以声速 C 传播(在样品被冲击压缩的过程中, 样品内的声速是不断变化的, 为方便计算, 取声速 $C = 5 \text{ km/s}$), 假设冲击波到达样品前表面 M_1N_1 的时间间隔为 Δt , 在 Δt 时间内炸药的后表面 A_1B_1 以粒子速度 u_s 运动到界面 AB 处, 如图 8 所示。在跟随粒子运动的坐标系中观察, 以 A 为中心, 半径为 $C\Delta t$ 的圆形区域即为受边侧稀疏波影响的 PDV 探头测速的范围。因此在实验坐标系中观察, 前表面的 MN 范围内是未受影响的区域。它是进行实验测量时, 在样品前表面可以布置探头的最大区域。A 型炸药平面冲击边侧稀疏波数据如表 6 所示, 其中 M_1M_2 、 M_1M_3 、 M_1M_4 、 M_1M_5 、 M_1M_7 、 M_1M_{10} 分别为 2、3、4、5、7 和 10 mm 厚的炸药样品受到边侧稀疏波影响的距离。

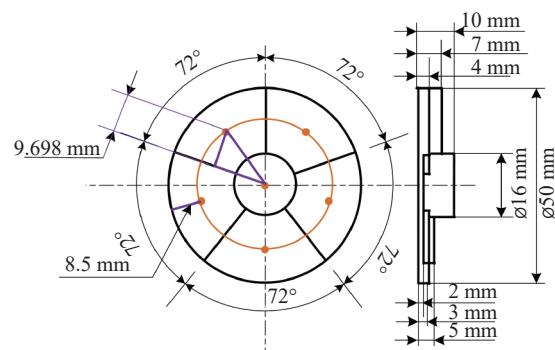


图 7 PDV 探头布置
Fig. 7 PDV probe arrangement

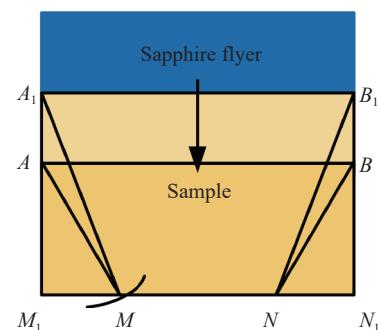


图 8 边侧稀疏的影响
Fig. 8 Effect of side sparsity

表 6 A 型炸药平面冲击边侧稀疏波数据(声速 $C = 5 \text{ km/s}$)
Table 6 Data of sparse waves on the side of flat impact of A explosives ($C = 5 \text{ km/s}$)

Shot No.	M_1M_2/mm	M_1M_3/mm	M_1M_4/mm	M_1M_5/mm	M_1M_7/mm	M_1M_{10}/mm
01	1.374	2.048	2.503	3.264	4.225	5.579
02	1.240	1.857	2.436	2.616	3.489	4.245
03	1.088	1.600	1.973	2.393	2.569	2.530

由数据分析可以得出, 每个探头到达炸药扇形边缘的距离为 $(50 - 33)/2 = 8.5 \text{ mm}$, 可以认为边侧稀疏波不会影响探头探测点。考虑相邻扇形台阶是否相互影响: 由于每个探头到达其他厚度炸药边缘的垂直距离为 $\sin 36^\circ \times (33/2) = 9.698 \text{ mm}$, 均大于不同厚度样品受边侧稀疏波影响的最大距离, 因此同样可以认为边侧稀疏波不会影响探头探测点。

3.2 PDV 测量不确定度分析

PDV 测速采用的探头既作为激光发射器也作为反射光接收器, 测量的是粒子运动速度矢量在平行于测速探头方向的分量。根据 PDV 速度计算公式可以得到 PDV 测速探头角度相对标准不确定度。PDV 速度计算公式为

$$v(t) = \frac{\lambda(t)}{2} \cdot f(t) \cdot \cos \theta(t) \quad (6)$$

式中: $\lambda(t)$ 为激光波长, $\theta(t)$ 为探头与样品运动速度方向的夹角, $f(t)$ 为干涉信号的瞬时频率。当探头到 LiF 窗口的工作距离为 30 mm, 角度偏差小于 8° 时, 相对标准不确定度小于 1%。实际上, 由于测速探头具有一定孔径, 探头有效孔径内射出的光线在靶面被漫反射后, 探头孔径内的漫反射光都会被收集, 导致干涉信号为多个频率成分叠加, 根据中国工程物理研究院流体物理研究所刘寿先等提供的数据: 假设光纤探头的有效直径为 1.0 mm, 当工作距离为 30 mm 时, 最大相对误差为 0.028%。在测量加窗界面粒子速度时, 冲击波作用下的 LiF 窗口材料折射率发生改变, 引入了附加频移, 需将测量的表观速度信号进行修正, 而 LiF 修正系数的不确定度为 0.292%~0.495%^[2]。

4 结 论

采用 PDV 和组合式电磁粒子速度计技术分别测量了同种炸药样品的粒子速度。由于组合式电磁粒子速度计属于接触式测量, 会影响原本的一维反应流场, 导致测量的冲击波后粒子速度偏小, 并且得到的粒子速度曲线存在噪声, 使数据点读取存在较大误差。PDV 测速实验利用台阶型炸药样品, 在同一发实验中能够得到不同位置处炸药的粒子速度, 相较于单发普通圆柱形样品, 本实验装置简洁, 避免了大量重复实验操作, 得到的测试信号上升前沿窄, 速度曲线平滑, 精度更高。

实验中考虑并分析了 PDV 测速探头角度、探头孔径、窗口折射率等的影响, 得到测速的相对不确定度均小于 1%。每个探头到达炸药扇形边缘的距离为 8.5 mm, 到达其他厚度炸药边缘的垂直距离为 9.698 mm, 边侧稀疏波不会影响探头探测点。相较于组合式电磁粒子速度计, PDV 测试技术能为炸药性能研究和数值建模提供更准确的实验数据。

参 考 文 献:

- [1] MORO E A. New developments in photon Doppler velocimetry [J]. *Journal of Physics: Conference Series*, 2014, 500(14): 142023.
- [2] JENSEN B J, HOLT Kamp D B, RIGG P A, et al. Accuracy limits and window corrections for photon Doppler velocimetry [J]. *Journal of Applied Physics*, 2007, 101(1): 013523.
- [3] DOLAN D H. Accuracy and precision in photonic Doppler velocimetry [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2010, 81(5): 053905.
- [4] GUSTAVSEN R L, BARTRAM B D, SANCHEZ N J. Detonation wave profiles measured in plastic bonded explosives using 1550 nm photon Doppler velocimetry [C]//Shock Compression of Condensed Matter 2009. USA: AIP Conference Proceedings, 2009: 253-256.
- [5] 张涛, 赵继波, 伍星, 等. JBO-9021 炸药的冲击起爆 Pop 关系 [J]. 爆炸与冲击, 2018, 38(4): 743-748.
ZHANG T, ZHAO J B, WU X, et al. Pop relationship of JBO-9021 explosives [J]. *Explosion and Shock Waves*, 2018, 38(4): 743-748.
- [6] 裴红波, 黄文斌, 覃锦程, 等. 基于多普勒测速技术的 JB-9014 炸药反应区结构研究 [J]. 爆炸与冲击, 2018, 38(3): 485-490.
PEI H B, HUANG W B, QIN J C, et al. Reaction zone structure of JB-9014 explosive measured by PDV [J]. *Explosion and Shock Waves*, 2018, 38(3): 485-490.
- [7] 张琪敏, 张旭, 赵康, 等. TATB 基钝感炸药 JB-9014 的冲击起爆反应增长规律 [J]. 爆炸与冲击, 2019, 39(4): 041405.
ZHANG Q M, ZHANG X, ZHAO K, et al. Law of reaction growth of shock initiation on the TATB based insensitive explosive JB-9014 [J]. *Explosion and Shock Waves*, 2019, 39(4): 041405.
- [8] 刘俊明, 张旭, 裴红波, 等. JB-9014 钝感炸药冲击 Hugoniot 关系测量 [J]. 高压物理学报, 2018, 32(3): 033202.
LIU J M, ZHANG X, PEI H B, et al. Measurement of Hugoniot relation for JB-9014 insensitive explosive [J]. *Chinese Journal of High Pressure Physics*, 2018, 32(3): 033202.
- [9] 刘俊明, 张旭, 赵康, 等. 用 PVDF 压力计研究未反应 JB-9014 钝感炸药的 Grüneisen 参数 [J]. 高压物理学报, 2018, 32(5): 051301.
LIU J M, ZHANG X, ZHAO K, et al. Using PVDF gauge to study Grüneisen parameter of unreacted JB-9014 insensitive explosive [J]. *Chinese Journal of High Pressure Physics*, 2018, 32(5): 051301.
- [10] 赵万广, 周显明, 李加波, 等. LiF 单晶的高压折射率及窗口速度的修正 [J]. *高压物理学报*, 2014, 28(5): 571-576.
ZHAO W G, ZHOU X M, LI J B, et al. Refractive index of LiF single crystal at high pressure and its window correction [J]. *Chinese Journal of High Pressure Physics*, 2014, 28(5): 571-576.
- [11] CAU J F. Inappropriate use of inclined electromagnetic velocity gauges in explosive [C]//Proceedings of 10th Symposium on Detonation. Office of Naval Research Report ONR, 1993: 33395-12.
- [12] 谭华. 实验冲击波物理导引 [M]. 北京: 国防工业出版社, 2007.
TAN H. Experimental shock wave physics guidance [M]. Beijing: National Defense Industry Press, 2007.

PDV Technology of Shock Initiation Reaction Process of Insensitive Explosive

YANG Shuqi, ZHANG Xu, PENG Wenyang, SHU Junxiang, LIU Shouxian, QIN Shuang, ZHONG Bin

(Institute of Fluid Physics, CAEP, Mianyang 621999, Sichuan, China)

Abstract: The shock initiation reaction of A-type insensitive explosive has been investigated by means of the one-dimensional planar impact experiment and photon Doppler velocimetry technique (PDV). In this experiment, a sapphire flyer was launched by the powder gun and then impacted the stepped insensitive explosive A. Meanwhile, the wedge-shaped lithium fluoride (LiF) windows coated with aluminum films were stuck to the different rear interfaces of stepped explosive. Therefore, the particle velocities among these interfaces could be measured. By employing the impedance matching method, the particle velocities in the explosive A were eventually obtained. The experimental results show that the PDV has a higher precision than the multiple electromagnetic particle velocity gauge. The effects of the speed probe's angle, the probe's aperture, and the refractive index of the window are briefly analyzed. The relative uncertainty of the measured speed is within 1%.

Keywords: photonic Doppler velocimetry (PDV); stepped insensitive explosive; side sparse angle; multiple electromagnetic particle velocity gauge

利用电磁法研究 HMX 与 TATB 混合 钝感炸药的冲击起爆特性

杨舒棋, 张 旭, 彭文杨, 舒俊翔, 覃 双, 钟 斌

(中国工程物理研究院流体物理研究所, 四川 绵阳 621999)

摘要: 为研究含有少量奥克托金 (HMX) 且以三氨基三硝基苯 (TATB) 为基的高能钝感炸药 PBX-3 的冲击起爆反应增长规律, 采用火炮驱动蓝宝石飞片的方法和铝基组合式电磁粒子速度计技术进行了一维平面冲击实验。通过实验测量撞击表面及内部不同深度处的冲击波后粒子速度, 得到 PBX-3 炸药的 Hugoniot 关系。根据冲击波示踪器所测数据绘制了炸药到爆轰的时间-距离 ($x-t$) 图, 获得了反映炸药冲击起爆性能的 Pop 关系。将入射压力为 12.964 GPa 时达到爆轰的 6 条速度曲线修整成相同零点, 通过读取 6 条曲线的分离点即反应区末端的 C-J 点, 计算出化学反应区时间和宽度。

关键词: 奥克托金 (HMX); 组合式电磁粒子速度计; Hugoniot 关系; Pop 关系; 化学反应区

中图分类号: O384

文献标识码: A

钝感炸药 (Insensitive high explosive, IHE) 的安全性能是弹药设计的重点。以三氨基三硝基苯 (TATB) 为基的钝感炸药在国防领域有着广泛应用, PBX-3 炸药为我国研制的含有少量奥克托金 (HMX) 的 TATB 基新型高能钝感塑性黏结炸药, 开展其性能研究对炸药的应用和改进具有重要意义。

PBX-3 炸药含有少量 HMX, 冲击起爆感度更高, 当入射压力为 6.754 GPa 时, 炸药样品在 9.439 mm 处就开始稳定爆轰, 较 TATB 基 PBX9502 炸药和 JB-9014 炸药具有更优异的爆轰性能和冲击感度。张琪敏等^[1] 研究了纯 TATB 基钝感炸药在入射压力为 11.330~14.180 GPa 范围内的冲击起爆反应增长规律, 结果表明, 当入射压力达到 11.334 GPa 时, 炸药样品在 9.590 mm 处才开始稳定爆轰。同时, PBX-3 炸药的钝感性能优于 HMX 基 PBX9501 炸药和 JOB-9003 炸药, 因此制作加工和运输使用更加安全。

国内外研究炸药性能常用的测试方法有锰铜压力计法、PVDF 压电传感器法、组合式电磁粒子速度计测试技术和激光干涉测试技术等。锰铜压力计的响应时间长, 测量精度受到压阻系数、绝缘保护膜等因素影响。PVDF 压电传感器的测试上限为 35 GPa, 当压力大于 10 GPa 时不能忽略温度的影响。组合式电磁粒子速度计技术和激光干涉技术是近些年国内外广泛使用的测试技术^[2-4]。激光干涉测试技术只能测量冲击加载界面的粒子速度, 对于普通圆柱形炸药样品, 无法在一次冲击实验中得到不同深度处样品的粒子速度, 为此炸药样品的形状需特殊加工 (如台阶形或楔形), 并且炸药到爆轰的距离和时间需要采用其他测试方法。张涛等^[5] 采用激光干涉测速系统得到了冲击波进入炸药特定深度位置处的波后粒子速度剖面, 同时结合高速扫描相机得到了炸药样品到爆轰的距离。组合式电磁粒子速度计具有实验操作简便、响应灵敏的特点, 采用的铝金属丝更加接近炸药样品的阻抗, 从而减小对流场的破坏。本研究采用铝基组合式电磁粒子速度计技术测量楔形炸药样品的撞击表面及内部不同深度处的冲击波后粒子速度, 利用示踪器得到前沿冲击波位置随时间的变化关系, 通过一次样品冲击实验即可为研究炸药样品的 Hugoniot 关系、Pop 关系甚至化学反应区提供丰富的实验数据。

* 收稿日期: 2019-11-01; 修回日期: 2019-11-12

基金项目: 军科委基础加强重点项目(2019-JCJQ-ZD-203); 科学挑战专题(TZ2018001)

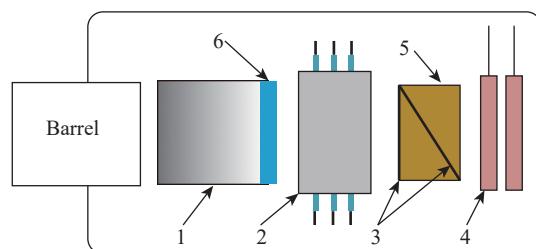
作者简介: 杨舒棋(1993-), 女, 硕士研究生, 主要从事冲击起爆研究. E-mail: yangshuqi77@126.com

通信作者: 张 旭(1972-), 男, 研究员, 博士生导师, 主要从事流体动力学研究. E-mail: caepzx@sohu.com

1 实验测试系统

实验采用火炮加载系统驱动蓝宝石飞片撞击炸药, 进行一维平面冲击实验。实验装置主要包括火炮驱动系统、铝弹托、蓝宝石飞片、激光测速环等, 实验测试系统如图1所示。通过改变火药装药量控制蓝宝石飞片速度, 进而控制初始入射压力。

PBX-3 炸药样品是 $\varnothing 42\text{ mm} \times 30\text{ mm}$ 的圆柱形组合药柱。为测量不同深度处炸药样品的冲击波后粒子速度, 炸药样品被切割成两块 30° 角的楔形, 用环氧树脂把组合式电磁粒子速度计嵌入两块楔形炸药中。利用蓝宝石飞片通过激光测速环时遮挡3组激光束的时间差来计算飞片速度, 同时在炸药表面用环氧树脂粘贴3个电磁粒子速度计, 用于测量蓝宝石飞片撞击炸药表面时的瞬时界面粒子速度。在冲击波传播方向, 利用铝基组合式电磁粒子速度计(8个电磁粒子速度计)测量炸药样品的波后粒子速度, 其深度间隔为1 mm, 3个冲击波示踪器元件的间距为0.5 mm, 组合式电磁粒子速度计的安装如图2所示。



1. Sabot; 2. Velocity-measuring ring; 3. Aluminum-based multiple electromagnetic particle velocity gauge; 4. Target buffer; 5. PBX-3 explosive sample; 6. Sapphire.

图1 组合式电磁粒子速度计实验测试系统

Fig. 1 Measurement system of aluminum-based multiple electromagnetic particle velocity gauge

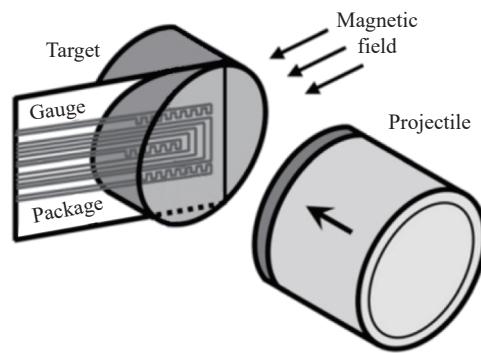


图2 铝基组合式电磁粒子速度计的安装

Fig. 2 Installation of aluminum-based multiple electromagnetic particle velocity gauge

2 实验数据处理

2.1 粒子速度处理原理

在冲击波作用下, 组合式电磁粒子速度计在均匀磁场中切割磁感线产生感应电动势。根据法拉第电磁感应定律, 粒子速度与感应电动势的关系为

$$u = \frac{E}{Bl} \quad (1)$$

式中: u 为粒子速度, m/s ; E 为电动势, V ; B 为磁场强度, T ; l 为切割磁感线长度, m 。

因为感应电动势由电磁粒子速度计电阻、连接的导线以及示波器自带电阻以串联形式共同分担表示, 所以在计算炸药不同深度处电磁粒子速度计测量得到的粒子速度时, 需要乘以补偿系数

$$\frac{E}{E_{\text{oscilloscope}}} = \frac{R_{\text{oscilloscope}} + (R - \Delta R)}{R_{\text{oscilloscope}}} \quad (2)$$

式中: $E_{\text{oscilloscope}}$ 为实验中由示波器测量得到的感应电动势, $R_{\text{oscilloscope}}$ 为示波器的电阻(50Ω), R 为实验中电磁粒子速度计和连接导线本身电阻之和(实验使用万用表测量电阻, 故计算时需减去万用表本底电阻), ΔR 为万用表本身的电阻。

结合式(1)和式(2), 得到粒子速度计算公式为

$$u = \frac{E_{\text{oscilloscope}}}{Bl} \left(1 + \frac{R - \Delta R}{R_{\text{oscilloscope}}} \right) \quad (3)$$

2.2 入射压力计算

通过改变火炮加载系统的火药装药量, 得到递增的蓝宝石飞片撞击速度。6 发实验的火药装药量为 500、600、700、800、900 和 1 100 g, 分别命名为 Shot 01、Shot 02、Shot 03、Shot 04、Shot 05、Shot 06。利用阻抗匹配法分析计算蓝宝石飞片撞击炸药过程产生的入射压力

$$p_{0L} = \rho_{0L} D_L (u_{imp} - u_p) \quad (4)$$

$$p_{0S} = \rho_{0S} D_S u_p \quad (5)$$

式中: p_{0L} 为蓝宝石初始入射冲击压力, GPa; p_{0S} 为炸药样品初始入射冲击压力, GPa; ρ_{0L} 为蓝宝石初始密度, g/cm³; ρ_{0S} 为炸药样品初始密度, g/cm³; D_L 为蓝宝石中的冲击波速度, km/s; D_S 为炸药样品的入射冲击波速度, km/s; u_{imp} 为蓝宝石飞片的撞击速度, km/s; u_p 为波后粒子速度, km/s。

根据蓝宝石材料和 PBX-3 炸药的 Hugoniot 关系, 将式(4)写为

$$p_{0L} = \rho_{0L} [C_{0L} + \lambda_L (u_{imp} - u_p)] (u_{imp} - u_p) \quad (6)$$

式中: 蓝宝石的初始密度 $\rho_{0L} = 3.985$ g/cm³; Hugoniot 系数 $C_{0L} = 11.19$ km/s, $\lambda_L = 1.0$ 。

由界面连续性可知 $p_{0L} = p_{0S}$, 结合式(5)和式(6), 得到未反应炸药的波后粒子速度 u_p , 并计算得出实验的初始入射冲击压力 p_0 , 结果如表 1 所示。

表 1 PBX-3 炸药平面冲击实验参数

Table 1 Parameters of plane impact experiments on PBX-3 explosive

Shot No.	m/g	$\rho_0/(g \cdot cm^{-3})$	$D_S/(km \cdot s^{-1})$	$u_p/(km \cdot s^{-1})$	p_0/GPa
01	500	1.900	3.966	0.724	5.456
02	600	1.900	4.283	0.830	6.754
03	700	1.900	4.516	1.019	8.743
04	800	1.900	4.492	1.096	9.354
05	900	1.900	4.808	1.132	10.341
06	1 100	1.900	5.281	1.292	12.964

2.3 粒子速度-时间曲线和 $x-t$ 图

利用式(3)对实验数据进行处理, 得到炸药样品的波后粒子速度, 根据示踪器数据得到炸药样品到爆轰的位置与时间的关系, 结果如图 3 所示。图 3(a)所示为 Shot 01 实验, 入射压力为 5.456 GPa。可见, 随着样品发生化学反应释放能量, 粒子速度上升后缓慢增长, 粒子速度达到最大值后, 随着化学反应结束又逐渐减小, 速度信号呈“驼峰”形状。随着冲击波强度的增加, 炸药反应速率不断加快, “驼峰”形状中速度上升部分加速减小, 但并没有转变为爆轰。图 3(b)所示为 Shot 02 实验, 入射压力为 6.745 GPa, 粒子速度达到最大值的时间间隔逐渐减小, “驼峰”形状逐渐尖锐, 说明此时化学反应释放的能量使冲击波逐渐加强。当入射压力达到 8.743 GPa 时, 如图 3(c)所示的 Shot 03 实验, 距离炸药样品 8 mm 处的粒子速度曲线出现迅速增长, 达到最大速度后转变为逐渐减小的三角波形, 说明炸药样品形成稳定的爆轰波, 完成了冲击转爆轰过程(SDT)。

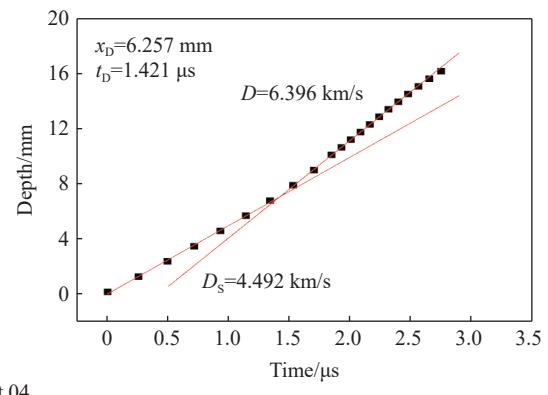
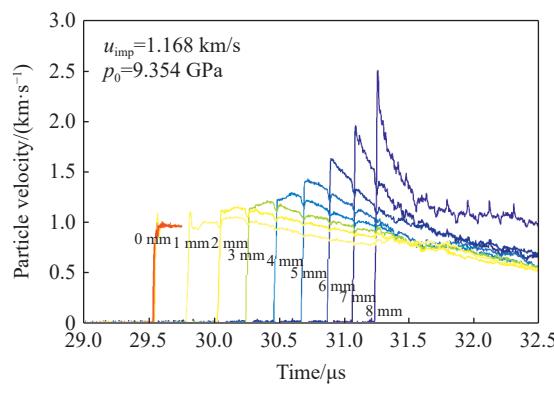
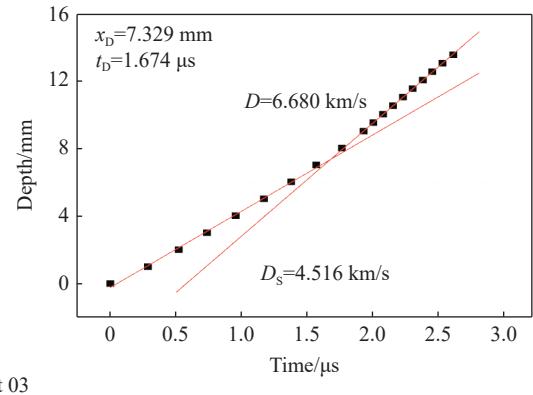
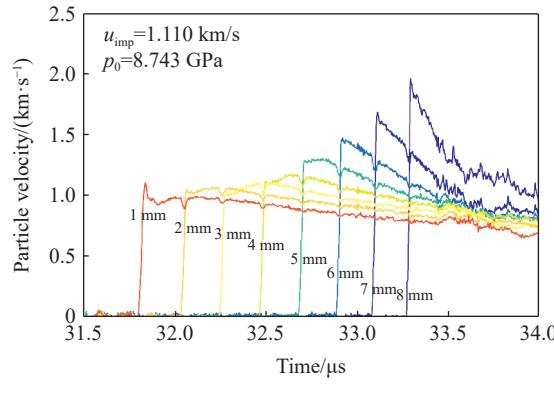
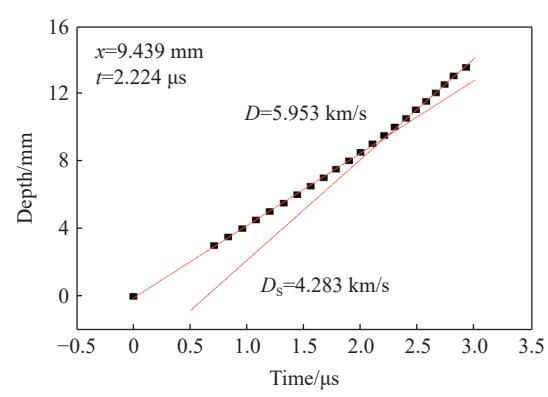
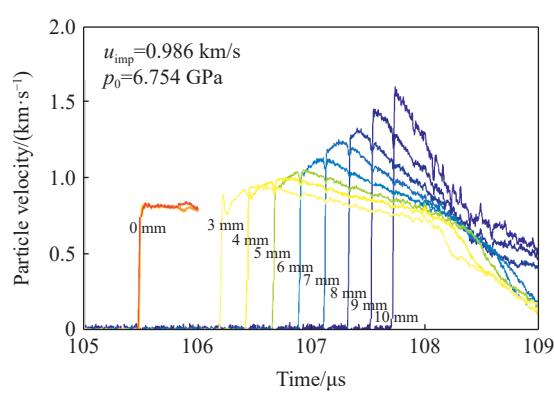
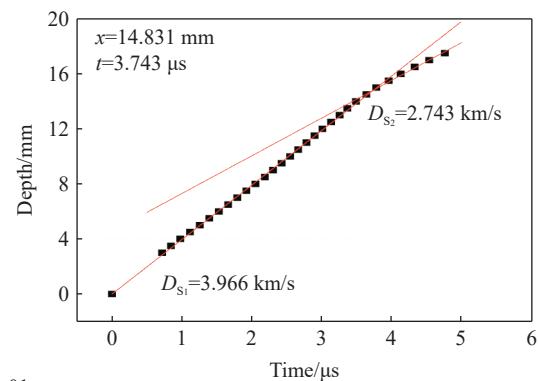
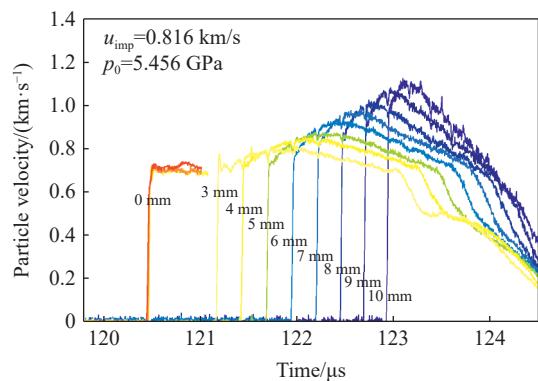
3 数据分析

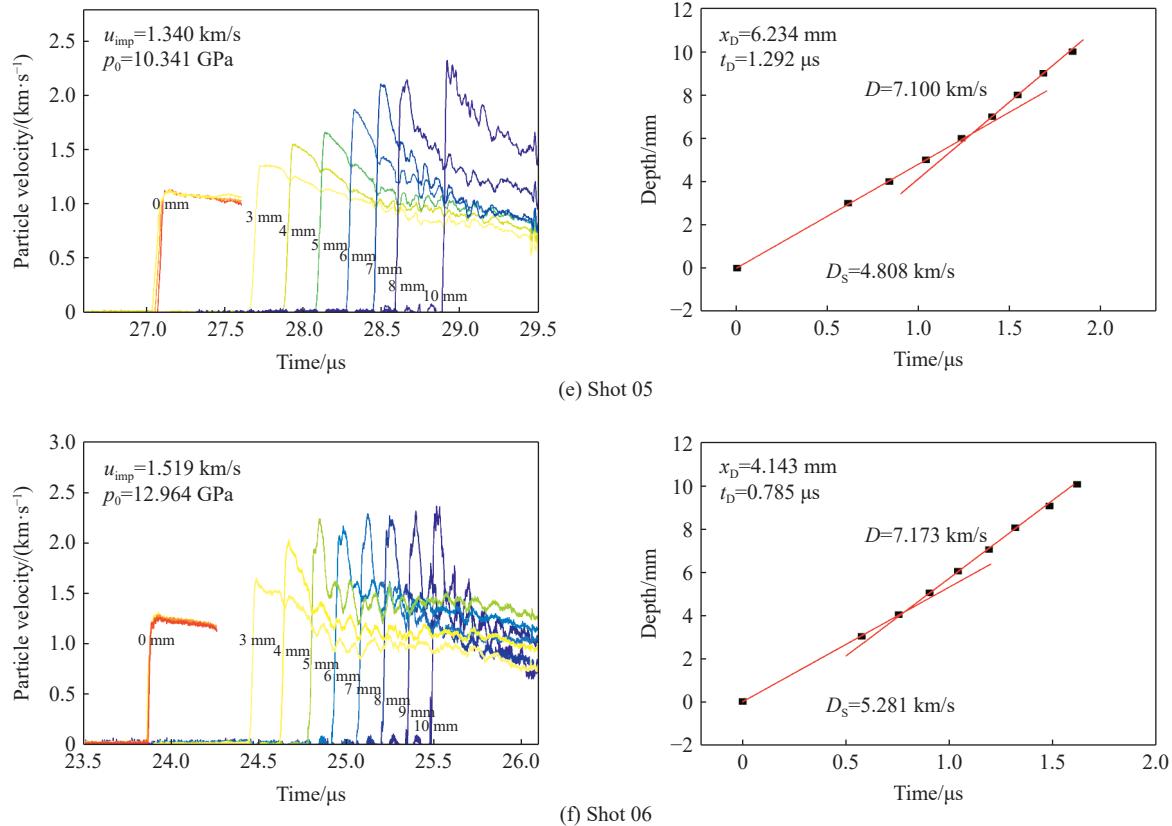
3.1 PBX-3 炸药的 Hugoniot 关系

实际应用中, 炸药样品的入射冲击波速度 D_S 与粒子速度 u_p 之间近似遵循线性关系

$$D_S = C_0 + \lambda u_p \quad (7)$$

式中: D_S 为炸药样品中的入射冲击波速度, km/s; C_0 和 λ 为常数; u_p 为波后粒子速度, km/s。



图3 PBX-3 炸药的粒子速度-时间曲线和 x - t 曲线Fig. 3 Particle velocity-time and x - t curves of PBX-3 explosive

由于相邻两个速度计间隔是已知的,从粒子速度曲线上读取冲击波到达相邻两个测试点的时间即可计算得到炸药样品不同深度处的入射冲击波速度 D_s 。如表2所示,随着冲击波在炸药样品内传播,冲击波波速逐渐增大。以图3(d)中3 mm处粒子速度曲线为例,利用图4所示的方法^[6],将粒子速度分成两部分进行线性拟合,两条拟合直线的交点则为Hugoniot关系中的波后粒子速度 u_p 。表2为6发实验所测PBX-3炸药的 D_s - u_p 实验数据,选取炸药样品达到爆轰之前的部分实验数据,绘制成如图5所示的冲击Hugoniot关系图,并得到PBX-3炸药的冲击Hugoniot关系式

$$D_s = (3.102 \pm 0.140) + (1.234 \pm 0.115)u_p \quad (8)$$

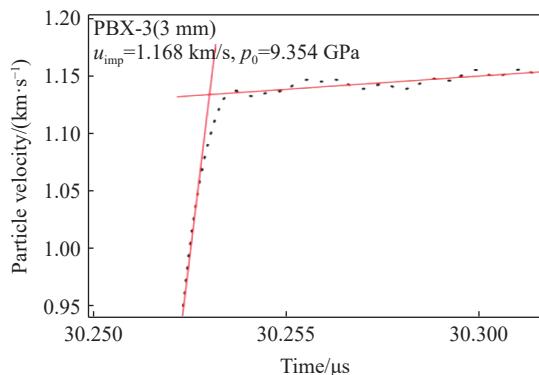


图4 两条拟合直线交点细节

Fig. 4 Details of two fitted straight lines' intersection

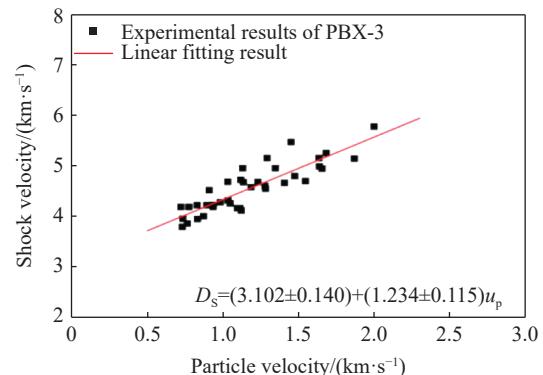


图5 未反应PBX-3炸药的Hugoniot关系

Fig. 5 Hugoniot relationship of uncreated PBX-3 explosive

表2 PBX-3 炸药的 D_s - u_p 实验数据Table 2 Experimental results of D_s - u_p for PBX-3 explosive

Depth/mm	Shot 01		Shot 02		Shot 03	
	u_p /(km·s ⁻¹)	D_s /(km·s ⁻¹)	u_p /(km·s ⁻¹)	D_s /(km·s ⁻¹)	u_p /(km·s ⁻¹)	D_s /(km·s ⁻¹)
0	0.724	4.189	0.830	4.224	1.019	3.489
1					1.104	3.489
2					1.049	4.259
3	0.776	4.189	0.894	4.224	1.033	4.686
4	0.737	3.956	0.911	4.521	1.118	4.726
5	0.732	3.796	0.938	4.229	1.282	4.546
6	0.766	3.864	1.034	4.318	1.474	4.799
7	0.833	3.950	1.187	4.579	1.682	5.252
8	0.873	4.007	1.279	4.604	1.957	5.165
9	0.937	4.190	1.450	5.470		
10	0.983	4.280	1.598	4.960		

Depth/mm	Shot 04		Shot 05		Shot 06	
	u_p /(km·s ⁻¹)	D_s /(km·s ⁻¹)	u_p /(km·s ⁻¹)	D_s /(km·s ⁻¹)	u_p /(km·s ⁻¹)	D_s /(km·s ⁻¹)
0	1.096	4.164	1.131	4.955	1.292	5.152
1	1.113	4.164				
2	1.122	4.119				
3	1.137	4.680	1.347	4.955	1.634	5.152
4	1.232	4.682	1.545	4.699	1.998	5.774
5	1.407	4.664	1.654	4.947	2.230	6.187
6	1.637	4.990	1.867	5.144	2.066	7.353
7	1.962	5.213	2.104	5.656	2.282	7.082
8	2.510	5.868	2.137	7.083	2.120	7.043
9					2.308	6.746
10			2.318	6.699	2.283	7.374

3.2 PBX-3 炸药的 Pop 关系

炸药的初始入射压力与到爆轰距离 x_D (到爆轰时间 t_D) 的关系称为 Pop 关系, 反映了炸药的冲击起爆性能。组合式电磁粒子速度计的冲击波示踪器呈“梯子锯齿”状, 示踪器元件切割磁感线产生的电压会发生正负周期性变化。在冲击波传播方向, 冲击波示踪器中每个测量元件的间距为 0.5 mm, 结合正负电压信号转变的时间间隔, 可以得到冲击波速度。根据示踪器信号, 可以绘制出显示前沿冲击波位置随时间的变化关系(x - t 图), 如图 3 所示。由图 3 中的实验数据拟合出两条直线, 其斜率分别表示未反应炸药的平均冲击速度和爆轰速度, 两条拟合线的交点表示到爆轰的位置和时间, 结果如表 3 所示。根据表 3 数据可以得到初始入射压力在 5.456 ~ 12.964 GPa 范围内的 PBX-3 炸药的 Pop 关系拟合线, 如图 6 所示。Pop 关系表达式为

$$\lg x_D = (2.013 \pm 0.133) - (1.236 \pm 0.136) \lg p_0 \quad (9)$$

为更好地研究 PBX-3 炸药的冲击起爆性能, 将纯 TATB 基炸药 TATB-1 的实验数据和 PBX-3 进行对比, 如图 7 所示。由图 7 可知, PBX-3 的 Pop 关系曲线在 TATB-1 的下方, 在相同入射压力条件下, PBX-3 到爆轰的时间更短。PBX-3 是少量 HMX 和 TATB 混合的钝感炸药, 由于 HMX 的爆轰压力和爆轰速度比 TATB 高, 故 PBX-3 炸药的冲击起爆性能比纯 TATB 基炸药 TATB-1 更敏感。

表3 PBX-3 炸药 Pop 关系相关参数
Table 3 Related parameters of PBX-3 explosive's Pop-plot

Shot No.	$\rho_0/(\text{g}\cdot\text{cm}^{-3})$	p_0/GPa	x_D/mm	$t_D/\mu\text{s}$
01	1.900	5.456		
02	1.900	6.754	9.439	2.224
03	1.900	8.743	7.329	1.674
04	1.900	9.354	6.257	1.421
05	1.900	10.341	6.234	1.292
06	1.900	12.964	4.143	0.785

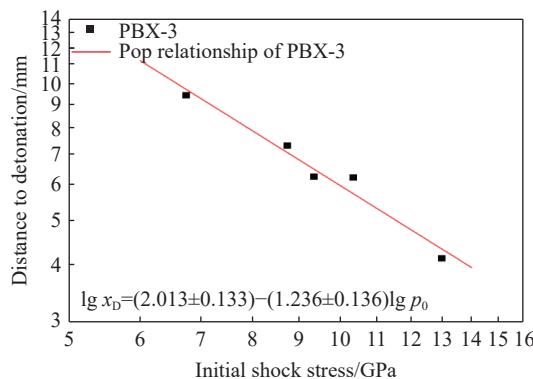


图6 PBX-3 炸药的Pop关系

Fig. 6 Pop-plot of PBX-3 explosive

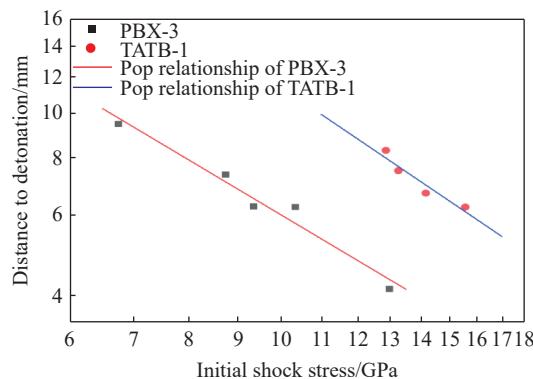


图7 PBX-3 和 TATB-1 的Pop关系

Fig. 7 Pop-plots of PBX-3 and TATB-1 explosive

3.3 PBX-3 炸药反应区评估

ZND(Zeldovich-von Neumann-Doring)模型是一种描述炸药爆轰波剖面的经典模型。模型假设爆轰波阵面是由前导冲击波和具有一定厚度的化学反应区组成。对于稳定传播的爆轰波,其终点为Chapman-Jouguet(C-J)点,化学反应终止时压力急剧下降至C-J点,C-J面后为等熵膨胀流动区,即泰勒波稀疏区,如图8所示。炸药样品发生稳定爆轰时,冲击波后粒子速度突跃至最大速度,随着化学反应的进行,从粒子速度曲线斜率的变化可知,样品粒子加速度由开始的快速下降逐渐变成缓慢下降。化学反应结束后,样品粒子受到泰勒波稀疏影响,在终点C-J点处发生分散,最终粒子加速度趋于零。

如图3(f)所示,组合式电磁粒子速度计测得的粒子速度曲线存在信号噪声,但PBX-3炸药界面粒子速度有较明显的拐点,可以通过读取炸药界面粒子速度的拐点(即受到泰勒波稀疏影响的粒子速度曲线分散点)粗略地确定炸药的C-J点,如图9所示。

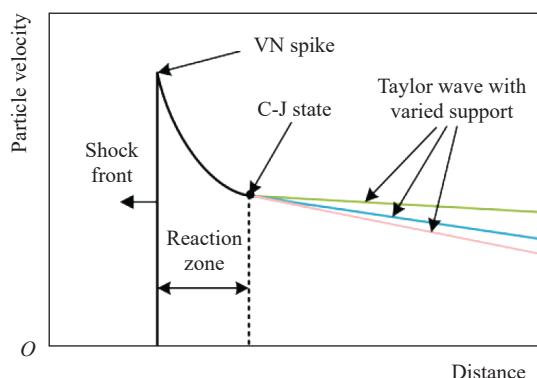


图8 爆轰反应区结构

Fig. 8 Structure of the detonation reaction zone

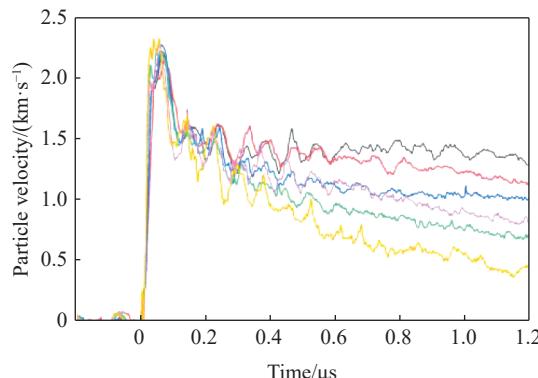


图9 6个速度曲线修正

Fig. 9 Correction of 6 speed curves

为了更准确地测量反应区时间,选择了爆轰波形一致性较好的实验数据。在 Shot 06 实验(入射压力为 12.964 GPa)中,炸药样品在 4.143 mm 处开始发生稳定爆轰,将达到爆轰的 6 条速度曲线(即 5~10 mm 深度处的粒子速度数据)修整成相同零点。在 0.226 μ s 处 6 条实验曲线分离,分离点即为反应区末端相应的 C-J 点,由此可得化学反应时间为 0.226 μ s。确定炸药化学反应区宽度的关系式^[7]为

$$x = \int_0^{\tau} (D_{\text{CJ}} - \bar{u}_p) dt \quad (10)$$

式中: τ 为化学反应区持续时间,为 0.226 μ s; D_{CJ} 为 PBX-3 炸药样品的 C-J 爆速,为 7.86 km/s; \bar{u}_p 为化学反应区持续时间内反应产物粒子平均速度(利用软件将速度曲线积分,得到反应区持续时间内反应产物粒子运动的位移,结合化学反应区持续时间,得到反应产物的粒子平均速度)。表 4 所列数据为计算得到的化学反应区宽度,均值为 1.449 mm。国内外学者^[8-10]主要采用速度和时间分辨率较高的激光干涉技术,结合状态方程、数值模拟和粒子速度求导等方法进行 TATB 基炸药反应区的研究。表 5 列出了国内外学者得到的 TATB 基炸药的反应区宽度和时间。由于 PBX-3 炸药含有少量 HMX,因而其化学反应区的持续时间和反应区宽度较纯 TATB 基炸药^[11]更短、更窄。

表 4 PBX-3 炸药化学反应区实验参数

Table 4 Parameters of chemical reaction zone of PBX-3 explosive

Depth/mm	$u_p/(\text{km}\cdot\text{s}^{-1})$	$t/\mu\text{s}$	x/mm	Depth/mm	$u_p/(\text{km}\cdot\text{s}^{-1})$	$t/\mu\text{s}$	x/mm
5	1.539	0.226	1.429	8	1.425	0.226	1.454
6	1.540	0.226	1.428	9	1.370	0.226	1.467
7	1.436	0.226	1.452	10	1.386	0.226	1.463

表 5 TATB 基炸药反应区相关参数

Table 5 Related parameters of reaction zone of TATB-based explosive

Shot No.	x/mm	$t/\mu\text{s}$	Source
PBX-3	1.449 ± 0.200	0.226 ± 0.030	This work
PBX9502	2.1	0.28	Ref.[8]
JB-9014	1.5 ± 0.2	0.26 ± 0.02	Ref.[9]
JB-9014	1.75	0.31	Ref.[10]

4 结 论

采用火炮驱动蓝宝石飞片方法和铝基组合式电磁粒子速度计技术,对高能钝感炸药 PBX-3 进行了一维平面冲击实验。利用 11 个电磁粒子速度计测量得到炸药撞击表面及内部不同深度处的冲击波后粒子速度,通过 3 个冲击波示踪器绘制了炸药到爆轰距离与时间的 $x-t$ 关系曲线。通过实验撞击表面及内部不同深度处冲击波后粒子速度 u_p 和入射冲击波速度 D_s ,得到 PBX-3 炸药的 Hugoniot 关系为 $D_s = (3.102 \pm 0.140) + (1.234 \pm 0.115)u_p$ 。根据炸药到爆轰时间与距离的 $x-t$ 关系曲线和初始入射压力,得到反映炸药冲击起爆性能的 Pop 关系为 $\lg x_p = (2.013 \pm 0.133) - (1.236 \pm 0.136)\lg p_0$ 。将入射压力为 12.964 GPa 时达到爆轰的 6 条速度曲线修整成相同零点,通过读取 6 条曲线的分离点,得到化学反应区时间为 $(0.226 \pm 0.030) \mu\text{s}$,化学反应区宽度为 $(1.449 \pm 0.200) \text{ mm}$ 。

参考文献:

- [1] 张琪敏, 张旭, 赵康, 等. TATB 基钝感炸药 JB-9014 的冲击起爆反应增长规律 [J]. 爆炸与冲击, 2019, 39(4): 041405.
 ZHANG Q M, ZHANG X, ZHAO K, et al. Law of reaction growth of shock initiation on the TATB based insensitive explosive JB-9014 [J]. Explosion and Shock Waves, 2019, 39(4): 041405.

- [2] HILL L G, GUSTAVSEN R L, ALCON R R, et al. Shock initiation of new and aged PBX 9501 measured with embedded electromagnetic particle velocity gauges: LA-13634-MS [R]. New Mexico, US: Los Alamos National Laboratory, 1999.
- [3] ZHANG X, WANG Y F, HUANG W B, et al. Reaction buildup of PBX explosives JOB-9003 under different initiation pressures [J]. *Journal of Energetic Materials*, 2017, 35(2): 197–212.
- [4] GUSTAVSEN R L, GEHR R J, BUCHOLTZ S M, et al. Shock initiation of the tri-amino-tri-nitro-benzene explosive PBX9502 cooled to -55°C [J]. *Journal of Applied Physics*, 2012, 112(7): 074909.
- [5] 张涛, 赵继波, 伍星, 等. 未反应 JBO-9021 炸药冲击雨贡纽曲线的研究 [J]. *高压物理学报*, 2016, 30(6): 457–462.
ZHANG T, ZHAO J B, WU X, et al. Hugoniot curve of unreacted JBO-9021 explosive [J]. *Chinese Journal of High Pressure Physics*, 2016, 30(6): 457–462.
- [6] GUSTAVSEN R L, SHEFFIELD S A, ALCON R R. Measurements of shock initiation in the tri-amino-tri-nitro-benzene based explosive PBX 9502: wave forms from embedded gauges and comparison of four different material lots [J]. *Journal of Applied Physics*, 2006, 99(11): 114907.
- [7] 张涛, 谷岩, 赵继波, 等. JBO-9021 炸药的化学反应区宽度 [J]. *爆炸与冲击*, 2017, 37(3): 415–421.
ZHANG T, GU Y, ZHAO J B, et al. Chemical reaction zone length of JBO-9021 [J]. *Explosion and Shock Waves*, 2017, 37(3): 415–421.
- [8] SHEFFIELD S A, BLOOMQUIST D D, TARVER C M. Subnanosecond measurements of detonation fronts in solid high explosives [J]. *The Journal of Chemical Physics*, 1984, 80(8): 3831–3844.
- [9] 裴红波, 黄文斌, 覃锦程, 等. 基于多普勒测速技术的 JB-9014 炸药反应区结构研究 [J]. *爆炸与冲击*, 2018, 38(3): 485–490.
PEI H B, HUANG W B, QIN J C, et al. Reaction zone structure of JB-9014 explosive measured by PDV [J]. *Explosion and Shock Waves*, 2018, 38(3): 485–490.
- [10] 赵同虎, 张新彦, 李斌, 等. 用光电法研究钝感炸药 JB-9014 反应区结构 [J]. *高压物理学报*, 2002, 16(2): 111–119.
ZHAO T H, ZHANG X Y, LI B, et al. Detonation reaction zones structure of JB-9014 [J]. *Chinese Journal of High Pressure Physics*, 2002, 16(2): 111–119.
- [11] LOBOIKO B G, LUBYATINSKY S N. Reaction zones of detonating solid explosives [J]. *Combustion, Explosion, and Shock Waves*, 2000, 36(6): 716–733.

Impact Initiation Characteristics of TATB Based Insensitive Explosives Mixed with HMX by Electromagnetic Velocity Gauges

YANG Shuqi, ZHANG Xu, PENG Wenyang, SHU Junxiang, QIN Shuang, ZHONG Bin

(Institute of Fluid Physics, CAEP, Mianyang 621999, Sichuan, China)

Abstract: In order to study the growth law of the impact initiation reaction of high energy insensitive PBX-3 explosive based on tri-amino-tri-nitro-benzene (TATB), containing a small amount of Oktokin (HMX), a one-dimensional plane impact test was carried out by the artillery-driven sapphire flyer method and the aluminum-based embedded multiple electromagnetic particle velocity gauge technique. The Hugoniot relationship of the unreacted PBX-3 explosive was obtained by measuring the velocity of the explosive on the surface and different depths inside. The $x-t$ of the explosive to the detonation time versus distance was established by the data measured by the shock wave tracer, and the Pop-plot reflecting the explosive initiation performance of the explosive was obtained. Six speed-to-detonation speed curves with an incident pressure of 12.964 GPa were trimmed to the same zero point. The time and width of the chemical reaction zone were obtained by reading the separation point of the six curves (the C-J point at the end of the reaction zone).

Keywords: Oktokin (HMX); multiple electromagnetic particle velocity gauge; Hugoniot relationship; Pop-plot; reaction zone