文章编号：1000-5773(2005)04-0365-06

无氧铜冲击熔化温度的辐射法测量*

张凌云，戴诚达，许灿华，谭 华

（中国工程物理研究院流体物理研究所冲击波物理与爆轰物理实验室，四川绵阳 621900）

摘要：在发生冲击熔化的情况下，金属样品/窗口界面压力下的熔化温度与卸载温度数值相等，且十分接近于界面温度值。根据这一结论，利用二级轻气炮加载手段和光辐射法测温技术，用氟化锂(LiF)单晶作透明窗口，获得了 110～140 GPa 压力范围内无氧铜的熔化温度。实验表明，无氧铜的高压熔化温度数据与文献发表的无氧铜高压声速实验结果是一致的，铜的高压熔化规律可用 Lindemann 熔化定律近似描述。采用的熔化温度测量方法不必反演出冲击温度，简化了冲击熔化温度的数据处理方法，为金属冲击熔化温度测量提供了一种潜在的技术途径。

关键词：光辐射法；界面温度；界面压力；熔化温度

中图分类号：O521.2 **文献标识码**：A

1 引 言

冲击熔化研究在材料状态方程研究中具有重要的意义和地位。冲击熔化温度测量是冲击熔化研究的一项重要内容，因为尽管冲击熔化温度可以通过理论计算获得[1,2]，但理论计算结果需要与实验结果比对，因此冲击熔化问题的研究离不开实验工作，包括冲击熔化温度的实验测量。

铜作为一种典型的过渡金属，在冲击波物理实验中是一种重要的中等冲击阻抗材料，其固-液相界的确定对冲击实验设计，特别是卸载路径测量的实验设计和结果分析具有重要价值。高压声速实验数据[3]表明，铜在 232 GPa 左右的冲击压力开始发生冲击熔化，当冲击压力达到 265 GPa 左右时进入液相区，其冲击熔化的起始点和完全熔化点的温度是通过热力学计算得到的，目前没有直接的熔化温度实验数据。本研究就是要通过铜的冲击熔化温度的辐射法测量，结合声速实验结果确定不同冲击压力下的熔化温度，并与 Lindemann 熔化定律进行比较，以期对铜的高压熔化规律有比较全面的了解。

2 实验原理与方法

目前，金属冲击熔化温度测量是通过测量 Hugoniot 温度线，并根据冲击熔化对 Hugoniot 温度影响(熔化潜热效应)来确定冲击熔化温度的[4,5]。金属 Hugoniot 温度测量是建立在样品/窗口理想界面热传导模型[6,7]基础上的。为了达到样品与窗口的理想接触，必须在光洁平整的透明窗口上镀金属膜样品，且要满足以下基本假设：(1) 金属膜与金属样品应具有一致的初始密度且至少有几个微米以上的厚度；(2) 金属膜/窗口界面平整、无间隙，当冲击波扫过此界面时，界面两侧立即达到热力学平衡；(3) 窗口材料在高压下保持透明，既不吸收热量也不发出明显的热辐射；(4) 界面为灰体辐射，即界面辐射源的发射率与辐射波长无关；(5) 样品和窗口的高压物性在高温高压下精确确定。

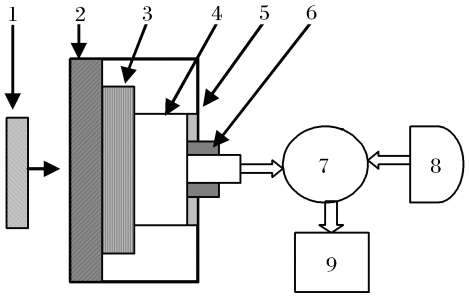
事实上，理想界面热传导模型没有考虑初始冲击熔化和卸载熔化的问题，利用该模型进行 Hugoniot 温度反演时也没有考虑熔化潜热对 Hugoniot 温度的影响。因此，根据冲击熔化对 Hugoniot 温度的影响(熔化潜热效应)来确定冲击熔化温度这样的做法是值得商榷的。另一方面，冲击压缩下金属样品/窗

* **收稿日期**：2004-05-08；**修回日期**：2004-08-01

作者简介：张凌云(1974—)，女，硕士.

口界面的熔化与凝固过程分析与模型计算表明,金属样品发生冲击熔化或卸载熔化时,“样品/窗口”的界面温度与界面压力下的熔化温度的差异不超过 5%[8],大致在界面温度的测量不确定度范围内。因此,在实验中我们首先利用能量判据[9]和无氧铜冲击熔化压力[3]合理选择实验加载压力,并将实验得到的“样品/窗口”界面温度作为界面压力下的熔化温度。

实验装置如图 1 所示,无氧铜样品/窗口的冲击加载状态是在中国工程物理研究院流体物理研究所冲击波物理与爆轰物理实验室的∅35 mm 二级轻气炮上实现的。实验加载时,由二级轻气炮将平面钽(Ta)飞片加速到几千米每秒的速度,使飞片平行撞击基板,撞击后基板中产生的冲击波进入块状无氧铜样品,对无氧铜样品进行冲击压缩。当冲击波到达无氧铜/LiF 窗口界面时,无氧铜的冲击压力卸载到窗口冲击压力。在实验设计时,为了满足无氧铜的冲击加载状态,综合考虑了飞片、基板、样品和窗口大小尺寸。无氧铜样品制成∅30 mm×2 mm 的小圆片。采用∅20 mm×8 mm 的 LiF 单晶作窗口材料。飞片采用钽,尺寸为∅32 mm×1.5 mm。基板材料与样品一致。对样品及窗口表面进行高精度加工和精细抛光,以尽量减小“样品/窗口”界面的间隙宽度,使界面温度尽快达到平衡。实验采用光纤高温计,光纤的数值孔径 $\sin\alpha=0.27$ 或 $\sin\alpha=0.37$,光纤端头光洁且与端面垂直。每次实验前用 WBr 灯作为标准光源对高温计进行现场标定[10],所用 WBr 灯的参数如表 1 所示。在高温计的线性工作区内,它的输出信号正比于它所接受到的能量。实验时组合光纤端面与窗口后界面平行整合接触。在实验中,飞片击靶速度用电磁感应法测量,弹丸速度的相对测量不确定度为 0.5%。样品/窗口界面的光辐射经波长为 400 nm、450 nm、500 nm、550 nm、600 nm、650 nm 和 700 nm 的滤光片滤光后,传输到高温计的光电倍增管,放大后用示波器记录,示波器采用多精度设置,以确保高的信号数据采集率,同时能获得尽可能高的数据分辨率。



1. Flyerplate; 2. Baseplate; 3. Sample; 4. LiF window; 5. Sample container; 6. Optical fiber; 7. Pyrometer; 8. High voltage provider; 9. Oscillograph

图 1 实验装置及辐射法测温示意图

Fig. 1 Sketch of experimental setup for emission temperature measurements

表 1 标准 WBr 带灯的 N_r 值

Table 1 N_r data for standard WBr lamp

λ /(nm)	N_{r1} /[μW/(cm^2 · nm · Sr)]	N_{r2} /[μW/(cm^2 · nm · Sr)]	λ /(nm)	N_{r1} /[μW/(cm^2 · nm · Sr)]	N_{r2} /[μW/(cm^2 · nm · Sr)]
400	28.91	17.9	600	166.12	109
450	56.68	35.7	650	197.53	131
500	92.87	58.8	700	221.44	148
550	130.34	84.6			

Notes: Calibration conditions for $N_r(\lambda)$: $l_0=100$ nm and $I=10.4$ A for Lamp 1; $l_0=100$ nm and $I=11.757$ A for Lamp 2.

用不等权最小二乘法对不同波长上观察到的光辐照度 $I_{exp}(\varepsilon,\lambda,T)$ 拟合成 Plank 灰体谱,就可得到一个界面辐射温度和一个平均发射率[10]

$$\chi^2=\sum_{i=1}^{n}\frac{\varepsilon\cdot I_{pl}(\lambda,T)-I_{exp}}{\sigma^2_{I_{exp}}} \tag{1}$$

式中:$I_{Pl}(\lambda,T)$为 Planck 函数,I_{exp}和 $\sigma_{I_{exp}}$分别为实验得到的特定波长下的光辐照亮度及其测量的相对不确定度

$$I_{exp}=N_r\left(\frac{l_{N_r}}{l_0}\right)^2\left(\frac{h}{h_0}\right)\left(\frac{R_0}{R}\right)\Big/[2\pi(1-\cos\alpha)] \tag{2}$$

式中:N_r 为标准灯的光辐照亮度,l_{N_r}为标准灯 N_r 标定时灯的位置与探头位置间的距离,l_0 为实验前高

温计标定时标准灯与光纤探头间的距离,h_0 为高温计标定时的输出幅度,h 为实验时观察到的输出幅度,R_0、R 分别为标定和实验时的负载电阻,α 为光纤的孔径角。如果用 u_{N_r}、$u_{I_{N_r}}$、u_{I_0}、u_{h_0}、u_h、u_{R_0}、u_R、u_α 分别表示这些变量的不确定度,由于这些量的测量是各自独立的,故 I_{exp} 的标准不确定度可以表示为

$$u_{I_{exp}}=\sqrt{\left(\frac{\partial I_{exp}}{\partial N_r}\right)^2 u_{N_r}^2+\left(\frac{\partial I_{exp}}{\partial I_{N_r}}\right)^2 u_{I_{N_r}}^2+\left(\frac{\partial I_{exp}}{\partial h_0}\right)^2 u_{h_0}^2+\left(\frac{\partial I_{exp}}{\partial h}\right)^2 u_h^2+\left(\frac{\partial I_{exp}}{\partial R}\right)^2 u_R^2+\left(\frac{\partial I_{exp}}{\partial R_0}\right)^2 u_{R_0}^2+\left(\frac{\partial I_{exp}}{\partial \alpha}\right)^2 u_\alpha^2} \tag{3}$$

式中:u_{N_r} 的值在 N_r(1%～2%)左右,在本实验中 N_r 取 2%。u_{h_0} 和 u_h 用示波器扫描线波动幅度的一半来表征。$\sigma_{I_{exp}}=u_{I_{exp}}/I_{exp}$,对 χ^2 最佳拟合就是寻求 ε 及 T,使 χ^2 具有最小值。由于 $\varepsilon=I_{exp}/I_{Pl}$,一旦 T 确定后,ε 的值也就完全确定了。因此,ε 不是一个独立的参量,(4)式相当于求 χ^2 的极值条件

$$f(T)=\frac{\partial \chi^2}{\partial T}+\frac{\partial \chi^2}{\partial \varepsilon}\cdot\frac{\mathrm{d}\varepsilon}{\mathrm{d}T}=0 \tag{4}$$

辐射温度和发射率的不确定度由下列方法[11]给出

$$\Delta T=\frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n}\delta T=\frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n}\frac{u_{I_{exp}}}{(\partial I_{exp}/\partial T)_{\varepsilon,\lambda}} \tag{5}$$

$$\Delta \varepsilon=\frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n}\delta \varepsilon=\frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n}\frac{u_{I_{exp}}}{(\partial I_{exp}/\partial \varepsilon)_{T,\lambda}} \tag{6}$$

式中:n 为观测时使用的高温计的通道数。在这里忽略 λ、C_1 和 C_2 的不确定度对 I_{exp} 造成的影响。

实验数据处理时涉及的相关材料的 Hugoniot 参数等数据列于表 2 中。计算时采用了 $\rho\gamma=\rho_0\gamma_0$ 近似。

表 2　实验相关材料 Hugoniot 参数及与热力学数据

Table 2　Hugoniot and thermodynamic data for material relevant to experiments

Material	ρ_0 /(g/cm^3)	C_0 /(km/s)	λ	γ_0	v_{M0} /(cm^3/g)	v_{L0} /(cm^3/g)	T_{M0} /(K)	c_V /[J/(mol·K)]	Δh_{M0} /(J/g)
Ta[12]	16.65	3.293	1.307						
Cu[9,12,13]	8.93	3.928	1.489	1.96	0.119 66	0.125 94	1 356	3R	205.5
LiF[14]	2.64	5.148	1.353	1.935					

Note: R is gas constant.

3　结果与讨论

原始实验数据列在表 3 中。图 2 给出无氧铜样品/LiF 窗口的典型光辐射历史(光辐照亮度随时间的变化),实验的原始记录数据是电压随时间的变化曲线,电压对应于光辐照亮度。光辐射源是与相对较冷的窗口处于热接触的、冲击卸载到与窗口冲击压力一致的样品表面。从示波器记录图上可以看出,高温计的各通道测到形状类似的信号,信号具有陡的上升前沿。由于没有在透明窗口上镀样品镆,无氧铜样品与窗口间的接触为非理想接触,因此在实验记录的光辐照历史中一开始就出现了尖峰,这与三层介质模型[15]的预测是一致的。这种特征表明样品与窗口之间出现了短暂的高温,其中也可能叠加着短暂的气体冲击压缩闪光。

把实验所得的无氧铜样品/氟化锂窗口界面不同波长下的光辐照历史中的平台(幅度)转化成光辐照亮度,并拟合成 Planck 灰体辐射谱,就可得到一个界面辐射温度和一个平均发射率。如图 2 中的拟合曲线所示,曲线代表灰体函数的最佳拟合,$T=(4755\pm173)$ K,$\varepsilon=0.303\pm0.060$,温度和发射率的不确定度由(5)式、(6)式给出。

应当指出的是,界面灰体假定和窗口的透明性是影响所测温度结果的两个主要因素,其影响没有反映在拟合温度的不确定度中。无论是动态加载还是静态加载实验,界面灰体假定是辐射法测温的一个基本假定。目前很难从理论上来确定无氧铜/LiF 窗口界面在冲击压缩下是否为灰体辐射,但实验观测到的不同波长上的光辐照亮度分布在实验测量的不确定度范围内基本符合 Planck 灰体谱(图 2),可判断冲击压缩下该界面可近似当作灰体辐射处理。LiF 单晶是一种透明的窗口材料[7],但由于冲击阻抗

较低,因此熔化温度的压力点相对较低。至于更低压力下的熔化温度,一方面因无法实现冲击或卸载熔化,另一方面受高温计测温范围的限制而无法获得。对于较高阻抗的蓝宝石窗口材料,最近的实验研究发现它在冲击压缩下存在着不同程度的吸收及自发光现象[16,17],因此,我们的实验中没有使用蓝宝石作窗口,因此没有得到较高压力下的熔化温度数据。

表 3 原始实验数据

Table 3 Raw data from copper/LiF interfacial temperature measurements

Exp. No.	λ /(nm)	h_0 /(mV)	h /(mV)	R_0 /(kΩ)	$\sin\alpha$	σ_λ	I_{exp} /[TW/(m^3 · Sr)]
03-0918	400	45.8	63.5	52.2	0.27	0.095	1.9
	500	98.4	57.0			0.098	2.6
	550	99.2	47.3			0.104	3.0
	600	148.0	59.1			0.101	3.2
	700	200.0	53.9			0.101	2.8
04-0302	400	40.0	68.0	52.2	0.27	0.124	1.3
	450	60.0	46.0			0.136	1.2
	500	80.0	60.0			0.118	1.9
	550	100.0	54.0			0.124	2.1
	600	120.0	46.0			0.136	1.9
	650	160.0	60.0			0.117	2.2
	700	40.0	14.0			0.110	2.2
04-0304	400	22.1	320.0	52.2	0.37	0.074	6.1
	550	63.6	264.0			0.075	8.2
	600	83.2	260.0			0.077	7.9
	650	104.4	312.0			0.073	8.8
	700	103.2	248.0			0.077	8.2

Note: Exp. No. 03-0918 utilizes Lamp 1, 04-0302 and 04-0304 utilize Lampe 2 for calibration. l_0 = 100 mm in calibration.

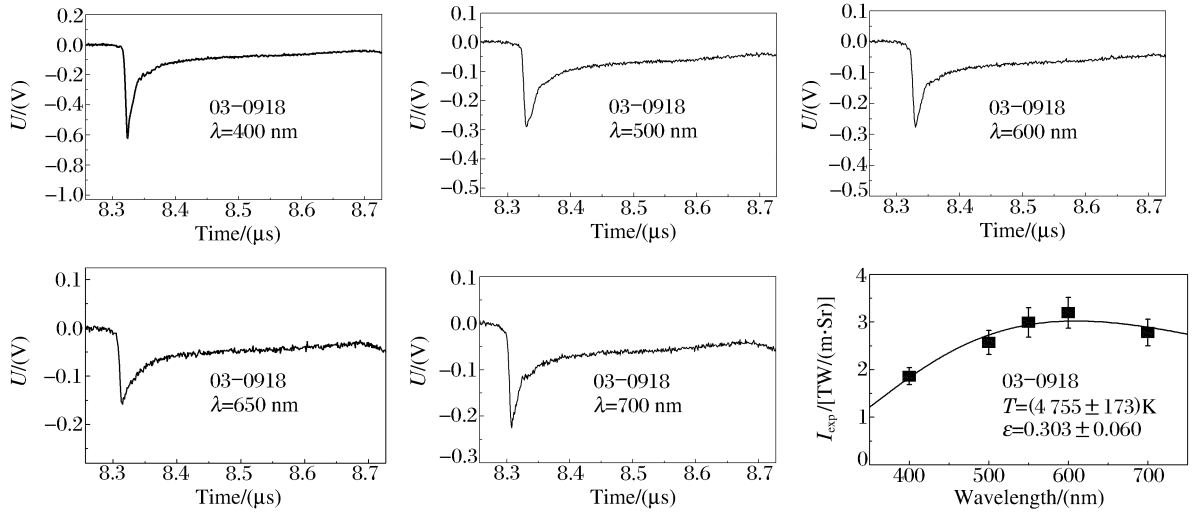


图 2 典型的无氧铜/氟化锂界面光谱辐照亮度历史及其对应的界面温度拟合结果

(无氧铜的冲击压力为 261 GPa,卸载压力为 133 GPa)

Fig. 2 Typical radiance profiles at discrete wavelengths observed from sample/LiF interface and the fitted Planck greybody spectrum with an interfacial temperature and an average emissivity

(Hugoniot pressure and release pressure are 261 GPa and 133 GPa, respectively)

根据能量平衡原理[8,9]和声速测量结果[3]判定:03-0918 号实验中无氧铜样品初始冲击状态和卸载状态都处于固-液混合相区;04-0302 号实验中无氧铜样品初始冲击状态处于固相区,卸载状态处于固-液混合相区;04-0304 号实验中无氧铜样品初始冲击状态处于固-液混合相区,卸载状态处于液相区且位于液相线附近。因此根据第二节中阐述的方法,可以把所测得的界面温度作为界面压力下无氧铜的熔化温度,该结果(表 4)与声速测量结果[3]、分子动力学计算结果[1]及热力学计算结果[9]较为一致(如图 3 所示)。从图 3 可以看出,实验结果与理论结果与 Lindemann 熔化定律较为一致,即可以认为铜的高压熔化规律基本符合 Lindemann 熔化定律。

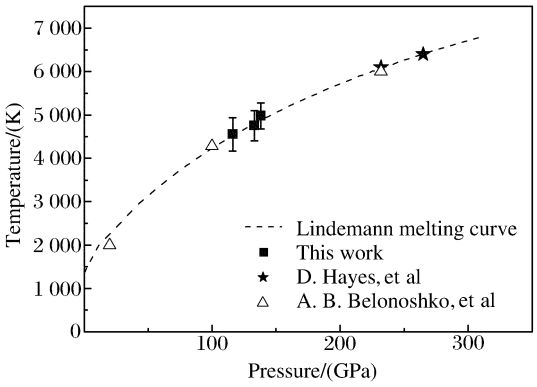


图 3　无氧铜的熔化温度和熔化压力的关系

Fig. 3　Melting temperature of OFHC copper as a function of pressure

表 4　无氧铜熔化温度的测量结果

Table 4　Melting temperature data for OFHC copper

Exp. No.	Projectile velocity /(km/ s)	p_H /(GPa)	p_R /(GPa)	T_I /(K)	ε	T_M /(K)	T_W /(K)
03-0918	5.722	261	133	4 755	0.303	4 755	3 325
04-0302	5.198	225	116	4 552	0.259	4 552	2 751
04-0304	5.876	271	138	4 981	0.686	4 981	3 507

Note: T_W is the shock temperature of LiF window calculated by means of method in Ref. [16].

4　小　结

利用二级轻气炮加载手段和光辐射法测温技术,用氟化锂(LiF)单晶作透明窗口,获得了 110～140 GPa 压力范围内无氧铜的熔化温度。通过本工作,初步得出以下认识:

(1) 利用声速测量结果和能量平衡判据,判定无氧铜样品初始冲击状态或卸载状态处于固-液混合相区或液相线的附近时,可以把辐射法测得的界面温度作为界面压力下的熔化温度,该方法为金属冲击熔化温度测量提供了一种潜在的技术途径。

(2) 无氧铜的高压熔化行为可用 Lindeman 熔化定律近似描述。

References:

[1] Belonoshko A B, Ahuja R, Eriksson O, et al. Quasi *ab Initio* Molecular Dynamic Study of Cu Melting [J]. Phys Rev B, 2000, 61: 3838－3844.

[2] Moriarty J A. High-Pressure Ion-Thermal Properties of Metals from *ab Initio* Interatomic Potentials [A]. Gupta Y M. Shock Waves in Condensed Matter-1985 [C]. New York: Plenum Press, 1986. 101－106.

[3] Hayes D, Hixson R S, McQueen R G. Pressure Elastic Properties, Solid-Liquid Phase Boundary and Liquid Equation of States from Release Wave Measurements in Shock-Loaded Copper [A]. Furnish M D, Chhabildas L C, Hixson R S. Shock Compression of Condensed Matter-1999 [C]. New York: AIP, 2000. 483－486.

[4] Williams Q, Jeanloz R, Bass D J, et al. The Melting Curve of Iron to 250 Gigapascals: Implications for the Thermal State of the Earth [J]. Science, 1987, 236: 181－182.

[5] Yoo C S, Holmes N C, Ross M, et al. Shock Temperatures and Melting of Iron at Earth Core Conditions [J]. Phys Rev Lett, 1993, 70: 3931－3934.

[6] Grover R, Urtiew P A. Thermal Relation in Interfaces Following Shock Compression [J]. J Appl Phys, 1974, 45: 146－152.

[7] Nellis W J, Yoo C S. Issues Concerning Shock Temperature Measurements of Iron and Other Metals [J]. J Geophys Res, 1990, 95(B13): 21749－21752.

[8] Tan H, Ahrens T J. Shock Temperature Measurements for Metals [J]. High Pressure Res, 1990, 2: 159－182.

[9] Dai C D, Tan H, Geng H Y. Model for Assessing the Melting on Hugoniots of Metals: Al, Pb, Cu, Mo, Fe and U [J]. J Appl Phys, 1992, 92: 5019－5026.

[10] Tan H. Shock Temperature Measurement of Metals (I)－The Calibration of Pyrometer and the Determination of Interfacial Radiation Temperature [J]. Chinese Journal of High Pressure Physics, 1994, 8(4): 254－262. (in Chinese)
谭 华. 金属的冲击波温度测量(I)——高温计的标定和界面温度的确定 [J]. 高压物理学报, 1994, 8(4): 254－262.

[11] Boslough M B, Ahrens T J. A Sensitive Time-Resolved Radiation Pyrometer for Shock-Temperature Measurements above 1 500 K [J]. Rev Sci Instrum, 1989, 60(12): 3711－3716.

[12] Mitchell A C, Nellis W J. Shock Compression of Aluminum, Copper, and Tantalum [J]. J Appl Phys, 1980, 52(5): 3363－3374

[13] Touloukian Y S, Kirby R K, Tayor R E, et al. Thermophysical Properties of Matter(12): Thermal Expanansion Metallic Elements and alloy [M]. New York: Plenum Press, 1975.

[14] Carter W J. Equation of State of Some Alkali Halides [J]. High Temp High Pressure, 1973, 5: 313－318.

[15] Tan H, Dai C D. Shock Temperature Measurement of Metals(IV)－"Three Layer Model" and Its Applications [J]. Chinese Journal of High Pressure Physics, 2000, 14(2): 81－90. (in Chinese)
谭 华, 戴诚达. 金属的冲击波温度测量(IV)——"三层介质模型"及其应用 [J]. 高压物理学报, 2000, 14(2): 81－90.

[16] Jing F Q. Experimental Equation of State(2nd ed) [M]. Bejing: Science Press, 1999. (in Chinese)
经福谦. 实验物态方程导引(第2版) [M]. 北京: 科学出版社, 1999.

[17] Hare D E, Holmes N C, Webb D J. Shock-Wave Induced Optical Emission from Sapphire in the Stress Range 12 to 45 GPa: Images and Spectra [J]. Phys Rev B, 2002, 66: 014108－1/11.

[18] Yoo C S, Holmes N C, See E. Shock-Induced Optical Changes in Al_2O_3 at 200 GPa: Implications for Shock Temperature Measurements in Metals [A]. Schmidt S C, Dick R D, Forbes J W, et al. Tasker Shock Compression of Condensed Matter-1991 [C]. New York: Elsevier Science, 1992. 733－736.

Melting Temperatures of OFHC Copper under Shock Compression Measured by Optical Radiometry Techniques

ZHANG Ling-Yun, DAI Cheng-Da, XU Can-Hua, TAN Hua

(*Laboratory for Shock Wave and Detonation Physics Research, Institute of Fluid Physics, CAEP, Mianyang* 621900, *China*)

Abstract: Melting temperatures of OFHC(Oxygen-Free High Conductivity) copper at pressures ranging from 110 GPa to 140 GPa were measured on a two-stage light-gas gun by optical radiometry techniques and using LiF single crystal as window, based on such a conclusion that the melting temperatures at the sample/window interface pressure is equal to the release temperature, and close to the interfacial temperature if the OFHC copper sample is initially shocked or released into the region adjacent to the liquidus. The obtained data are consistent with the experimental results of high-pressure sound velocity measurements and theoretical predictions, and the melting behavior of OFHC copper at high pressure can be approximately described with Lindemann melting law. The method for melting temperature measurements we proposed in this paper avoided derivation of Hugoniot temperature, which simplified the determination of melting temperature, and provided a potential approach for melting temperature measurements of metals.

Key words: optical radiometry technique; interfacial temperature; interfacial pressure; melting temperature