文章编号:1000-5773(2007)04-0444-05

Bridgman 压砧几种内加热方式及其温度测量*

刘秀茹,吕世杰,苏 磊,邵春光,胡 云,黄代绘,洪时明

(西南交通大学高温高压物理所,四川成都 610031)

摘要:设计了 4 种 Bridgman 压砧内加热方式,尝试了钽和石墨作为加热材料,采用双热电偶测温,分别测量了不同加热方式的样品中部和上部温度与输入电压的关系,并粗略地讨论了样品的温度梯度。在 0.1 GPa 压力下,样品温度达到 1 300 ℃以上。另外,在 5.0 GPa 高压下、1 000 ℃范围内测量了样品温度随输入电压变化的曲线。

关键词:Bridgman 对顶压砧;内加热;钽;石墨

中图分类号:O521.3 **文献标识码**:A

1 引 言

平面对顶压砧(Flat Face Supported Anvils)最早由美国物理学家 P. W. Bridgman 开发和使用,后被称为 Bridgman 压砧。这种形式的碳化钨硬质合金压砧与同种材质的活塞圆筒和多压砧等静高压装置相比,容易产生更高的压力,曾在高压物性研究等方面得到过很好的应用[1-3]。目前在高压物理前沿领域广泛使用的金刚石压砧是 Bridgman 压砧的一种极好延伸。金刚石不仅硬度远高于碳化钨硬质合金,可产生高达数百吉帕的压力,而且具有理想的透光性,可以通过激光加热,使样品温度高达 5 000 ℃左右,同时还能进行各种光学和 X 射线的在线检测分析[4-5]。研究者们使用金刚石压砧取得了大量重要的发现和成果。与此相比,近 20 年来,关于硬质合金 Bridgman 压砧的研究报道很少。

尽管碳化钨压砧没有金刚石压砧那样的硬度和光学性能,但它还是有本身的一些优点。如:碳化钨 Bridgman 压砧易于安装在普通实验压机上使用,比金刚石压砧以及多压砧装置价格低廉且操作简单;碳化钨 Bridgman 压砧的样品尺寸可以比金刚石压砧大得多,有利于合成块体材料;另外,碳化钨 Bridgman压砧也可以采用内部电阻加热,与金刚石压砧[6]不同的是,它可以直接使用导电的压砧作为加热电极。因此,我们认为碳化钨 Bridgman 压砧在高压实验研究中仍然具有独特的价值,有必要继续深入研究和开发。最近,我们采用碳化钨 Bridgman 压砧研究了叶蜡石的剪切强度[7],还与快速增压装置结合,测量了物质的格林爱森参数[8]。在这些工作中,碳化钨 Bridgman 压砧的作用都是不可替代的。为了使该装置有更多的使用空间,以便用于高温高压条件下的实验,需要探索在这种压砧上稳定可靠的加热方式。

由于碳化钨硬质合金压砧的热传导率和热容量都较大,较难实现很高温度的稳定加热,过去关于这种压砧加热方法的报道不多。国外曾有报道在这种压砧上采用镍铬合金和钽加热样品[1],最高宣称可达 15 GPa、1 400 ℃。国内尚无这方面报道。

本研究设计了 4 种 Bridgman 压砧内加热方式,尝试了钽和石墨两种材料作为加热器,采用双热电

* **收稿日期**:2006-12-20;**修回日期**:2007-05-16

基金项目:教育部博士点专项基金(20040613019);西南交通大学博士生创新基金

作者简介:刘秀茹 (1981—),女,博士研究生,主要从事新材料的高压合成与性能研究. E-mail:xiuruliu@mars.swjtu.edu.cn

通讯作者:洪时明 (1947—),男,博士,教授,主要从事高压物理及超硬材料研究. E-mail:smhong@home.swjtu.edu.cn

偶测量了样品中不同位置的温度,粗略地讨论了样品的温度梯度。在 5.0 GPa 高压下、1 000 ℃范围内测量了样品温度随输入电压的变化曲线。为进一步开展 Bridgman 压砧上的物性研究和材料合成创造了新的条件。

2　实验装置

加热电路包括调压器、变压器和 Bridgman 压砧(含样品)三部分。采用额定功率为 3 kW、额定电流为 12 A 的调压器在 0～250 V 范围内连续调节输入电压。变压器的额定功率为 3 kW,额定电流为 120 A,空载情况下,输入电压为 220 V 时输出电压为 24 V。由于加热电流很大,采用厚度为 0.8 mm 的铜板作为外部导线。

图 1 为 Bridgman 压砧与样品位置示意图。导电铜板与固定Bridgman压砧的钢底座连接,聚四氟乙烯垫板和套管使它们与压机的其它部分电绝缘(图 1 中的内插小图所示为绝缘套管)。Bridgman 压砧端面直径为 26 mm。封垫为两片叶蜡石环,它们同时也是传压介质。叶蜡石片的厚度是根据实验所需压力下的临界厚度决定的,详细实验方法请参阅文献[7]。样品腔高度为 1.8 mm,直径为 4.4 mm。图中两个镍铬-镍硅 K 型热电偶(最高可测量的温度为 1 370 ℃)分别用来测量样品腔中部和上部的温度。本实验采用了 K 型热电偶数位温度表(精度为 1 ℃,量程为－50～1 300 ℃)直接读出温度值,变压器的输入电压 U 由数字万用表测量。

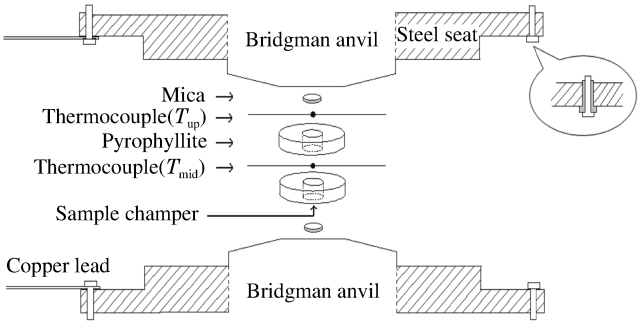


图 1　Bridgman 压砧及样品位置示意图

Fig. 1　Sketch of Bridgman anvil and sample location

本研究设计了四种加热方式,如图 2 所示,实验参数详见表 1。样品为两片六方氮化硼(h-BN),它机械强度低,有良好的电绝缘性和导热性,在惰性气体中熔点为 3 000 ℃。热电偶置于一片 h-BN 样品两侧,用来测量样品腔中部及上部的温度(分别记为T_{mid}和T_{up})。置于铜片(或钽片)和样品之间的云母

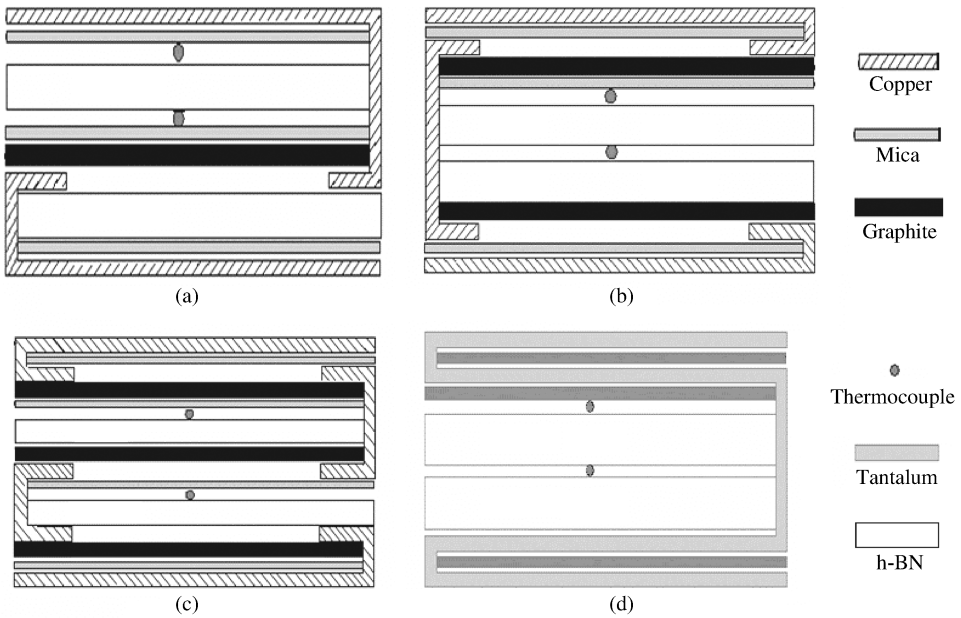


图 2　四种加热方式示意图((a)、(b)、(c)和(d)分别为加热方式 A、B、C 和 D 装置图)

Fig. 2　Sketch of four heating modes((a),(b),(c) and (d) are corresponding to heating mode A,B,C and D,respectively)

片起隔热和绝缘的作用，阻止热量经导电铜片(或钽片)和压砧散失。为了测量样品腔内的温度梯度，还需要测量与石墨片(或钽片)接触处样品的温度，所以需要云母片使它们电绝缘，但是这同时也阻碍了加热片对样品的加热。为了使加热电路接触良好，加热前 Bridgman 压砧预压样品到约 0.1 GPa。

3 数据分析

图 3(a)为加热方式 A 中由实验数据得到的样品温度随变压器输入电压 U 的变化曲线。T_{mid} 在超过 1 300 ℃(即数位温度表的量程)后，急速降到室温。这是由于石墨片的温度到达了样品腔内导电铜片的熔化温度，使铜片被烧坏，造成整个加热电路中断。图中 T_{mid} 在小的温度范围内波动，回收样品检查后发现这可能是因为热电偶与石墨片有接触，加热交流电压的变化引起温度波动。另外，压砧良好的导热性容易将样品的热量散失，所以 T_{up} 始终低于 T_{mid}。比较 T_{mid} 和 T_{up} 可以看到，该加热方式中样品腔中部和上部的温差很大，并且随着温度的升高温差增大，最高超过 200 ℃。

图 3(b)为加热方式 B 中由实验数据得到的样品温度随变压器输入电压 U 的变化曲线。T_{mid} 最高测量到 1 014 ℃，之后开始慢慢下降。这可能是因为铜片在高温下变形，导致导电性能下降，但还未被烧坏，加热电路依然导通。图中 T_{up} 随加热电压的变化在两条线之间波动，而且温度一直较低，未超过 400 ℃。回收样品检查后判断，这是因为预压后热电偶挤破云母，与之上的石墨片有接触，使热电偶温度读数受到输入交流电压的很大影响，而且距离压砧很近，所以温度很低。因此我们认为，本次实验测得的 T_{up} 很可能没有真正反映样品腔上部的温度。但是对比 A 和 B 两种组装方式，认为方式 B 中样品中部和上部的温度差应当比方式 A 中的小。

图 3(c)为加热方式 C 中由实验数据得到的样品温度随变压器输入电压 U 的变化曲线。类似加热方式 A 的实验，高温下铜片也被烧坏，T_{mid} 在超过 1 300 ℃(即数位温度表的量程)后，急速降到室温。同样，由于压砧良好的热传导性能，使 T_{up} 始终低于 T_{mid}。T_{up} 最高只测到 740 ℃，之后该热电偶被压断，

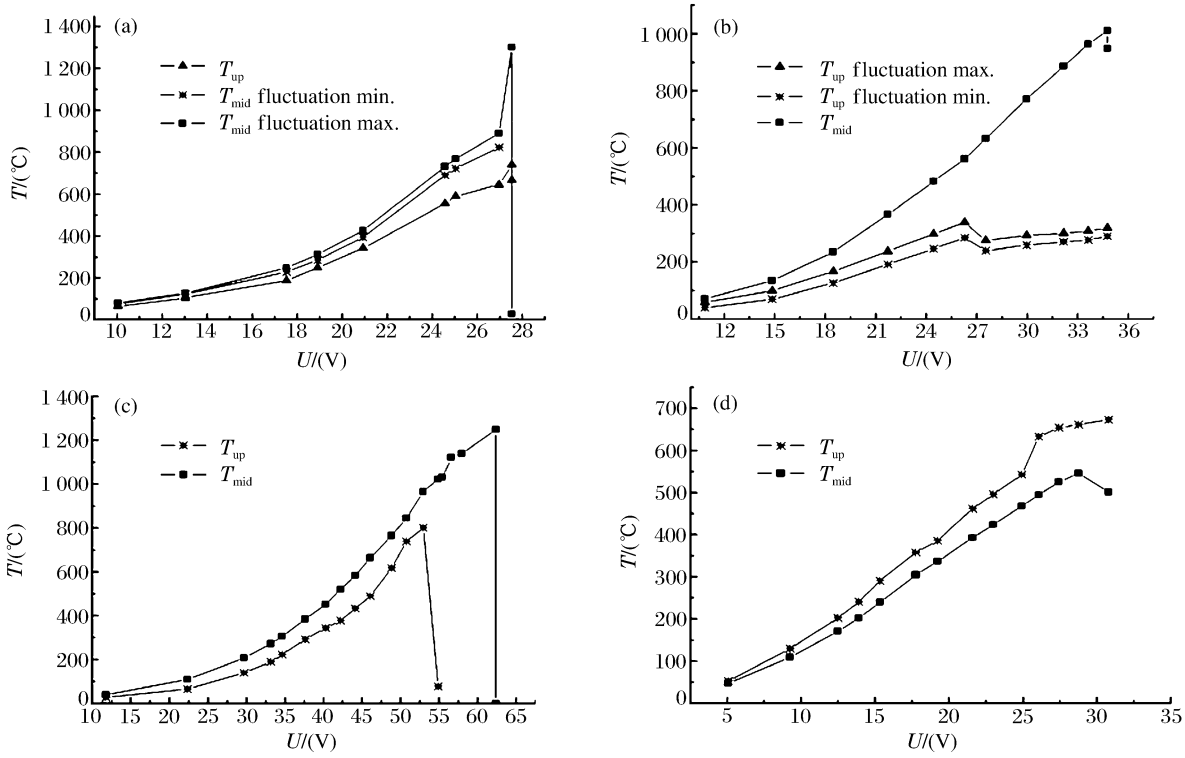


图 3 在 0.1 GPa 下样品腔中部和上部的温度随输入电压的关系曲线

((a)加热方式 A，(b)加热方式 B，(c)加热方式 C，(d)加热方式 D)

Fig. 3 Temperature curve of central and upside section in sample cavity ploted against input voltage at 0.1 GPa

((a) by heating mode A, (b) by heating mode B, (c) by heating mode C, (d) by heating mode D)

温度迅速降至室温。比较 T_{mid} 和 T_{up} 可以看到该加热方式中单片 h-BN 样品两边的温差不大,但是随着温度的升高,温差也逐渐增大。

图 3(d)为加热方式 D 中由实验数据得到的样品温度随变压器输入电压 U 的变化曲线。样品腔中心温度 T_{mid} 最高测到 673 ℃。回收样品后检查发现,高温下拐折处局部发热过高,钽加热片被烧坏,加热电路中断,温度急剧降至室温。已知常压下钽纯金属的熔点高达 2 996 ℃,所以采用钽作加热材料理论上样品可以获得更高的温度。今后可以在增加钽加热片的厚度或改用其他形状(如圆片形状)等方面做出改进,来提高加热效率。从图中可以看出靠近钽加热片一侧样品的温度高于样品中心的温度,随着温度的升高,温差逐渐增大,最高温差约为 130 ℃。

除了以上四组实验以外,我们还尝试了高压下采用方式 B 加热的实验。使用一个热电偶置于样品腔中部测量温度,样品组装参数与表 1 中方式 B 的参数相同。先在 Bridgman 压砧上将样品增压到约 5.0 GPa,该压力值是由铋和钡高压下的相变点标定油压与样品压力关系曲线而推定的。然后再进行加热。图 4 为由实验数据得到样品腔中部温度随变压器输入电压的关系曲线,样品温度最高测到 1042 ℃。比较图 3(b)和图 4 可以发现,相同的加热方式及样品大小,将样品加热到相同的温度,5.0 GPa高压下所需的加热电压大于 0.1 GPa 下的加热电压,这是因为高压下石墨的密度增加电阻减小的缘故。

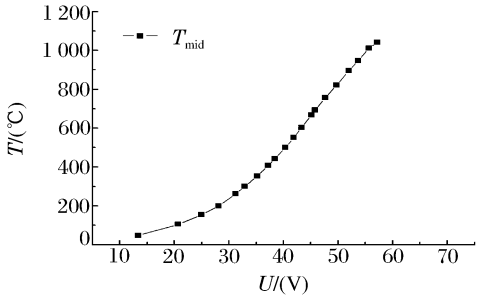


图 4　5.0 GPa 高压下加热方式 B 中样品腔中部的温度随输入电压的关系曲线

Fig. 4　Temperature curve of central section in sample cavity ploted against input voltage by heating mode B under 5.0 GPa

表 1　样品组装参数及所能达到的最高温度

Table 1　Parameters of sample assembly and achieved highest temperature

Heating mode	Parameters of sample assembly	T_{mid} highest temp./(℃)		T_{up} highest temp./(℃)
		After pre-pressed 0.1 GPa	About 5.0 GPa	
A	Graphite: thickness 0.25 mm; Copper: thichness 0.05 mm, width 1.5 mm; h-BN: thichness 0.5 mm, two pieces	>1 300(Beyond range)	—	802
B	Graphite: thickness 0.25 mm; Copper: thichness 0.05 mm, width 1.5 mm; h-BN: thichness 0.6 mm, two pieces	1 014	1 042	319
C	Graphite: thickness 0.25 mm; Copper: thichness 0.05 mm, width 1.5 mm; h-BN: thichness 0.7 mm, two pieces	>1 300(Beyond range)	—	740
D	Tantalum: thickness 0.08 mm, width 2.0 mm, length 21.4 mm; h-BN: thickness 0.7 mm/0.6 mm (each piece)	546	—	673

4　讨　论

比较三种石墨加热方式,样品的温度均可达到 1 000 ℃以上,但是由于导电铜片熔点的限制,所以一般只能在 1 000 ℃以内稳定使用。若改用其它熔点更高的金属做导线,估计还可以达到更高的温度。进一步的加热实验将在以后的工作中进行。相比于其他两种加热方式,方式 C 中样品腔中部和上部温度梯度最小。同样的输入电压 U,方式 C 所能达到的温度最高,其次是方式 B。5.0 GPa 高压下的加热实验,采用加热方式 B 获得了 1 042 ℃的高温,要达到更高的温度需要进一步的实验。

由于方式D实验采用0.02 mm厚的钽箔折叠成多层的条状做加热片，很容易被烧坏，所以钽加热的实验未能达到很高的温度。可以尝试厚度较大的单层钽片，另外还可以采用其它形状(如类似石墨的圆片状)来获得更高的温度。除了加热方式不同以外，不同厚度的加热片和样品的材料、形状和大小均会影响样品中的温度大小及梯度，所以样品的温度应该以实际实验时的测量为准。

在Bridgman压砧的加热实验中，加热片与样品直接接触，并且样品不太大，所以升温速度很快，几秒内就可以达到上千度，而且在恒定的加热功率下，恒温性较好，1 000 ℃范围内温度波动不超过5%。由于碳化钨硬质合金压砧导热性很好，断电后3 s内样品的温度可以由1 000 ℃左右降至室温，所以该装置除了可以进行高温高压实验以外，还可以同时进行快速冷却的实验，为高压下制备材料，尤其是非晶等亚稳材料[9-10]提供了独特的方法。

References:

[1] Ringwood A E, Major A. High Pressure Transformations in Pyroxenes [J]. Earth Planet Sci Lett, 1966(1): 351-357.

[2] Ringwood A E, Major A. Apparatus for Phase Transformation Studies at High Pressures and Temperatures [J]. Phys Earth Planet Interiors, 1968, (1): 164-168.

[3] Wang L, Liu B B, Wang H, et al. Pressure Induced Phase Transition of Nano Zinc Sulfide Shell [J]. Chinese Journal of high Pressure Physics, 2005(19): 357-360. (in Chinese)
王 霖，刘冰冰，王 卉，等. 纳米硫化锌球壳的高压相变研究 [J]. 高压物理学报，2005，19(4)：357-360.

[4] Ming L C, Bassett W A, et al. Laser Heating in the Diamond Anvil Press up to 2 000 ℃ Sustained and 3 000 ℃ Pulsed at Pressure up to 260 Kilobars [J]. Rev Sci Instrum, 1974, 45: 1115-1118.

[5] 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]. Rev Sci Instrum, 2001, 72: 1273-1282.

[6] Zha C S, Bassett W A. Internal Resistive Heating in Diamond Anvil Cell for *in Situ* X-Ray Diffraction and Raman Scattering [J]. Rev Sci Instrum, 2003, 74: 1255-1262

[7] Chen L Y, Liu X R, Wu X H, et al. Investigation of Shear Strength in Several Chinese Pyrophyllites by Using Bridgman Anvils [J]. Jewellery Science and Technology, 2004, 16(4): 6-10. (in Chinese)
陈丽英，刘秀茹，吴学华，等. 用Bridgman压砧研究我国几种叶蜡石的剪切强度 [J]. 珠宝科技，2004，16(4)：6-10.

[8] Hong S M, Chen L Y, Liu X R, et al. High Pressure Jump Apparatus for Measuring Grüneisen Parameter of NaCl and Studying Meta-Stable Amorphous of Poly (Ethylene Terephthatate) [J]. Rev Sci Instrum, 2005, 76: 053905-053910.

[9] He D W, Zhang F X. Quenching with Rapid Decompression—A New Method for Rapid Solidification [J]. Appl Phys Lett, 1997, 71: 3811-3813.

[10] Hong S M, Liu X R. Rapid Compression Induced Solidification of Two Amorphous Phases of Poly (Ethylene Terephthalate) [J]. J Phys D: Appl Phys, 2006, 39: 3684-3688.

Several Internal Heating Modes and Temperature Measurement in Bridgman Anvil

LIU Xiu-Ru, LÜ Shi-Jie, SU Lei, SHAO Chun-Guang, HU Yun,
HUANG Dai-Hui, HONG Shi-Ming

(*Institute of High Pressure and High Temperature, Southwest Jiaotong University, Chengdu* 610031, *China*)

Abstract: Four internal heating modes in Bridgman anvil were designed in this work. Heater was made of tantalum and graphite flakes. Two thermocouples were used to measure the temperature change of the central and upside section in sample cavity with input voltage. Temperature gradients were roughly discussed. Under 0.1 GPa, highest temperature reached in sample cavity was higher than 1 300 ℃. In addition, sample temperature change with input voltage was also measured up to 1 000 ℃ under 5.0 GPa.

Key words: Bridgman anvil; internal heating; tantalum; graphite