DOI: 10.11858/gywlxb.20261120

针对国产六面顶压机的二级增压精密化控制与大体积聚晶金刚石的合成

李贺飞, 于栋利, 陈 帅, 郭晓刚, 舒 予, 王 霖, 高宇飞

(燕山大学亚稳材料全国重点实验室, 高压科学中心, 河北 秦皇岛 066004)

摘要: 传统国产铰链式六面顶压机采用限位开关定位、全开式快速充液和高速率升降压的工作模式, 其六缸定位精度和充液同步性差, 升降压速率无法满足超高压二级增压对偏载控制和力学平稳性的苛刻要求。为此, 对国产 650 mm 缸径六面顶压机开展了系统性改造升级: 设计安装了自锁式销轴, 并对机架的高压形变进行了预补偿, 以抑制或消除超压工况下机架的浮动及变形; 搭建了双泵-多模式液压回路和油缸等体积进油充液流程, 并创造性地提出了三阶段分段进给, 结合独立位移的动作方式, 提高了压机对中精度与充液同步性; 编译了一套全新的闭环控制程序并与压机自身系统并联, 实现了压机动作状态、油压、加热等数据组的实时采集、同步监控和闭环调节; 提出了比例-积分-微分精密 (proportional-integral-derivative, PID) 复合控制结合精密控压模块构件的策略, 实现了超慢速升降压速率控制。标定了合成腔压力-油压和加热温度-功率关系曲线, 并进行了厘米尺寸纳米聚晶金刚石块材的高温高压合成。结果表明, 优化升级后的国产 650 mm 缸径六面顶压机能够实现压力 15 GPa、温度 2 000 ℃ 以上条件下大体积样品的制备, 极大地拓宽了国产六面顶压机的应用领域。

关键词: 六面顶压机; 二级加压; 精密控制; 六缸同步; 超慢速升降压; 大腔体静高压

中图分类号: O521.3; O521.2 **文献标志码:** A

国产六面顶压机的起源可追溯至 20 世纪 60 年代初。在此之前, 金刚石高温高压合成技术由美国、日本等少数发达国家垄断。为打破金刚石合成技术垄断, 中国于 1963 年启动人造金刚石攻关, 由郑州磨料磨具磨削研究所牵头, 济南铸造锻压机械研究所等协同参与, 最终于 1965 年由济南铸造锻压机械研究所研制出首台铰链式六面顶压机。国产六面顶压机采用 6 个硬质合金顶锤, 从相互垂直的 6 个方向同步挤压合成块的结构, 通过油压驱动, 铰链梁承载反力, 开创了完全不同于西方两面顶压机的自主技术路线[1−5]。此后数十年, 国产六面顶压机持续迭代升级。在吨位方面: 早期压机单缸推力仅 6 MN; 到 20 世纪八九十年代逐步发展出 8、10、12 MN 等系列; 进入 21 世纪后, 30、40 MN 级压机得到迅速发展和推广; 目前, 工业主流机型已达 40～60 MN, 最大单缸推力超过 100 MN[1, 6]。在控制方面, 由最初的手动阀操作、电接点压力表限压, 逐步过渡到可编程控制(programmable logic controller, PLC)与触摸屏集中监控, 实现了升压、保压、卸压的自动循环控制和温度、功率的程序设定。同时, 合成腔直径也由最初的 15～20 mm 逐步扩大到 50～60 mm 甚至更大, 单次金刚石产量从几克拉提升至数百克

* **收稿日期:** 2026-06-22; **修回日期:** 2026-07-31

基金项目: 国家自然科学基金(52288102, U23A20542); 河北省高层次人才项目(HY2024050010)

第一作者: 李贺飞(1994—), 男, 博士研究生, 主要从事大腔体静高压技术、超硬材料合成及物性研究. E-mail: lhfysu@163.com

通信作者: 舒 予(1985—), 男, 博士, 副教授, 主要从事大单晶材料的键合连接与合金材料高压改性研究. E-mail: shuyu@ysu.edu.cn

高宇飞(1987—), 男, 博士, 讲师, 主要从事大腔体静高压技术与纳米孪晶结构块材的高压制备研究. E-mail: gyf@ysu.edu.cn

拉，生产效率提高了数十倍。经过数十年发展，全球超硬材料制造体系持续壮大，中国已成长为最大生产国，年产金刚石单晶超 200 亿克拉，占世界总产量的 90% 以上[7]。在 5～6 GPa、1 300～1 500 ℃ 的合成窗口内，通过石墨与触媒合金的片状或粉状工艺，可稳定产出从粗颗粒磨料到高品级立方体单晶的全系列产品，广泛用于石材切割、油气钻探、精密磨削等工业领域。此外，六面顶压机还支撑了金刚石聚晶、复合片等井下工具的工业化合成，使其成本大幅降低，性能不断提升，成为我国超硬材料产业国际竞争优势的装备基石。

与此同时，国产六面顶压机受单级驱动原理与硬质合金顶锤强度极限的双重制约，其稳定可靠的合成窗口长期停留在较低的温压区间，难以在更高压力、温度方面做出实质性拓展，制约了其在极端温压条件下对新型超硬材料的合成研究[8]。目前，国际上报道了多种不同类型的大体积超高温高压装置。美国 Rockland Research 公司生产的 T25 型二级加压装置通过单缸驱动一级加压腔，将压力加载至由 8 个 WC 硬质合金组成的二级增压模块（2-6-8 加载），可实现合成腔压力 30 GPa、温度 2 000 ℃ 以上。德国 Voggenreiter 公司设计制造了三梁四柱式双腔体大体积压机（如 1000 T、2000 T 和 5000 T）及精密六轴传压系统，其中：精密六轴传压系统以超高精度对中的 6 个油缸驱动一级加压顶锤，进而将压力传至 8 个或 6 个 WC 二级增压模块（6-8 或 6-6 加载），因其高精度的同轴加载和高度稳定的液压控制，压机可达到超过 20 GPa、2 000 ℃ 以上的温压条件。日本学者 Kawai 等[9] 设计并制造了多砧分割球式高压装置（Kawai-type press），利用多块楔形硬质合金砧在球形约束中同步推进，能够在较大样品体积内获得 10～25 GPa 的压力[9–11]。在合成腔尺寸方面，上述压机无一例外地远低于国产六面顶压机数十毫米的合成腔直径。以本课题组报道的利用 T25 型二级加压装置合成的纳米孪晶结构立方氮化硼（nt-cBN）[12] 和金刚石（nt-diamond）[13] 为例，样品内部均含有极其细小且高密度的孪晶组织，其中：nt-cBN 的平均孪晶厚度仅约 3.8 nm，维氏硬度高达 108 GPa，达到甚至超过单晶金刚石的硬度（根据晶体取向不同，维氏硬度为 60～120 GPa），断裂韧性高达 12.7 MPa·m$^{1/2}$，起始氧化温度约为 1 294 ℃；nt-diamond 的平均孪晶厚度约为 5 nm，维氏硬度高达 200 GPa，是天然金刚石的 2 倍，断裂韧性为 9.7～14.8 MPa·m$^{1/2}$，起始氧化温度高达 1 056 ℃。然而，2 种样品的最大直径仅约 2 mm，厚度约为 0.5 mm。综上可知，这些设备虽然能够实现更高的合成压力，却不可避免地以损失合成腔尺寸为代价，偏向于极端条件下新材料合成、高压物相分析等基础研究，尚不满足工业应用对大体积块材的制备需求。

近年来，研究者们一直致力于超高压大尺寸合成装置的探索与研发。2008 年，四川大学贺端威教授团队[14–16] 率先提出了基于国产铰链式六面顶压机的二级 6-8 型大腔体静高压装置技术方案。该装置直接利用六面顶压机的三轴加载特性驱动二级增压单元，从力学原理上避免了国外 2-6-8 型装置中两面顶向六面顶转换带来的摩擦损耗，其压力发生效率约为前者的 2.5 倍[15]。通过采用 36/20 组装，该装置在 6×25 MN 六面顶压机上实现了 15 GPa、2 000 ℃ 的温压条件，合成样品直径可达 11 mm[14]。此后，该团队进一步研制出大尺寸聚晶金刚石-硬质合金复合末级压砧，将装置的极限压力提升至 35 GPa 以上[17–19]，显著拓展了国产大腔体静高压技术的压力产生范围。日本爱媛大学 Irifune 等[20–21] 于 2013 年成功研发了大腔体静高压装置 BOTCHAN-6000。该装置是一台拥有 6 000 t（60 MN）加载能力的 Kawai 型 2-6-8 型加载压机，使用该压机合成的纳米聚晶金刚石的直径和高度均可达 10 mm。

国际上先进的超高压设备均采用多级加压模式，在合成腔体的极限温压条件上优于国产六面顶压机，然而，其核心技术几乎全部由美国、德国和日本的少数企业垄断。中国在精密液压、多轴同步控制等核心关键技术和设备上仍未突破[22]。为实现国际先进的大腔体高压装置[14–19, 23–24]，本研究以国产 650 mm 缸径六面顶压机（以下简称 650 压机）为载体，设计并开发全新 6-8 型加载的超高压技术。在国产六面顶压机大腔体结构的基础上，优化重构其定位方式、重复精度、压变速率，同时为消除二级增压对压机油缸偏载控制和力学平稳性产生的不良影响，从减小机架浮动变形、提高对中精度和超慢速调压 3 个方面对压机开展系统性改造；另外，为实时监测和控制压机运行状态及采集原位加热数据，编译一套全新的数据采集控制程序；以此为基础，对样品合成腔的压力与温度进行标定，并以厘米级纳米聚

晶金刚石块材合成为例，检验该装置在二级增压条件下制备大体积、高质量样品的可行性与重复性，从而对整套改造方案进行验证。

1　二级加载精密化调控

650 压机主要面向单级加压大批量生产，其机架型变量、定位方式、调压速率均难以满足二级增压对六向偏载控制和力学平稳性的苛刻要求。二级增压对六面顶压机的空载对中精度、低压同步充液和超高压升降压速率提出了极为苛刻的要求。本研究在不改变原 650 压机主体结构及功能的基础上对压机进行优化升级：首先，增加了“新旧系统并联”的双工控架构，即完整保留原机继电器逻辑控制系统，以承担油缸到位、回程动作及急停保护，并联一套以工业计算机为核心的全新监控采集系统，通过传感器网络与新增执行机构，实现油缸运动学参数及关键节点压力的实时监控与闭环控制；然后，以此为基础，围绕机架变形自补偿、油缸精密对中、充液同步和超慢速升、降压调控 4 个相互衔接、层层递进的环节展开改造，各环节均配置独立的传感—执行—控制链路，在统一的分布式架构下协同工作。

1.1　机架互锁预紧与形变补偿

国产六面顶压机主机由 6 个铰链梁组成，铰链梁之间通常采用高强度直筒式柱销链接。为便于安装，不同型号压机的柱销与铰链梁的配合间隙为 0.1～0.3 mm。此外，在加载过程中，铰链梁的形变量随着加载载荷的增加而不断增大。当油压达到 70 MPa 以上时，其形变量甚至超过 1.5 mm，导致在加载过程中引发二级组装件偏心，致使组装件损坏，无法顺利进行实验。为避免直筒式柱销链接带来的配合间隙，本研究采用了互锁式预应力销轴，消除了销轴与铰链梁的配合间隙。同时，监测了压机全程动作中铰链梁的形变量，通过设定油缸初始位置来补偿加载过程中铰链梁的弹性变形。

1.1.1　互锁销轴的力学特征与预紧

互锁销轴依靠斜面互锁效应实现无源对中保持：当配合锥面的半锥角小于接触材料间的摩擦角时，法向接触力与摩擦力的合力始终处于摩擦锥内部，结构在任意轴向载荷作用下均满足静力平衡条件，不产生相对滑动。图 1 为互锁式销轴结构示意图。将销轴配合面设计为小锥角锥面，就位后依靠锥面楔紧形成刚性几何约束，该约束在偏载、压力波动等扰动下持续有效，以机械方式将铰链梁的初始对中状态锁定于预设位置，从根本上消除了传统直筒式柱销的配合间隙。然而，在压机循环加载环境下，销轴锥面与铰链梁孔壁承受交变拉应力，产生微幅相对运动，进而引发接触面微动磨损，使锥面过盈量衰减，最终导致互锁失效。通过在互锁式销轴内部引入预应力，可以很好地解决这一问题，即将油压逐步升高至 100 MPa，在该极限载荷下铰链梁发生最大弹性扩张，锥面销轴在轴向拉力作用下被进一步拉入锥孔，实现过盈配合的“再楔紧”。卸除压力后，由于销轴特殊的互锁结构，预紧力不会立即松弛，此时对固定螺栓进行紧固。经此预紧处理后，销轴在后续循环加载中可长时间保持稳定锁紧状态，不易发生松动。

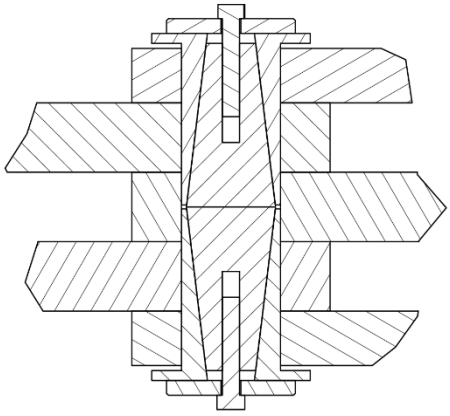


图 1　互锁式销轴结构示意图

Fig. 1　Schematic diagram of the interlocking pin shaft

1.1.2　机架弹性形变补偿

自锁式销轴解决了铰链梁连接节点处的配合间隙与松动问题，但机架在超高压载荷下仍会发生整体弹性变形，导致油缸轴向产生偏移，进而影响油缸对中性。为此，在销轴预紧的基础上，进一步对机架弹性形变进行了定量监测与补偿。在压机除油缸底部关键刚度节点位置布设了高精度位移传感器，施加互锁销轴预紧力的同时同步监测机架形变量。实测数据表明，当系统油压升至 70 MPa 时，各缸因

机架弹性伸长产生的轴向位移存在明显差异，不通过铰链梁的变形量约为 0.91～1.78 mm。据此，本研究采用油缸位移预补偿策略，即在压机空载对中阶段，预先调整各油缸的目标位置，消除因铰链梁形变导致加载过程的对中偏差，保证油缸在目标工作压力下准确交汇于腔体几何中心。自锁式销轴以结构层面的锥面楔紧与预应力消除连接节点间隙，实现铰链梁对中状态的无源保持；机架形变预补偿从运动控制层面抵消了本体弹性位移，保证高压段油缸轴线动态对中。二者分别从连接节点与本体结构两个层面抑制机架变形，构成双层级机架对中保障体系。

经上述优化和调控，从压机承载结构层面为油缸精确对中提供了稳定、可靠的机械基础。机架销轴节点的无隙锁紧与本体弹性位移的预先补偿使 6 个油缸的轴线在超高压段始终保持在可控的几何公差内，为后续油缸精密到位、低压同步充液及超慢速升降压等运动控制环节提供了确定的运动基准。

1.2　油缸精密对中与低压充液同步控制

650 压机原机采用限位开关定位，油缸到位误差约为 0.2 mm；全开式快充液模式下，6 个油缸的位移差异约为 1 mm。上述偏差随油压升高而逐渐放大，导致进入超高压段后二级 WC 压砧严重偏载，引起压力场畸变，进而引发压砧碎裂。针对该问题，本研究对“油缸到位”与“充液同步”2 个环节分别实施闭环改造，目标是确保在实验合成前，油缸空载定位精度控制在±0.05 mm 以内，且低压充液过程中始终保持 6 个油缸的初始压力均衡。

1.2.1　油缸精密到位控制

(1) 油缸位移精确测量

替代原机限位开关低精度定位模式，于 6 个油缸端部与铰链梁之间分别安装一支高精度拉线式位移传感器（深圳市米朗科技有限公司，量程 0～10 mm，位移精度 5 μm），传感器拉线末端固定于油缸上的精密测量点。位移信号经差分放大后同步接入高速数据采集卡，位移与压力信号的刷新频率一致，保证了位移测量与压力变化良好的对应性。

(2) 压机空载同步对中

为简化压机动作控制的复杂性，将下、后、左 3 个油缸设定为定缸，前、右、上 3 个油缸设定为动缸。2 组油缸在空间上相互正交分布，保证任意时刻至少有 3 个非共面油缸的位置被直接锁定，为其余油缸的逼近提供空间基准，避免多缸同时运动时的坐标耦合。

每个油缸的整个定位行程按照油缸不同进给速度分为 3 个受控阶段：空程快速进给阶段 S1，大泵全流量供油，定、动缸分别快速移动，油缸进给速度约为 3 mm/s，显著提高了压机的工作效率；进给至距离目标位置 4.00 mm 时，自动切换至减速逼近阶段 S2，使用小泵供油，油缸进给速度约为 0.2 mm/s；进给至距离目标位置 0.5 mm 时，自动切换至超慢速逼近阶段 S3，保持小泵供油，并采用带虚拟阻尼的比例-积分-微分（proportional-integral-derivative，PID）精密控制，油缸的平滑逼近速度约为 0.01 mm/s。系统同步记录该时刻的位移，并以此为基准。实验结果表明，各油缸的稳态定位偏差控制在±0.05 mm 以内，油缸接触时序一致，避免了合成块偏心预压。

1.2.2　低压充液同步控制

(1) 管路预补偿与背压预平衡

在低压充液前的调试阶段，通过调节油缸背压阀调控各油缸背压，补偿管路及密封件流阻差异引起的油压偏差。此时，充液主阀关闭，依据油缸压力变送器读数将 6 个油缸的零压流量特性调至一致，保证后续同步充液时各路初始条件的一致性。

(2) 同步缸注油量均分与比例阀辅助调节

图 2 给出了改造后压机的油路、比例阀和同步缸控压模块的结构示意图。充液压力通常设定为 2～4 MPa，充液开始后，小泵供给的液压油经比例节流阀模块控制流量。该比例阀（图 2(b)）采用比例电磁铁驱动阀芯结构，根据输入的电信号连续调节节流口的开度，从而实现对流量的无级、精确控制；比例阀内部通常由比例电磁铁、阀芯、阀体等组成，响应快，且线性度好。随后进入串联在供油管路的

等容积同步缸，如图 2(c) 所示。同步缸是一种纯机械式容积均分元件，其核心结构由多个直径相同、行程一致的柱塞或活塞腔体串联在同一根刚性轴上构成。由同步缸将小泵供油均分为 6 路等体积油量，分别注入 6 个油缸，保障 6 个油缸等量供油，进而实现各油缸等值进给。油缸活塞密封件在使用过程中会发生磨损老化，同时环境温度也会影响液压油的流动阻力，这些因素均会影响油缸的零压流量特性。为此，持续原位监测每个油缸的位移量，一旦偏差超出预警值（0.05 mm），系统将自动反馈并停机报警，此时，需要调整油缸背压来保证 6 个油缸进给的同步性。值得一提的是，同步缸为机械式元件，非电气控制，因此，其稳定性及重复性极高。

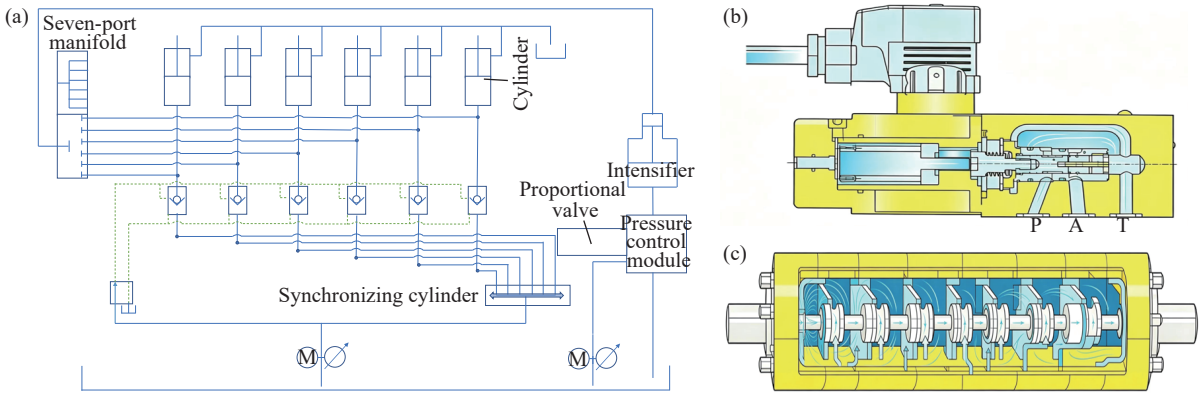


图 2　油路示意图：(a) 液压油路，(b) 同步缸，(c) 比例阀

Fig. 2　Schematic diagram of the oil circuit: (a) hydraulic oil circuit; (b) synchronizing cylinder; (c) proportional valve

经背压阀调控背压，以及节流阀和同步缸模块控制注油量，油缸低压充液到位的位移精度可达 0.05 mm，远低于压机本征的到位偏差（1 mm）。同时，充液阶段油缸的压力差值始终控制在 0.1 MPa 以内。各油缸充液结束后的位移与油压相同，为后续超高压阶段提供了均一的压力起点。

1.3　超高压的精密控制

充液阶段结束后，同步缸退出工作，6 个油缸通过七通保持全程联通，建立了约 3 MPa 的油压且各油缸压力均衡，进入超高压阶段。超高压加/卸载过程的升降压速率通过比例阀模块进行精密控制。升压过程中，系统根据设定的升压速率自适应调节比例阀开度，液压油经比例阀模块控制通过增压器进入七通，均匀分配至各油缸。升压路径为：油箱→低压小泵→控制泵→超高压比例节流阀→增压器→七通→油缸。

降压阶段，比例阀反向控制卸压流量，油液经七通从油缸均匀回流至油箱。控制策略采用前馈叠加 PID 的复合控制方式：前馈给出比例阀开度基准值，使系统快速匹配目标流量；将油缸压力的平均值作为反馈进行 PID 微调，补偿油液可压缩性变化等不确定因素，保证升压速率精度。在同步保护方面，当检测到某油缸压力与平均值的偏差超限时，系统暂降升压动作，利用七通联通的自然均压趋势使偏差自行收敛，恢复后回归目标速率，实现升降压速率连续可控。最终，实现了压机升/降压速率在 0～0.50 MPa/s 范围内连续可调，达到了超高压合成所需的升/降压速率要求。

1.4　数据采集监控程序编译

将控制软件部署于新增的工业计算机，与原继电器逻辑系统保持物理隔离，仅通过高速电信号交互启停及急停状态。新测控与控制系统在硬件层面划分为位移采集模块、压力采集模块和控制模块 3 个功能单元，各模块经高速同步总线互联，独立执行专项任务，在控制模块统一调度下协同工作。程序架构采用“上位协调+下位闭环”的分布式策略：上位机负责全局状态机调度、模式切换及同步决策；下位由各模块内的嵌入式处理器分别执行相应物理量的实时闭环，控制周期统一为 0.1 s，模块间经高速同步总线交换数据。

图 3 给出了全新编译的 650 压机的数据采集及监测控制程序。该程序包含 4 个主状态：充液同步、升压、保压、卸压，各状态拥有独立的闭环控制与保护阈值。油缸精密到位控制作为充液同步的前置条件独立运行，完成油缸接触并标定基准零面后，系统自动进入充液准备就绪状态。状态迁移由位移与压力特征值联合判定：油缸基准零面锁定且充液就位后进入充液同步，当油缸压力均值达到目标油压设定值后切入升压，保压升温结束后，手动转入卸压。切换过程中，控制量输出采用无扰过渡算法，即新状态控制律初始化时继承前一状态的有效输出值，从而避免比例阀开度阶跃造成的液压冲击。为保障获得数据的精度和相应时效，为该程序搭配了由泰克科技（中国）有限公司生产的 6 位半分辨率 DAQ6510 数据采集和记录万用表系统，该系统可对 50 Hz 的电源线进行短至 5×10^{-4} 个电源线周期或 8.3 μs 的测量。

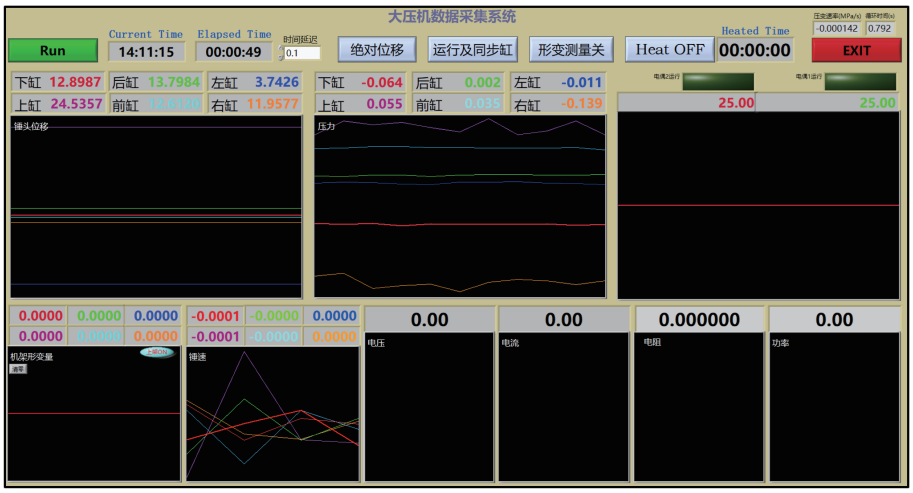


图 3　650 压机的数据采集监控程序

Fig. 3　Data acquisition and monitoring program for the 650 mm cubic press

1.4.1　位移闭环分配

在油缸精密到位控制中，每支拉杆式位移传感器对应一个独立的位置闭环，在位移采集模块内完成插值滤波与 PID 运算，控制量经总线发送至比例阀驱动单元。定缸组与动缸组的角色划分、减速窗口触发及基准零面标定由上位机统一管理，位移闭环在模块内自主执行。六锤油缸均完成接触且基准零面锁定后，测量通道保持连续采样，全程监测各锤的实时位置偏差，作为充液同步及后续升压阶段的对中状态判定依据。

1.4.2　压力闭环与充液/升降压速率调节

充液同步、升压、保压、卸压状态下，压力闭环均在控制模块内集中执行。压力采集模块的采集以 0.1 s 为周期同步读取各油缸压力值，经数字滤波后推送至控制模块。控制模块以油缸压力均值作为反馈，与上位机下发的目标油压及速率设定值比对，采用前馈叠加 PID 的复合控制方式解算比例阀开度指令。其中，充液与升压阶段分别以各自的目标速率为前馈基准，卸压阶段按设定卸压速率闭环调节泄压阀开度，PID 根据六缸油压均值与目标油压的实时偏差动态补偿。

1.4.3　安全保护与双回路保护

原继电器系统构成常备独立安全回路，其急停输出与新增系统的急停输出串联控制急停接触器。新增系统软件设置独立的看门狗定时器，若出现任务超时、周期抖动超标或内部异常自检信号，系统自动将输出使能引脚置为截止态，控制权无间断交还继电器回路，主机全部功能均不受影响。

1.5　小　结

针对 650 压机二级增压精密化控制的核心需求，从机架预紧和形变补偿、油缸精密对中与充液同步、超慢速升降压调控以及测控程序编译 4 个层面完成了系统设计与优化：在压机结构层面，通过互锁

式预紧销轴消除铰链梁连接间隙和机架形变监测与位移补偿策略，有效防止了循环加载中的互锁失效和机架形变带来的影响，为后续精密控制提供了稳定的机械基准；在压机动作控制层面，提出三阶段分段进给方式，并结合独立位移闭环的构建，将 6 缸对中偏差控制在±0.05 mm 以内，同时配合同步缸等量分油与背压预补偿，在充液同步阶段各锤位置跟随误差不大于±0.1 mm，6 个油缸压力的同步偏差小于 0.1 MPa，有效保障了高压腔的高度几何对中性与压力起点的一致性；在超高压控制层面，设计了前馈叠加 PID 复合控制结合精密控压模块构件的策略，将升、降压速率控制在 0～0.50 MPa/s 范围内连续可调；在测控程序层面，编译了基于“上位协调+下位闭环”分布式架构的全新控制程序，实现了充液、升压、保压、卸压 4 个状态的闭环调度与无扰切换。上述 4 项改造协同工作，成功实现了六面顶压机对中精度及升/降压速率的精确控制，为高质量合成工艺提供了可靠的设备基础和技术保障。

2　厘米级纳米聚晶金刚石的高温高压合成

优化升级后，二级 6-8 型 650 压机的超高压形成腔由两部分组成：一级压腔和二级增压模块。一级压腔是由 6 个 WC 顶锤组成的正六面体空腔，二级增压模块由 8 个截角 WC 压砧及氧化镁八面体组件构成。二级增压模块的装配方式通常以“*a*/*b*”形式表示，其中 *a* 和 *b* 分别表示氧化镁八面体和 WC 压砧截角的边长，是二级增压模块的核心参数，也是影响合成腔尺寸及合成压力的决定性因素。本研究中，压力、温度标定及纳米聚晶金刚石块材合成实验均选用 35/20 组装，即氧化镁八面体边长为 35 mm，WC 压砧的截角边长为 20 mm。

2.1　压力标定与温度-功率拟合

2.1.1　650 压机的压力标定

Bi、Sn、ZnTe、ZnS、GaP 等金属和半导体材料在特定压力下会发生相变，并伴随电阻突变，这一特性使其非常适合用于高压实验的压力标定，目前已被广泛应用[18, 25–27]。本研究选择 Bi、ZnTe 和 ZnS 作为标压物质，采用导数法结合切线法对相变点进行判定，使用氧化镁八面体作为传压介质，装配示意结构如图 4(a) 插图所示。采用四线测电阻法，即采用 4 根导线，其中 2 根用于向待测电阻提供恒定电流，另外 2 根用于测量电阻两端的电压。由于电压测量回路的输入阻抗极高，流过电压线的电流非常小，因此，电压线上的导线电阻和接触电阻几乎不会影响测量结果。相较于传统的两线法，该方法避免了测量回路中导线电阻和接触电阻对低阻值电阻的影响。在压力标定实验中，设置充液油压为 3 MPa，目标油压为 80 MPa，升、降压速率为 0.001 MPa/s，数据采集循环周期为 0.1 s。

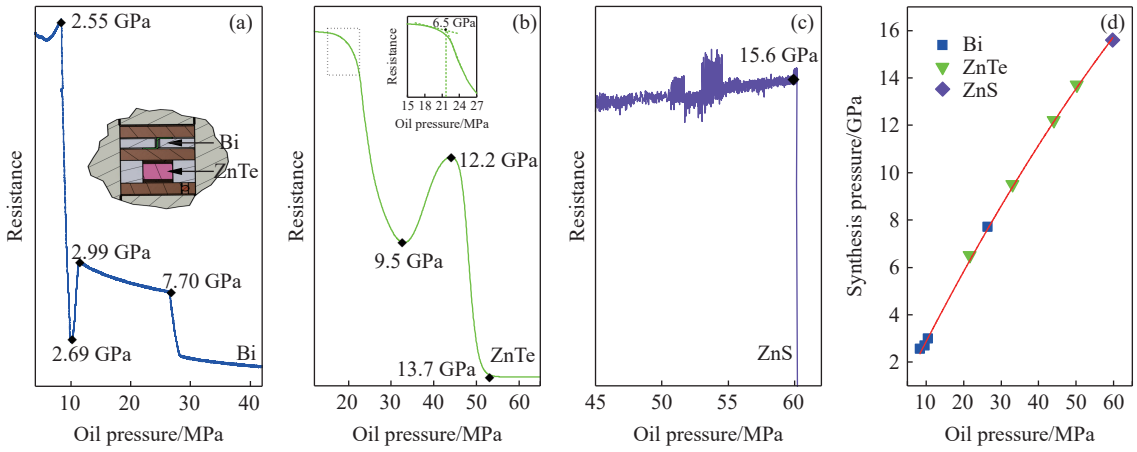


图 4　合成压力与油压的关系：(a) 金属 Bi，(b) ZnTe，(c) ZnS，(d) 合成压力-油压曲线
（插图为标压组件局部示意图和局部标压曲线）

Fig. 4　Relationship between synthesis pressure and oil pressure: (a) Bi; (b) ZnTe; (c) ZnS; (d) synthesis pressure-oil pressure curve
(Inset: local schematic of the pressure calibration assembly and partial pressure calibration curve.)

金属 Bi 的电阻随油压的变化曲线见图 4(a), 其电阻在油压为 8.37、9.68、10.45 和 26.40 MPa 时发生突变, 依次对应金属 Bi 在压力 2.55、2.69、2.99 和 7.70 GPa 时的相变点。ZnTe 的电阻与油压的关系曲线如图 4(b) 所示, 可以看出, 在油压为 21.7、33.0、44.1 和 50.2 MPa 时 ZnTe 的阻值发生突变, 分别对应 ZnTe 的相变压力点 6.5、9.5、12.2 和 13.7 GPa。图 4(c) 给出了 ZnS 的电阻随油压变化的关系曲线, 在油压达到 59.9 MPa 时, 观测到标压物质在 15.6 GPa 处的相变点。综上, 结合标压物质的压力相变特征点, 可以得到合成腔体中心压力与系统油压的关系曲线, 如图 4(d) 所示。

对比基于 BOTHAN-6000 两面顶压机的 2-6-8 型增压装置所采用的 34/20 组装[20], 在相同的腔体压力下, 其所需加载吨位约为本研究的国产 650 六面顶压机 6-8 型增压装置的 2.03 倍。因此, 就加载吨位而言, 基于改造后的六面顶 6-8 型加载装置的压强发生效率约为两面顶 2-6-8 型增压装置的 2 倍。该结果略低于王海阔等[28] 基于 14/8 组装六面顶压机得出的 2.5 倍, 这是组装件尺寸、设备差异等导致的。

2.1.2　温度-功率关系曲线

为了准确获得合成腔的中心温度, 进行了原位温度标定实验。图 5 插图给出了温度标定实验用氧化镁八面体装配示意图。合成腔的直径为 15 mm, 高度为 20 mm, 热电偶位于合成腔中心位置。选用厚度为 0.1 mm 的金属铼片(Re)作为加热体, Re 的熔点极高(3 186 ℃), 且在高压下具备良好的稳定性。采用 C 型钨-铼(W-Re 5%/26%)热电偶对温度进行原位测量, 这种热电偶的测温区间为 0～2 300 ℃。本实验中, 设定充液压力为 3 MPa, 目标压力为 65 MPa, 对应的合成腔压力为 16 GPa, 保压时间为 3 h, 升、降压速率与压力标定速率相同。当油压到达目标压力 30 min 后, 以 50 ℃ 的步长进行阶段升温, 每阶段保温 3 min 以保证温度充分稳定, 然后记录相应的加热电压、电流、功率、温度等数据。图 5 给出了合成腔中心温度-功率拟合曲线, 拟合公式为 $P=A+B_1T_c+B_2T_c^2+B_3T_c^3$, 其中, P 为加热功率, T_c 为合成腔中心温度, A=−23.476±1.367, B_1=0.426±0.004, B_2=(6.264±0.004)×10^{-4}, B_3=(−1.742±0.011)×10^{-7}, 相关系数 R^2=0.999。

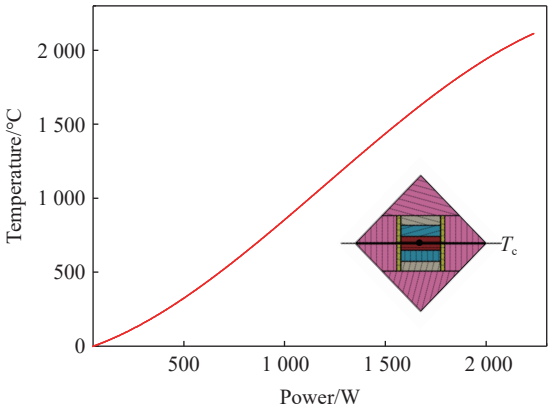


图 5　合成腔中心温度-加热功率关系曲线
(插图为组装示意图)

Fig. 5　Temperature at the center of the synthesis chamber as a function of heating power (Inset illustrates the assembly geometry.)

2.2　厘米级纳米聚晶金刚石块材的合成与表征

2022 年, 四川大学 Zhang 等[29] 以高纯金刚石微粉为初始原料(纯度 99.99%, 粒度 0.8～1.3 μm), 经热压烧结制备出前驱体, 使用 DS6×8 MN 型加压装置, 在 10～16 GPa、1 400～2 400 ℃ 条件下合成了聚晶金刚石块材, 其维氏硬度(H_v)为 62～113 GPa; 在 16 GPa、2 000 ℃ 以上的合成条件下, 合成块材的直径约 3 mm, 厚度为 0.5 mm, 维氏硬度达到 110 GPa 以上。为了验证优化升级后 650 压机设备运行的稳定性和标温、标压实验结果的可靠性, 使用 650 压机进行了大体积纳米聚晶金刚石块材的合成实验。

2.2.1　纳米聚晶金刚石块材的高温高压合成

本实验所用原料为粒径小于 10 nm 的金刚石粉末, 在真空环境中经 800 ℃ 热压烧结制备出直径为 14 mm、高度约 5 mm 的柱状前驱体坯体, 然后, 将前驱体坯体置于氧化镁八面体合成腔内进行高温高压合成。合成腔尺寸(⌀15 mm×20 mm)及目标压力(16 GPa)与温度标定实验相同, 升、降压速率与压力标定实验相同。合成实验也采用了与温度标定实验相同的八面体装配方式(无热电偶), 以保证合成温度与温度标定实验结果的一致性。实验功率为 1 940 W, 对应的合成温度为 2 000 ℃。

2.2.2　纳米聚晶金刚石块材的表征

合成样品为黑色致密块体, 端面平整无明显裂纹, 直径约为 12.5 mm, 高度约为 3.5 mm, 如图 6 插图

所示。使用 SmartLab X 射线衍射仪(Cu 靶)对合成样品进行物相分析，采用 Helios 5 CX 聚焦离子束/电子束双束系统制备出透射电镜(transmission electron microscope, TEM)薄片试样，随后利用 JEOL JEM-ARM300F2 型 TEM 进行微观结构表征。图 6 给出了热压烧结得到的前驱体及高温高压制备样品的 XRD 谱。从图 6 可以看出，金刚石粉末经热压烧结后出现了部分石墨化。合成样品的 XRD 谱显示，在 43.97°、75.38°和 91.42°处出现了 3 个尖锐的衍射峰，分别对应立方结构(3C)金刚石(空间群 $Fd3m$)的 (111)、(220) 和 (311) 晶面特征峰。同时，样品中还残存极少量未完全转化的石墨相(图 6 中黑色三角标记)，其含量相较于前驱体明显减少。这表明在 2000 ℃、16 GPa 的高温高压条件下，合成样品几乎全部由 3C 金刚石组成。此外，合成样品 XRD 特征峰的半高宽较前驱体略窄，这是由高温高压合成过程中金刚石颗粒长大引起的。

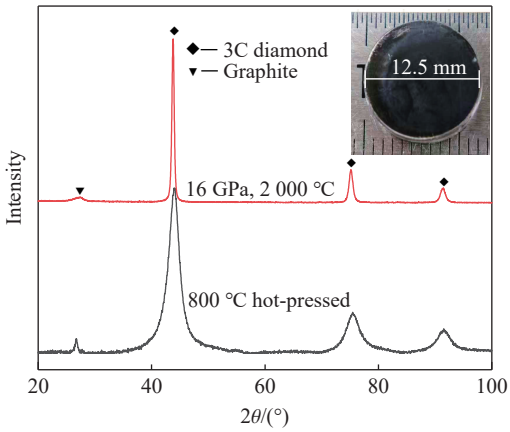


图 6　前驱体与纳米聚晶金刚石样品的 XRD 谱

Fig. 6　XRD patterns of the precursor and nano-polycrystalline diamond

图 7 给出了 16 GPa、2 000 ℃ 合成样品典型的 TEM 形貌及选区电子衍射(selected area electron diffraction, SAED)图样。可以看出，样品致密无孔隙，晶粒尺寸为 50～300 nm，集中分布在 60～120 nm 之间。电子衍射图样中 3 个红色圆环标记的衍射环对应的晶面间距(d)分别为 1.984 、1.282 和 1.030 Å，依次对应 3C 金刚石的{111}、{110}和{100}晶面族；金刚石的{111}衍射环内包含一个很弱的衍射环(绿色圆环标记)，对应的 d 为 3.323 Å，是石墨的{002}晶面族。因此，样品中主要是 3C 金刚石，该结果与 XRD 分析结果一致。

最后，对样品表面进行抛光处理，并分别对样品中心和边缘区域进行维氏硬度测试，结果如图 8 所示。对比样品中心与边缘的维氏硬度可知，不同区域的硬度相当，无明显差异。样品的维氏硬度为 (74.2±2.2) GPa，与文献 [29–34] 报道的结果接近。

综上，结合 XRD 物相分析、TEM 微观结构表征及力学性能测试结果可以得出，合成样品的成分、微观结构和维氏硬度与先前文献报道的相应结果高度吻合。这标志着经优化升级后的 650 压机完全满足合成大体积样品所需的极端温压条件，极大地拓展了国产六面顶压机的应用空间，为后续新型大体积特种材料的超高压高温合成提供了设备基础和良好的技术保障。

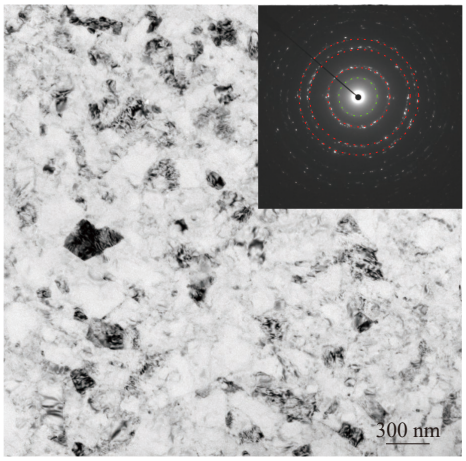


图 7　纳米聚晶金刚石的 TEM 形貌及 SEAD 图像(插图)

Fig. 7　TEM and SEAD images (insert) of the nano-polycrystalline diamond

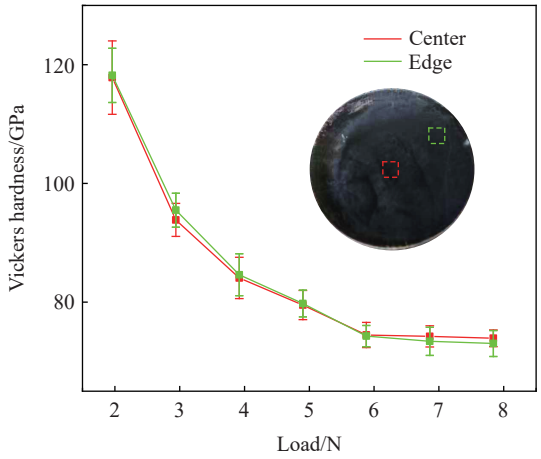


图 8　样品中心与边缘的维氏硬度-载荷曲线

Fig. 8　Vickers hardness-load curves at the center and edge of the sample

3 结　论

立足于国产 650 mm 缸径六面顶压机，从机架预紧与形变补偿、油缸运动控制与油压调控、测控程序编译 3 个层面实施了优化改造，并通过合成条件标定与高温高压合成实验对改造效果进行了验证。

(1) 针对机架在超高压下的形变与销轴配合间隙问题，采用互锁式销轴结构结合预紧力的改进方案，消除了铰链梁连接节点的配合间隙与循环加载松动风险。同时，通过高精度拉杆式位移传感器监测机架形变，并实施油缸位移预补偿，使 6 个油缸在目标压力下保持准确的几何对中。这 2 项措施从压机装配与位移补偿 2 个层面减少了机架变形对油缸对中性的影响。

(2) 提出了空载同步对中的三阶段进给策略，将油缸到位精度控制在±0.05 mm 以内；在充液阶段，采用同步缸等量分油与背压预补偿相结合的方式，6 缸位移同步偏差小于±0.1 mm，压力同步偏差小于 0.1 MPa，确保了二级组装件初始受力均匀性；在超高压阶段，通过比例阀模块与“前反馈+PID”复合控制策略，实现了升/降压速率在 0～0.50 MPa/s 范围内连续可调，满足超高压合成对慢速平稳升降压的要求。

(3) 编译了基于“上位协调+下位闭环”分布式架构的全新测控程序，实现了充液、升压、保压、卸压 4 个状态的闭环调度与切换，同时具备 6 缸位移与多节点油压的实时监控、加热数据的原位采集、同步保护及双回路安全互锁功能，为压机动作控制和原位数据采集提供了统一的软件平台。

(4) 对改造后的压机进行了压力和温度标定，获得了 35/20 组装结构合成中心的压力与温度标定曲线，压力、温度分别达到了 15.6 GPa 和 2 100 ℃，为后续合成实验提供了实验基础。

(5) 以纳米金刚石粉末为前驱体，在 16 GPa、2 000 ℃ 的条件下成功合成出直径为 12.5 mm、高度为 3.6 mm 的高密度纳米聚晶金刚石块体。合成样品的 XRD、TEM 表征和硬度测试结果表明，合成产物的主相为立方金刚石，并伴有少量石墨，微观组织致密均匀，维氏硬度为 (74.2±2.2) GPa。样品尺寸和物相及力学性能均与文献报道的国内外小型超高压装置上合成的纳米金刚石一致，进一步证实了该改造系统在二级增压条件下实现大尺寸高质量样品合成的可靠性与可重复性。

参考文献：

[1] 崔祥仁, 方啸虎, 邢英. 中国超硬材料高压设备的过去、现在与未来中国超硬材料行业的发展道路之一 [J]. 超硬材料工程, 2021, 33(2): 39–42.
CUI X R, FANG X H, XING Y. The past, present and future of the superhard material high voltage equipment in China: one of the development paths of China superhard materials industry [J]. Superhard Material Engineering, 2021, 33(2): 39–42.

[2] HALL H T. Ultra-high-pressure, high-temperature apparatus: the “Belt” [J]. Review of Scientific Instruments, 1960, 31(2): 125–131.

[3] 徐祖全, 李侃平, 孙璇, 等. 国产六面顶压机的精密化发展 [J]. 超硬材料工程, 2011, 23(4): 43–46.
XU Z Q, LI K P, SUN X, et al. Precision development of domestic cubic hinge apparatus [J]. Superhard Material Engineering, 2011, 23(4): 43–46.

[4] BRIDGMAN P W. Recent work in the field of high pressures [J]. Reviews of Modern Physics, 1946, 18(1): 1–93.

[5] ZHANG B, GUO W L. Cracking diamond anvil cells by compressed nanographite sheets near the contact edge [J]. Applied Physics Letters, 2005, 87(5): 051907.

[6] 方啸虎, 温简杰. 我国六面顶压机大型化的优势及压机继续大型化的难点和对策 [J]. 超硬材料工程, 2012, 24(1): 31–35.
FANG X H, WEN J J. Advantages of large scale cubic press and the challenges and solutions to its continuous dimension enlargement in China [J]. Superhard Material Engineering, 2012, 24(1): 31–35.

[7] HALL H T. Sintered diamond: a synthetic carbonado [J]. Science, 1970, 169(3948): 868–869.

[8] 李志宏, 刘金昌, 宜云雷, 等. 我国人造金刚石工业现状及发展 [J]. 金刚石与磨料磨具工程, 2002(1): 49–53.
LI Z H, LIU J C, YI Y L, et al. Present status and progress of China’s diamond industry [J]. Diamond & Abrasives Engineering, 2002(1): 49–53.

[9] KAWAI N, ENDO S. The generation of ultrahigh hydrostatic pressures by a split sphere apparatus [J]. Review of Scientific Instruments, 1970, 41(8): 1178–1181.

[10] LIEBERMANN R C. Multi-anvil, high pressure apparatus: a half-century of development and progress [J]. High Pressure Research, 2011, 31(4): 493–532.

[11] WALKER D, CARPENTER M A, HITCH C M. Some simplifications to multianvil devices for high pressure experiments [J]. American Mineralogist, 1990, 75(9/10): 1020–1028.

[12] HUANG Q, YU D L, Xu B, et al. Nanotwinned diamond with unprecedented hardness and stability [J]. Nature, 2014, 510(7504): 250–253.

[13] TIAN Y J, XU B, YU D L, et al. Ultrahard nanotwinned cubic boron nitride [J]. Nature, 2013, 493(7432): 385–388.

[14] 王福龙, 贺端威, 房雷鸣, 等. 基于铰链式六面顶压机的二级 6-8 型大腔体静高压装置 [J]. 物理学报, 2008, 57(9): 5429–5434.
WANG F L, HE D W, FANG L M, et al. Design and assembly of split-sphere high pressure apparatus based on the hinge-type cubic-anvil press [J]. Acta Physica Sinica, 2008, 57(9): 5429–5434.

[15] 王文丹, 贺端威, 王海阔, 等. 二级 6-8 型大腔体装置的高压发生效率机理研究 [J]. 物理学报, 2010, 59(5): 3107–3115.
WANG W D, HE D W, WANG H K, et al. Reaserch on pressure generation efficiency of 6-8 type multianvil high pressure apparatus [J]. Acta Physica Sinica, 2010, 59(5): 3107–3115.

[16] 何飞, 贺端威, 马迎功, 等. 二级 6-8 型静高压装置厘米级腔体的设计原理与实验研究 [J]. 高压物理学报, 2015, 29(3): 161−168.
HE F, HE D W, MA Y G, et al. Design principles and experimental study of centimeter-scale sample chamber for two-stage 6-8 type static high pressure apparatus [J]. Chinese Journal of High Pressure Physics, 2015, 29(5): 347−353.

[17] 王海阔, 贺端威, 许超, 等. 复合型多晶金刚石末级压砧的制备并标定六面顶压机 6-8 型压腔压力至 35 GPa [J]. 物理学报, 2013, 62(18): 180703.
WANG H K, HE D W, XU C, et al. Calibration of pressure to 35 GPa for the cubic press using the diamond-cemented carbide compound anvil [J]. Acta Physica Sinica, 2013, 62(18): 180703.

[18] WANG H K, HE D W. A hybrid pressure cell of pyrophyllite and magnesium oxide to extend the pressure range for large volume cubic presses [J]. High Pressure Research, 2012, 32(2): 186–194.

[19] WANG H K, HE D W, YAN X Z, et al. Quantitative measurements of pressure gradients for the pyrophyllite and magnesium oxide pressure-transmitting mediums to 8 GPa in a large-volume cubic cell [J]. High Pressure Research, 2011, 31(4): 581–591.

[20] IRIFUNE T, ISOBE F, SHINMEI T. A novel large-volume Kawai-type apparatus and its application to the synthesis of sintered bodies of nano-polycrystalline diamond [J]. Physics of the Earth and Planetary Interiors, 2014, 228: 255–261.

[21] IRIFUNE T, KURIO A, SAKAMOTO S, et al. Ultrahard polycrystalline diamond from graphite [J]. Nature, 2003, 421(6923): 599–600.

[22] SHATSKIY A, KATSURA T, LITASOV K D, et al. High pressure generation using scaled-up Kawai-cell [J]. Physics of the Earth and Planetary Interiors, 2011, 189(1/2): 92–108.

[23] 王海阔, 贺端威, 许超, 等. 基于国产铰链式六面顶压机的大腔体静高压技术研究进展 [J]. 高压物理学报, 2013, 27(5): 633–661.
WANG H K, HE D W, XU C, et al. Development of large volume-high static pressure techniques based on the hinge-type cubic presses [J]. Chinese Journal of High Pressure Physics, 2013, 27(5): 633–661.

[24] 李帅锜, 贺端威, 张佳威. 大腔体静高压技术的发展及应用 [J]. 物理, 2022, 51(4): 228–238.
LI S Q, HE D W, ZHANG J W. Development and application of large volume, high static pressure technology [J]. Physics, 2022, 51(4): 228–238.

[25] 任东升, 李和平. DS 6×1400 t 二级 6-8 型大腔体高压装置压力标定 [J]. 矿物学报, 2018, 38(3): 355–358.
REN D S, LI H P. Pressure calibration for two-stage 6-8 type large-volume multi-anvil high pressure apparatus [J]. Acta Mineralogica Sinica, 2018, 38(3): 355–358.

[26] 张艳飞, 吴耀, 刘鹏雷, 等. Walker 型 28GPa 多面砧压机及其在地球科学中的应用 [J]. 地球科学-中国地质大学学报, 2012, 37(5): 955–965.
ZHANG Y F, WU Y, LIU P L, et al. Walker type multi-anvil apparatus and its applications in geosciences [J]. Earth Science-Journal of China University of Geosciences, 2012, 37(5): 955–965.

[27] FROST D J, POE B T, TRØNNES R G, et al. A new large-volume multianvil system [J]. Physics of the Earth and Planetary Interiors, 2004, 143/144: 507–514.

[28] 王海阔, 贺端威. 基于国产六面顶压机的二级 6-8 型大腔体静高压装置 (下) [J]. 超硬材料工程, 2015, 25(3): 25–30.
WANG H K, HE D W. Two stage 6-8 type large cavity static high pressure device based on the domestic cubic press [J].

Superhard Material Engineering, 2015, 25(3): 25–30.
[29] ZHANG J W, ZHAN G D, HE D W, et al. Transparent diamond ceramics from diamond powder [J]. Journal of the European Ceramic Society, 2023, 43(3): 853–861.
[30] XU C, HE D W, WANG H K, et al. Nano-polycrystalline diamond formation under ultra-high pressure [J]. International Journal of Refractory Metals and Hard Materials, 2013, 36: 232–237.
[31] SUMIYA H, IRIFUNE T. Hardness and deformation microstructures of nano-polycrystalline diamonds synthesized from various carbons under high pressure and high temperature [J]. Journal of Materials Research, 2007, 22(8): 2345–2351.
[32] LIU J, ZHAN G D, WANG Q, et al. Superstrong micro-grained polycrystalline diamond compact through work hardening under high pressure [J]. Applied Physics Letters, 2018, 112(6): 061901.
[33] TANG H, WANG M Z, HE D W, et al. Synthesis of nano-polycrystalline diamond in proximity to industrial conditions [J]. Carbon, 2016, 108: 1–6.
[34] YAO M G, SHEN F R, GUO D Z, et al. Super strengthening nano-polycrystalline diamond through grain boundary thinning [J]. Advanced Functional Materials, 2023, 33(18): 2214696.

Precision Modification of a Two-Stage Pressure Boosting System on a Domestic Cubic Press and Synthesized of Nano-Polycrystalline Diamond

LI Hefei, YU Dongli, CHEN Shuai, GUO Xiaogang, SHU Yu, WANG Lin, GAO Yufei

（*Center for High Pressure Science* (*CHiPS*), *State Key Laboratory of Metastable Materials Science and Technology*, *Yanshan University*, *Qinhuangdao* 066004, *Hebei*, *China*）

Abstract: The traditional domestic hinge-type cubic presses are typically operated using limit switch for positioning, fully-open rapid hydraulic oil filling, and fixed-rate pressurization/depressurization modes. Such configurations are limited by poor six-cylinders positioning accuracy and hydraulic filling synchronization, and the pressurization and depressurization rates fail to meet the stringent requirements of ultra-high two-stage pressurization for eccentric load control and mechanical stability. In this study, systematic modification and upgrade were implemented on a domestic cubic press with 650 mm cylinders. To suppress or eliminate the floating and deformation of the frame under overpressure conditions, self-locking pin shaft was designed and assembled, and pre-compensation for frame deformation under high pressure was performed. In addition, aim at improving alignment accuracy and hydraulic filling synchronization, a dual-pump multi-mode hydraulic circuit and an equal-volume cylinder oil-filling process were built. Furthermore, a three-stage feeding method combined with an independent displacement action mode was innovatively proposed. A closed-loop control program was developed to operate in parallel with the original press control system, enabling the real-time acquisition, synchronous monitoring, and closed-loop adjustment of data sets including press operational status, oil pressure, and heating temperature. Additionally, a strategy combining proportional-integral-derivative (PID) control with precision pressure-control module components was proposed to achieve ultra-slow pressurization and depressurization. The correlation between synthesis chamber pressure and oil pressure, and the correlation between heating temperature and power were experimentally calibrated. Furthermore, the high-temperature and high-pressure (HTHP) synthesis of centimeter-sized nano-polycrystalline diamond bulk specimen was conducted. The results indicate that the optimized and upgraded domestic 650 mm cubic press is capable of synthesis large-volume samples at 15 GPa and over 2000 ℃, which significantly expands the application area of domestic cubic presses.

Keywords: cubic press; two-stage pressure boosting; precision control; six-cylinder synchronization; ultraslow pressurization/depressurization; large-volume static high pressure