文章编号：1000-5773(2013)02-0205-06

非静水压下不同强度材料的应力传递特性*

冉翔天[1]，贺端威[1,3]，刘 景[2]，王齐明[1]，王 培[1]，王江华[1]，陈海花[1]，彭 放[1]

(1. 四川大学原子与分子物理研究所，四川成都 610065；
2. 中国科学院高能物理研究所，北京 100049；
3. 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：运用金刚石压砧(DAC)同步辐射角散 X 射线衍射技术，对非静水压缩下不同强度材料的应力传递特性进行了高压原位研究。分别将 Pt 与 β-SiC、Pt 与 WC 以及 WC 与 β-SiC 压至 56、61 和 25 GPa，实验发现，由于两种不同材料的屈服强度存在差异，其晶粒边界的应力传递是不连续的，同时观测到两种材料之间的应力差随强度差的增加而增加。在 DAC 轴向 X 射线衍射实验中，相同加载下，从接近最小应力的方向观测到，强度大的材料其应力较小。

关键词：应力传递；强度；非静水压
中图分类号：O521.2 **文献标识码**：A

1 引 言

将金刚石压砧(DAC)装置与同步辐射 X 射线衍射技术相结合，是目前静高压研究中采用的主要手段之一。利用这一手段，在很大压力范围内可以获得物质结构与性质的信息，如相变点、可压缩性和屈服强度等。通常，通过 Au、Pt、NaCl 和 MgO 等压标物质的状态方程来标定 DAC 腔体内的压力，压力的标定建立在一个基本假设上：即压标和所研究物质之间的应力是连续的(等应力传递)。

然而，由于单轴应力场的存在，在不使用传压介质的情况下，DAC 压腔内的样品通常受到非静水压缩。由于目前所有已知的传压介质在常温下的固化压力均小于 15 GPa[1]，并且固体都有一定的强度，因此，在安装样品时，即使在压腔内充以液态传压介质，但在 15 GPa 以上压强条件下，样品仍不能获得理想的静水压环境。当样品和压标之间的强度差异较大时，样品和压标的应力状态可能有较大差别[2-5]。Wang 等人[3]研究了金刚石和金的混合样品在非静水压缩下的应力状态，在最高加载下，观测到金刚石的平均应力达 360 GPa，与此同时，金的平均应力仅为 31 GPa，研究结果表明，金刚石和金的晶粒边界接近于等应变传递，这与通常的假定——等应力传递恰好相反。类似的对软压标和硬物质之间的应力状态或流变行为的研究报道有一些[4-5]，但对不同强度的压标和样品在非静水压下的应力传递行为的系统研究未见有报道。

铂(Pt)是 DAC 实验中最常使用的压标之一，人们对其在高压下的弹性与塑性性质进行了研究[6-7]，它的体弹模量为 277 GPa，压力导数为 5.08[6]。立方碳化硅(β-SiC)具有许多优良的性质，如高熔点、高硬度和高韧性等[8-12]，因此，在高压研究与工业领域都有广泛的应用，其体弹模量、压力导数和韦氏硬度分别为 260 GPa、2.9[12]和 26 GPa[13]。与立方碳化硅类似，碳化钨(WC)也是一种在高压研究领域和工业应用方面均有重要意义的硬陶瓷材料[14-16]，其体弹模量为 411.8 GPa，压力导数为 5.45[16]，韦氏硬度

* 收稿日期：2013-04-01
基金项目：国家 973 项目(2011CB808200)；国家自然科学基金(11027405)；国家自然科学基金委员会-中国工程物理研究院 NSAF 联合基金(10976018)
作者简介：冉翔天(1987—)，男，硕士研究生，主要从事高压下材料物性研究. E-mail：antimatter1987@yahoo.com.cn
通讯作者：贺端威(1969—)，男，教授，博士生导师，主要从事高压科学与技术研究. E-mail：duanweihe@scu.edu.cn

达 23.5 GPa[13]。本研究选取上述 3 种材料作为研究对象，实验分为 3 组：第 1 组为 Pt 与 β-SiC，属于软压标与硬物质的搭配；第 2 组为 Pt 与 WC，亦属于软压标与硬物质的搭配；第 3 组为 WC 与 β-SiC，属于硬压标与硬物质的搭配。各组实验的最高压强分别为 55.9、60.6 和 25.3 GPa。研究每组实验中两种不同材料各自的应力状态，详细讨论材料间的强度差异对它们之间应力传递行为的影响。

2 实 验

3 组实验均在常温条件下进行，采用 DAC 轴向角散 X 射线衍射(ADXRD)技术，于北京同步辐射中心(BSRF)高压实验站 4W2 光束线上完成。入射 X 射线波长为 0.061 99 nm，光斑尺寸约 25 μm×15 μm。使用砧面大小为 300 μm^2 的对称式 DAC 装置获得高压。为了使 DAC 腔内非静水压状态最大化，未添加传压介质。选取不锈钢片(T301)作为封垫，经预压后钻直径约 100 μm 的孔作为样品腔。实验所用 SiC 的平均晶粒尺寸约 1 μm(Alfa Aesar，99.8%)，WC 平均晶粒尺寸也为 1 μm(Alfa Aesar，99.5%)。实验 1 和实验 2 中，分别在 SiC 和 WC 粉末上放置直径约 15 μm 的 Pt 箔片；实验 3 中，将 WC 和 SiC 粉末按 1∶1 体积比进行混合。采集信号后，使用 FIT2D 软件[17]将衍射环积分，转换为一维衍射图谱，然后进行数据分析。

3 理 论

Singh 等人[18-20]提出了晶格应变理论，指出非静水压下对称式 DAC 装置中多晶样品中心附近的应力状态可表述为

$$\begin{pmatrix} \sigma_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \sigma_{11} & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_{33} \end{pmatrix} \tag{1}$$

式中：σ_{11}(最小应力)沿着径向，而 σ_{33}(最大应力)则沿着 DAC 加载轴方向。将 σ_{33} 和 σ_{11} 之差定义为宏观差应力 t

$$t = \sigma_{33} - \sigma_{11} \leqslant 2\tau = Y \tag{2}$$

式中：τ 为样品的剪切强度，Y 为样品的屈服强度。

另一方面，由于晶粒之间的相互挤压，非静水压缩下，在多晶样品中存在局部偏应变，表现为衍射峰的宽化。通过计算高压下衍射峰相对于常温常压下的变化，可以得到与衍射矢量方向平行的微区偏应变分布[21]。若系统加载足够大，样品则发生塑性形变。此时，样品所能支撑的最大宏观差应力与微区偏应力均等于该条件下样品的屈服强度[5,22-23]。

4 结果与讨论

本次实验的最高压强为 55.9 GPa，实验中选取 9 个压力点进行数据分析。图 1 为常温下 Pt 和 SiC 的原位 ADXRD 衍射图谱。Pt(111)和(200)晶面衍射峰清晰可见，但(200)面衍射峰的强度较弱，故采用 Pt(111)晶面衍射峰的数据计算应力。SiC(111)、(200)和(220)晶面的衍射峰均可见。当压强大于 16.7 GPa 时，其(200)晶面衍射峰的强度很弱。因此，从 SiC(111)和(220)晶面的衍射线导出其平均晶格参数，计算应力。

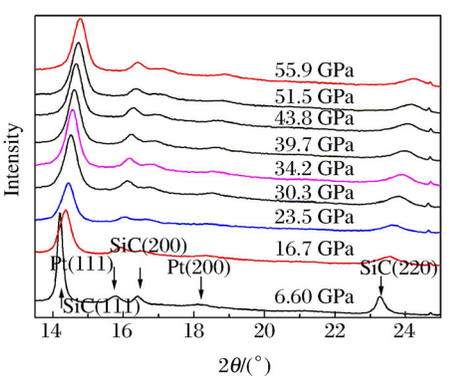


图 1 不同加载下 Pt 和 SiC 的原位 X 射线衍射图谱

Fig. 1 Integrated *in situ* ADXRD spectra of Pt and SiC at various pressures

比较相同加载下所观测到的 Pt 和 SiC 的应力值(图 2)发现，在整个测量范围内，在同一加载下，由 Pt 状态方程[6]计算得到的应力都比由 SiC 状态方程[12]计算得到的应力大。在最高加载下，Pt 的应力高达 55.9 GPa，与此同时，SiC 的平均应力仅为

38.7 GPa。随着加载增加,二者之间的应力差也随之增大,最小的应力差为 4.3 GPa,而最大的应力差则达 17.2 GPa。

图 3 显示了不同加载下 SiC(111)晶面与 Pt(111)晶面衍射峰的半高宽(FWHM)随压强的变化。由图 3 可见,最初 SiC(111)晶面衍射峰的半高宽随压强的增加而迅速增加,随后开始变窄,23 GPa 是个转折点,表明可能由于塑性流动,局部偏应力释放,SiC 在 23 GPa 左右开始屈服。Pt 的半高宽在整个实验过程中趋于稳定,其屈服强度应小于 6.6 GPa。

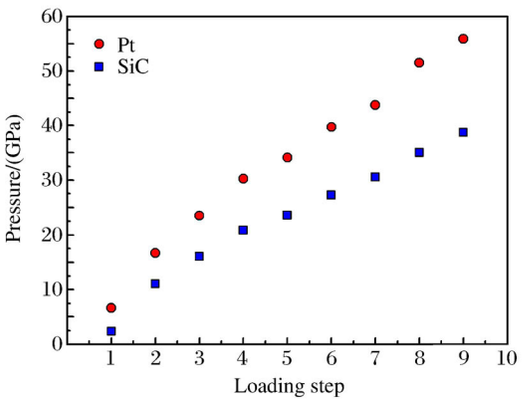


图 2　非静水压下 Pt 和 SiC 应力随加载的变化

Fig. 2　Observed apparent stress values of Pt and SiC under different loading step

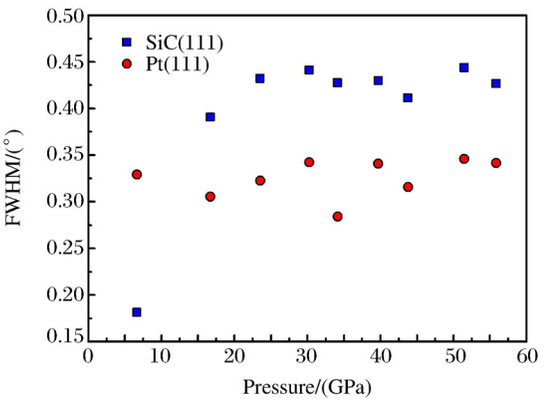


图 3　Pt(111)和 SiC(111)衍射峰半高宽(FWHM)随压强的变化

Fig. 3　The full width at half-maximum (FWHM) of Pt (111) and SiC (111) diffraction peaks vs. pressure

根据(2)式,样品所能支撑的宏观差应力 t 与其屈服强度 Y 密切相关。一旦样品发生塑性形变,t 与此时样品的屈服强度相等[5,22-23]。在传统轴向金刚石压砧 X 射线衍射实验中,只能从接近径向(最小应力方向)的方向收集衍射信号。Pt 的屈服强度很小,在最高 22.4 GPa 的非静水压下,它所能够支撑的宏观差应力小于 3.3 GPa[24],实验中发现,Pt 在 6.6 GPa 前发生屈服。SiC 的屈服强度比 Pt 大得多,实验中发现,SiC 很可能在 23 GPa 左右开始屈服(压强通过计算 Pt(111)晶面衍射峰移位得出),意味着它所能够支撑的差应力远大于 Pt。因此,所观测到的 SiC 的应力和 Pt 的应力有很大差别。

实验 2(Pt 和 SiC)的最高压强为 60.6 GPa。比较不同加载下所观测到的 Pt 和 WC 的应力(图 4)可见,在较低压强范围内(小于 3 GPa),分别由 Pt[6] 和 WC[16] 的状态方程导出的压强相差不大;在高压下(大于 4.3 GPa),它们之间有显著差别。在整个测量范围内,每一相同加载下,由 Pt 计算得到的压强大于由 WC 计算得到的压强。总体上,它们之间的压强差随着加载的增加而增加。这与实验 1(Pt 和 SiC)中的情形相似。在最高加载下,Pt 的压强高达 60.6 GPa,与此同时,WC 的压强仅为50.7 GPa。它们之间最小应力差为 1.2 GPa,最大应力差为 10.3 GPa。

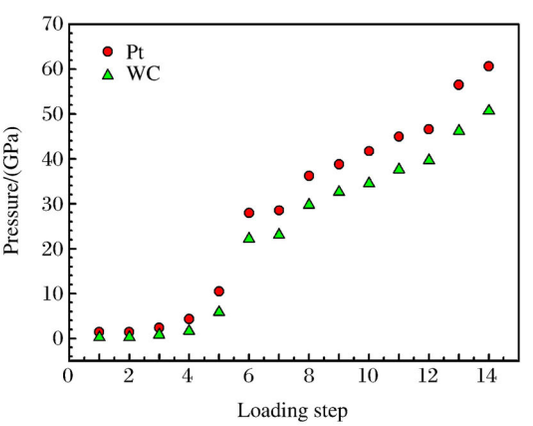


图 4　非静水压下 Pt 和 WC 应力随加载的变化

Fig. 4　Observed apparent stress values of Pt and WC under different loading step

图 5 显示了每一加载下 Pt(111)晶面和 WC(100)晶面衍射峰的半高宽。如图 5 所示,外延 WC(100)晶面在 0～15 GPa 和 25～60 GPa 区域的数据

后，它们将在 18 GPa 左右相交，WC 很可能在这个转折点开始屈服。Pt(111)晶面衍射峰的半高宽，在 0～4 GPa 压强范围内，随加载增加而迅速增加；在大于 4 GPa 的区域，随加载增加缓慢增加，表明 Pt 很可能在 4 GPa 附近开始屈服。这与实验 1 所得结果和其它研究结果[24]是一致的。WC 的屈服强度比 Pt 大得多，同时观测到，在相同加载下，WC 和 Pt 之间存在较大的应力差。实验 2 中两种不同材料间的应力差比实验 1 中的小一些，很可能是因为 β-SiC 的强度比 WC 的大，而二者的强度都远大于 Pt。

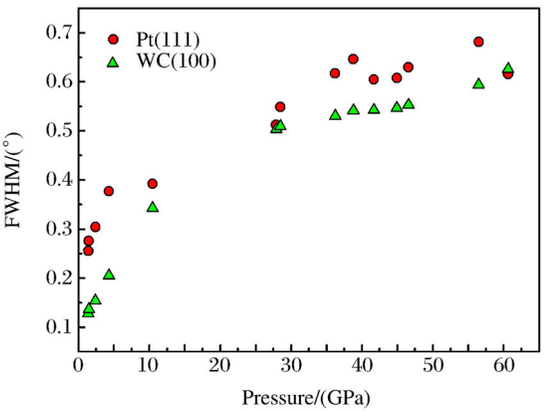


图 5 Pt(111)和 WC(100)半高宽(FWHM)随压强的变化

Fig. 5 The full width at half-maximum (FWHM) of Pt (111) and WC (100) diffraction peaks vs. pressure

实验 3(WC 和 β-SiC)的最高压强为 25.3 GPa(由 WC 的平均晶格参数算出)。如图 6 所示，在 0～5 GPa压强范围内，由 SiC 状态方程[12]导出的应力与由 WC[17]导出的应力几乎相同。在压强大于 5 GPa的范围内，WC 和 SiC 之间存在较明显的应力差。每一相同的加载下，WC 的应力略大于 SiC。最高加载下，WC 的应力为 25.3 GPa，SiC 的应力为 23 GPa。WC 和 SiC 之间的最小应力差为 0.2 GPa，最大的应力差为 3.3 GPa。实验 3 中所观测到的两种不同材料间的应力差(0.2～3.3 GPa)比在实验 1 和实验 2 中观测到的应力差(4.3～17.2 GPa 与 1.2～10.3 GPa)小得多，其原因可能是，实验 3 中 SiC 和 WC 之间的强度差异较小。图 7 显示了非静水压下 SiC(220)晶面和 WC(101)晶面衍射峰的半高宽随压强的变化(本实验中，WC 最强衍射峰(100)晶面与 SiC 最强衍射峰(111)晶面完全重合，故使用 SiC(220)晶面和 WC(101)晶面进行分析)。由图 7 可见，SiC(220)晶面和 WC(101)晶面衍射峰的半高宽最初都随加载增加而较快增加，直至加载至 15 GPa 左右。在更高的加载下，它们几乎保持不变。这意味着，SiC 和 WC 均可能在 15 GPa 左右开始屈服。由此可知，SiC 和 WC 的屈服强度几乎相同。因此，观测到的应力差很小。

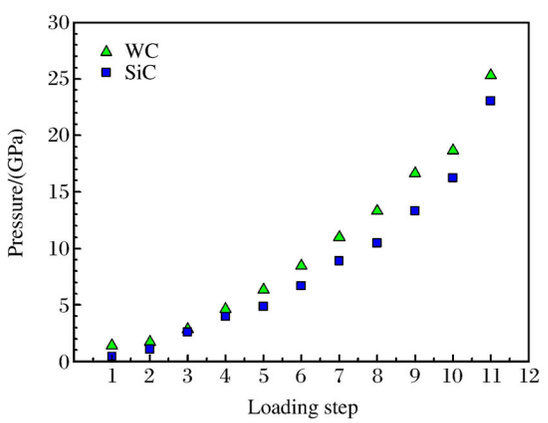


图 6 非静水压下 WC 和 SiC 应力随加载的变化

Fig. 6 Observed apparent stress values of WC and SiC under different loading step

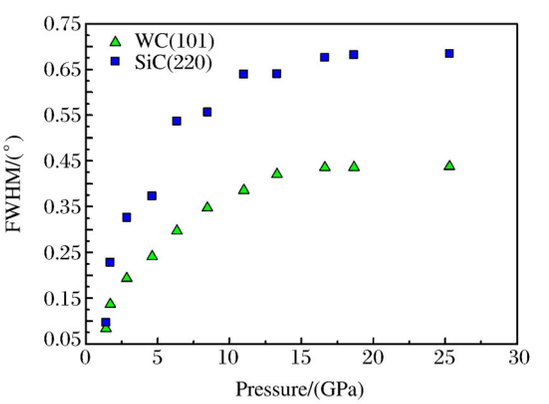


图 7 WC(101)和 SiC(220)衍射峰半高宽(FWHM)随压强的变化

Fig. 7 The full width at half-maximum (FWHM) of WC(101) and SiC(220) diffraction peaks vs. pressure

5 结　论

采用DAC同步辐射轴向X射线衍射技术,原位观测了3组实验(Pt和SiC、Pt和WC、SiC和WC)中两种不同强度材料在高压下的应力状态。根据实验结果发现:两种不同材料间的强度差异将导致所观测到的应力不连续。强度差异越大,所观测到的应力差异也越大。相同加载下,从接近最小应力方向(径向)观测到,强度大的材料其应力较小。为了提高标压的准确性,建议在做非静水压DAC实验时,应选择屈服强度与所研究样品相接近的物质作为压标。

此工作在北京同步辐射装置(BSRF)的4W2高压实验站上完成,高压实验站由中国科学院知识创新重要方向项目支持(KJCX2-SW-N20,KJCX2-SW-N03)。

References:

[1] Miletich R,Allan D R,Kuhs W F. High-pressure single-crystal techniques [J]. Rev Mineral Geochem,2000,41(1):445-519.

[2] Conil N,Kavner A. Elastic behavior and strength of Al_2O_3 fiber/Al matrix composite and implications for equation of state measurements in the diamond anvil cell [J]. J Appl Phys,2006,100(4):043517.

[3] Wang J,He D,Duffy T S. Stress state of diamond and gold under nonhydrostatic compression to 360 GPa [J]. J Appl Phys,2010,108(6):063521(1)-063521(5).

[4] Duffy T S,Shen G Y,Heinz D L,et al. Lattice strains in gold and rhenium under nonhydrostatic compression to 37 GPa [J]. Phys Rev B,1999,60(22):15063-15073.

[5] He D,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]. Phys Rev B,2004,70(18):184121.

[6] Dewaele A,Loubeyre P,Mezouar M. Equations of state of six metals above 94 GPa [J]. Phys Rev B,2004,70(9):094112.

[7] Holmes N C,Moriarty J A,Gathers G R,et al. The equation of state of platinum to 660 GPa (6.6 Mbar) [J]. J Appl Phys,1989,66(7):2962-2967.

[8] Trew R J,Yan J B,Mock P M. The potential of diamond and SiC electronic devices for microwave and millimeter-wave power applications [J]. Proceedings of the IEEE,1991,79(5):598-620.

[9] Edgar J. Prospects for device implementation of wide band gap semiconductors [J]. J Mater Res,1992,7(1):235-252.

[10] Strössner K,Cardona M,Choyke W. High pressure X-ray investigations on 3C-SiC [J]. Solid State Commun,1987,63(2):113-114.

[11] Aleksandrov I V,Goncharov A F,Stishov S M,et al. Equation of state and Raman scattering in cubic BN and SiC at high pressures [J]. JETP Lett,1989,50(3):127-131.

[12] Yoshida M,Onodera A,Ueno M,et al. Pressure-induced phase transition in SiC [J]. Phys Rev B,1993,48(14):10587.

[13] Holleck H. Material selection for hard coatings [J]. J Vacuum Sci Tech A:Vacuum,Surfaces,Films,1986,4(6):2661-2669.

[14] Gerlich D,Kennedy G C. The elastic moduli and their pressure derivatives for tungsten carbide with different amounts of cobalt binder [J]. J Appl Phys,1979,50(5):3331-3333.

[15] Lin Z J,Wang L,Zhang J Z,et al. Nanocrystalline tungsten carbide:As incompressible as diamond [J]. Appl Phys Lett,2009,95(21):211906(1)-211906(3).

[16] Amulele G M,Manghnani M H,Marriappan S,et al. Compression behavior of WC and WC-6%Co up to 50 GPa determined by synchrotron X-ray diffraction and ultrasonic techniques [J]. J Appl Phys,2008,103(11):113522(1)-113522(6).

[17] Hammersley A P,Svenssona S O,Hanflanda M,et al. Two-dimensional detector software:From real detector to

idealised image or two-theta scan [J]. Int J High Pressure Res, 1996, 14(4/5/6): 235-248.

[18] Singh A K. The lattice strains in a specimen (cubic system) compressed nonhydrostatically in an opposed anvil device [J]. J Appl Phys, 1993, 73(9): 4278-4286.

[19] Singh A K, Balasingh C, Mao H K, et al. Analysis of lattice strains measured under nonhydrostatic pressure [J]. J Appl Phys, 1998, 83(12): 7567-7575.

[20] Singh A K, Mao H K, Shu J F, et al. Estimation of single-crystal elastic moduli from polycrystalline X-ray diffraction at high pressure: Application to FeO and iron [J]. Phys Rev Lett, 1998, 80(10): 2157-2160.

[21] Weidner D J, Wang Y, Vaughan M T. Strength of diamond [J]. Science, 1994, 266(5184): 419-422.

[22] Dong H N, He D W. Elastic moduli and strength of nanocrystalline cubic BC_2N from X-ray diffraction under nonhydrostatic compression [J]. Phys Rev B, 2009, 79(1): 014105.

[23] He D W, Duffy T S. X-ray diffraction study of the static strength of tungsten to 69 GPa [J]. Phys Rev B, 2006, 73(13): 134106.

[24] Kavner A, Duffy T S. Elasticity and rheology of platinum under high pressure and nonhydrostatic stress [J]. Phys Rev B, 2003, 68(14): 144101.

Stress Transmission of Materials with Different Strengths under Non-Hydrostatic Compression

RAN Xiang-Tian[1], HE Duan-Wei[1,3], LIU Jing[2], WANG Qi-Ming[1], WANG Pei[1], WANG Jiang-Hua[1], CHEN Hai-Hua[1], PENG Fang[1]

(1. *Institute of Atomic and Molecular Physics, Sichuan University, Chengdu* 610065, *China*;
2. *Institute of High Energy Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing* 100049, *China*;
3. *National Key Laboratory of Shock Wave and Detonation Physics, Institute of Fluid Physics, CAEP, Mianyang* 621900, *China*)

Abstract: Using diamond anvil cell (DAC) combined with synchrotron axial X-ray diffraction (AXRD) techniques, the stress transmission behavior among materials with different strengths was investigated under non-hydrostatic compression. In our experiments, powder mixtures of platinum (Pt) and cubic silicon carbide (β-SiC), Pt and tungsten carbide (WC), as well as WC and β-SiC, were compressed up to 56, 61, and 25 GPa, respectively. We found that the stress transmission among the grain boundary of two different materials is discontinuous due to their strength difference, and the observed stress difference increases with the strength difference. The stronger material has a smaller observed stress near the minimum stress direction under non-hydrostatic compression in DAC at the same loading.

Key words: stress transmission; strength; non-hydrostatic compression