文章编号:1000-5773(2013)03-0411-06

DAC 加载金刚石和样品变形实验与模拟研究*

敬秋民,吴　强,毕　延,于继东,徐济安

(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:针对压力梯度法屈服强度测量实验技术,通过金刚石压砧对 Mo 薄箔样品的压缩实验,结合有限元模拟对金刚石的弹性变形和样品的弹塑性变形历史的计算,分析了金刚石的弹性压缩变形和"杯形"变形(Cupping)对压力梯度法原位厚度测量以及样品表面压力分布的影响。结果表明,至少在实验最高压力 31.0 GPa 以内,忽略金刚石的弹性压缩变形具有合理性,金刚石"杯形"变形较为明显,对有限元模拟和实验测量给出的压力分布曲线分析表明,该变形使台面边沿样品表面的压力分布略微偏低,但在 31.0 GPa 以内,对压力分布以及压力梯度没有影响。在压力达到 60 GPa 时,台面"杯形"变形已经导致压砧边沿接触,实验设计上给出了降低"杯形"变形的建议。

关键词:屈服强度;有限元模拟;弹性压缩;杯形变形

中图分类号:O521.2　　**文献标识码**:A

1　引　言

材料高压屈服强度测量是高压本构关系研究的重要内容之一。在基于金刚石压砧(DAC)加载的静高压屈服强度测量技术中,压力梯度法[1-2]是一种适合于离线实验室的实验技术,也是 DAC 加载下唯一实现过高温屈服强度测量的技术[1]。采用压力梯度法,研究了多种金属[3-4]和矿物[1-2,5-7]的高温高压屈服强度,为高压物性、本构关系以及地球行星科学研究积累了大量经验,并提供了丰富的实验数据。但由于早期实验技术上没能实现样品厚度的原位测量,传统压力梯度法只是借助样品材料的物态方程进行弹性恢复修正估算样品的原位厚度,计算误差达 30%。2007 年,出现了一种被称作"标记法"[8-9]的原位厚度测量方法,其原理是通过测量两个粘贴在金刚石压砧侧面的标记之间距离的相对变化来反映压缩下样品的原位厚度,测量误差为 3 μm。"标记法"的出现使压力梯度法成为一种完全实验测量技术,其测量精度的提升对于高压本构关系研究有非常重要的意义。

然而,"标记法"测量原理基于一个重要假定,即高压下金刚石的变形可以忽略。众所周知,金刚石是目前实验上证实的常压下强度最大的材料,多数情况下被视为刚体。但有实验[10]和有限元分析[11]表明,在压力达到 100 GPa 量级时,即使是金刚石仍不可避免出现大量变形,特别是金刚石压砧尖端,变形更为显著。"标记法"中这部分大变形区域正好处于测量范围之内,金刚石尖端的变形量被测量并计入样品厚度结果中,引入误差。另一方面,为了确保在台面径向有足够多压力测点,以期获得更加完整的压力分布曲线[8],压力梯度法通常采用较大台面压砧,这类大台面压砧除了压缩变形外,"杯形"变形

* **收稿日期**:2011-12-17;**修回日期**:2012-06-07

基金项目:国防科技重点实验室基金(9140C6703031002)

作者简介:敬秋民(1978—),男,硕士研究生,助理研究员,主要从事静高压实验技术和高压本构关系研究.
E-mail:j_qm@163.com

(Cupping)同样突出[12]。金刚石的“杯形”变形使样品在高压下呈现“凸透镜”状[1],从而可能引起样品表面上压力分布和压力梯度改变,进一步对压力梯度法的测量带来影响。

因此,压力梯度法中忽略金刚石变形这一假定的可靠性有待验证,金刚石的弹性压缩变形和台面的“杯形”变形对原位厚度测量和压力分布产生的影响需要深入分析。目前实验上尚缺少有效探测金刚石变形的手段,数值模拟计算为探索材料内部弹塑性变形历史和实验设计方面提供了最为有效的工具[13-15]。本研究主要通过 DAC 对 Mo 薄箔样品的压缩实验,结合有限元模拟(FEM)计算的压力梯度法实验中金刚石和 Mo 样品的弹塑性变形历史,分析金刚石的弹性压缩变形和“杯形”变形对压力梯度法原位厚度测量和压力分布产生的影响,验证压力梯度法屈服强度测量技术的可靠性。

2 实 验

实验中 DAC 压砧采用平台面,台面直径 400 μm。图 1 显示了金刚石压砧沿轴向截面在第一象限的形状,数字代表相应位置的几何尺寸,单位为 μm,阴影区域为 Mo 样品。金刚石上、下压砧侧面均粘贴有细金属丝作为标记,用于测量样品高压下的原位厚度。

样品采用 Mo 箔(Good Fellow 公司,99.95%,高温回火处理),初始厚度为 100 μm。Mo 箔表面均匀稀疏分布粒径为 1 μm 左右的红宝石颗粒作为压标,压力由红宝石非静加载条件下的标定关系[16]计算。所有实验均在室温下进行。

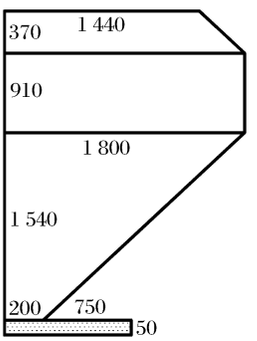


图 1 FEM 计算中压砧和样品几何模型

Fig. 1 The geometry of diamond anvil and gasket used in FEM calculation

3 有限元分析

压力梯度法屈服强度测量实验与封垫预压实验相似,虽然实验模型结构简单,但要精确模拟却十分困难。因为模拟结果的可靠性依赖于准确的本构参数输入,如屈服强度 Y、剪切模量 G 等,而这些参数往往正是实验研究所关心或待测量的。本模拟主要思路如下:基于已有实验和理论研究,给出本构关系 $Y(p)$、物态方程(EOS)和初始条件等主要输入参数,选择恰当的材料模型,通过 FEM 计算揭示金刚石和样品在高压下的弹塑性变形历史,比较 FEM 和实验测量给出的样品厚度和压力分布曲线,进一步论证压力梯度法测量技术的有效性。

模拟采用的金刚石和样品的几何结构与实验完全一致,参见图 1。对于金刚石,采用各向同性弹性模型,初始密度 $\rho_0=3.5$ g/cm^3,杨氏模量 $E_0=1\,050$ GPa[17],柏松比 $\nu_0=0.1$[17],下标“0”表示常温常压值。金刚石作为目前公认的最硬材料,其强度最大是无可争议的,但目前并没有一个广泛认同的屈服强度测量值,从 35~100 GPa 以上均有研究报道[17-18]。本次模拟保守采用 $Y_0=35$ GPa[15]。样品 Mo 采用流体弹塑性模型。其中 $\rho_0=10.22$ g/cm^3,状态方程由文献[19]拟合为非线性形式输入。本构关系为 $Y=0.46+0.13p$[20],$G_0=115.4$ GPa[20]。考虑到样品涉及大变形过程,计算中进行网格重划,确保网格适应高压下样品新的几何形状。

4 结果和讨论

图 2 显示了 FEM 计算得到的最高压力为 19.3 GPa 时金刚石和样品中的压力等高线分布情况,图中数值表示压力,单位为千帕。结果显示,样品中心压力最高,远离样品中心压力逐渐降低。DAC 加载过程中,样品沿台面流出并在台面边沿堆积,包围金刚石压砧前端,形成的鼓包与实验观测完全一致。这部分流出台面的样品经过应变硬化和在大质量支撑原理下对台面内样品形成阻力,阻止台面内样品的继续挤出,样品进一步塑性变形则需要提供更大的加载压力,封垫预压提高实验压力正是基于这一原理。

对于采用大台面压砧的压力梯度法实验，高压下金刚石会出现弹性压缩和“杯形”两种变形，图 3 示意性显示了高压下金刚石的这两种变形和样品的剖面形状。图中虚线为假定金刚石无变形时压砧砧面位置，实线为变形后的位置。为了形象，图中略微夸大了金刚石压砧“杯形”变形的程度。为了更加清楚反映金刚石“杯形”变形的情况，图 3 中分别以 h_c 和 h_b 表示高压下台面中心($r=0$，r 为径向坐标)和边沿($r=r_0$，r_0 为台面半径)样品的原位厚度。由于金刚石的“杯形”形状和样品的“凸透镜”形状相对应，因此，(h_c-h_b)的差值间接反映了金刚石台面“杯形”变形程度，余下全文均用该值直接表示金刚石的“杯形”变形。h_{exp}表示假定金刚石无变形情况下由“标记法”测量的样品厚度，即图中两虚线之间的距离。阴影区域为 Mo 样品。

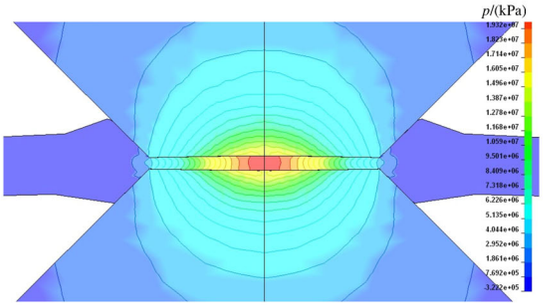


图 2　FEM 计算的压力分布

Fig. 2　The pressure profile calculated by FEM

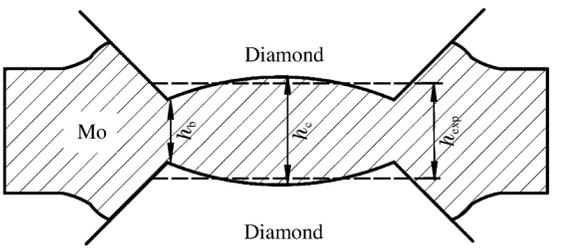


图 3　高压下金刚石和样品变形示意图

Fig. 3　The deformation schematic of diamond and sample at high pressures

从 FEM 模拟中提取的 h_c 和 h_b 以及实验测得的 h_{exp}在各压力下的值参见表 1 和图 4，图 4 插图显示了(h_c-h_b)随压力(这里指每条压力分布曲线上的峰值压力，余下全文若无特别说明，所称压力均指峰值压力)的变化趋势。

表 1 和图 4 显示，在实验测量的最高压力 31 GPa以内，FEM 给出的样品中心厚度 h_c 在标记法重复测量误差范围内与 h_{exp} 完全吻合。从 FEM 和实验测量的压力分布(见图 5)可以发现，台面和样品中心($r=0$)承受的压力最高，该处金刚石的弹性压缩变形最大。尽管如此，图 4 中 h_c 与 h_{exp}仍然十分吻合，表明在 31 GPa 以内金刚石发生的弹性变形很小，在标记法的测量误差范围内完全可以忽略。随压力的进一步增加，h_c 在高压范围内继续延续了 h_{exp}的变化趋势，表明 h_c 和 h_{exp}在高压下仍然具有较好的一致性，金刚石的压缩变形不大。由高压段数据简单外推发现，在 50 GPa 以内，标记法测量仍具有一定的可行性。值得说明的是，尽管模拟保守估计金刚石的初始强度，但金刚石弹性变形仍然不大，表明不太高的压力范围无需考虑金刚石的塑性变形。有研究显示，金刚石在压力高于 100 GPa 后才会出现塑性变形[10-11]。

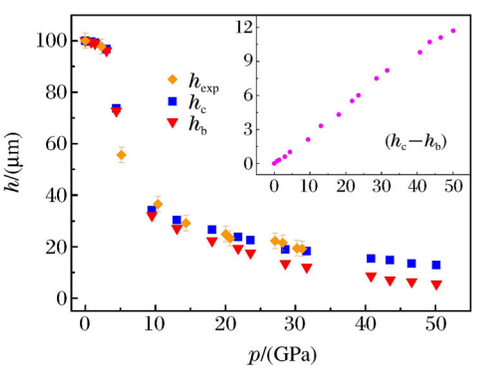


图 4　FEM 模拟和实验测量的 h-p 关系比较

Fig. 4　The thickness as a function of pressure from FEM calculation and experiment

图 4 同时显示，对于 DAC 台面边沿的样品厚度 h_b，在 18.1 GPa 以内与 h_{exp} 基本一致，但在 18.1 GPa以上逐渐偏离，随着压力的增加，h_b 比 h_{exp}呈现出更快的下降趋势。h_b 和 h_{exp}的差异表明，金刚石台面出现了“杯形”变形。图 4 插图显示，金刚石“杯形”变形随压力几乎线性增加。当压力为 18.1 GPa时，变形量为 4.3 μm；在 31.6 GPa 时，变形量达到 8.2 μm。“杯形”变形主要由加载轴方向上的应力梯度引起，如图 2 所示，加载轴方向上的应力梯度的分布特点使金刚石压砧中心比边沿弹性压缩

变形更大，金刚石台面中心呈现“内凹”变形，同时该轴向应力分布沿径向的上力矩进一步加剧台面的“内凹”弯曲变形。FEM 计算结果表明，在压力大于 60 GPa 时，h_b 已经接近于零，“杯形”变形已经导致压砧边沿接触，边沿处网格畸变。FEM 呈现的金刚石压砧台面边沿接触的现象，暗示实验中上、下金刚石压砧台面边沿接触并面临碎裂的危险。

表 1 样品厚度和金刚石“杯形”变形

Table 1 The thickness of sample and cupping deformation of diamond

p/(GPa)	h_c/(μm)	h_b/(μm)	h_c-h_b/(μm)	p_{exp}/(GPa)	h_{exp}/(μm)
0.0	100.0	100.0	0.0	0.0	100.0
0.8	99.7	99.5	0.2	2.3	97.8
1.4	99.6	98.9	0.3	5.1	55.6
3.0	96.8	96.1	0.6	10.4	36.6
4.4	73.7	72.7	1.0	14.4	29.2
9.5	34.2	32.1	2.1	20.1	24.9
13.1	30.4	27.1	3.3	20.7	23.3
18.1	26.7	22.3	4.3	27.1	22.3
21.8	23.8	18.3	5.5	28.2	21.5
23.6	22.5	16.5	6.0	30.2	19.4
28.6	18.9	11.5	7.4	31.0	19.2
31.6	18.3	10.1	8.2		
40.8	15.4	5.6	9.8		
43.5	14.8	4.1	10.7		
46.6	13.5	2.4	11.1		
50.1	12.8	1.1	11.7		

金刚石台面“杯形”变形最直接的影响是导致样品表面压力分布改变。图 5 给出了 FEM 计算和实验测量给出的样品表面压力分布曲线。图 5 显示，两种压力分布曲线在台面中间大部分区域表现出了较好的一致性；只有在台面边沿处，FEM 计算给出的结果略微偏低。造成这一差异的主要原因是金刚石台面在高压下的“杯形”变形；FEM 计算保守估计了金刚石的常压屈服强度(35 GPa)，导致计算高估了金刚石台面的“杯形”变形也是原因之一。根据两种压力分布曲线推导径向压力梯度发现，在 31.0 GPa 以内，两种曲线在径向上的最大压力梯度基本一致，说明金刚石“杯形”变形对包括最大压力梯度位置在内的中间区域没有产生显著影响，只是轻微改变了台面边沿处的压力分布。

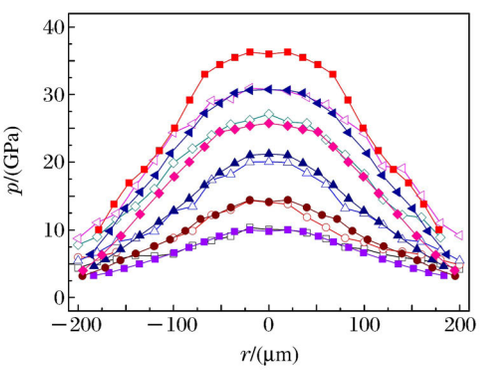


图 5 FEM 模拟和实验测量压力分布结果比较
(空心符号表示实验数据，实心符号表示 FEM 结果)

Fig. 5 Various pressure distributions calculated by FEM compared with experimental pressure profiles
(The open and solid symbols denote the results from FEM calculation and experiment, respectively)

上述分析表明，金刚石“杯形”变形是限制压力梯度法高压测量的主要因素。为了保证压力梯度法对软材料以及高压测量的可行性，实验设计上必须尽可能降低“杯形”变形的影响。首先，在确保压力分布曲线完整测量的前提下，减小压砧台面直径或采用倒角压砧是重要途径之一。FEM 分析表明，小台面和倒角压砧对稳定样品和减小金刚石变形十分有

效[14]。其次,实验中增加封垫也是有效途径之一,封垫通过提供更高的围压来实现高压力和对软材料的测量。不过由于封垫在 DAC 加载下自身强度也随压力增加,可能影响高压下样品表面的压力分布[21],因此,在采用封垫实验前必须进行合理分析和设计,排除由此带来的不利影响。

5　结　论

进行了 DAC 加载下 Mo 箔的压缩实验,结合 FEM 对压力梯度法实验中金刚石的弹性压缩变形、"杯形"变形和 Mo 样品的弹塑性变形规律的模拟,分析了金刚石弹性压缩变形和"杯形"变形对压力梯度法原位厚度测量和压力分布的影响。结果表明,在压力梯度法实验中,金刚石的弹性压缩并不明显,"标记法"忽略金刚石的变形是合理的,标记法的测量结果具有一定的可靠性。标记法测量的样品厚度 h_{exp} 对应于台面样品中心的厚度 h_c。相比之下,h_b 随压力增加比 h_{exp} 呈现出更快的下降趋势,金刚石台面"杯形"变形较明显。但对两种压力分布曲线分析表明,至少在 31.0 GPa 以内,两条曲线的最大压力梯度没有明显差异,说明变形只轻微影响了台面边沿处的压力分布,对包括最大压力梯度位置在内的中间区域没有产生显著影响,因而对于压力梯度法测量技术没有显著影响。在压力达到 60 GPa 时,台面"杯形"变形已经导致压砧边沿接触,边沿处网格畸变。FEM 模拟呈现的金刚石压砧台面边沿接触的现象,暗示实验中上、下金刚石压砧台面边沿接触并面临碎裂的危险。但考虑到在 FEM 计算中,保守估计了金刚石的屈服强度,实验中金刚石出现"杯形"变形的压力、影响压力分布的压力以及金刚石压砧接触碎裂的压力均会有所提高。为了保证压力梯度法对软材料以及高压测量的可行性,实验设计上可以考虑在保证压力分布曲线完整测量的前提下,减小压砧台面尺寸和增加封垫,以此降低"杯形"变形带来的影响。

感谢袁帅博士和宋振飞博士在模拟方面给予的帮助。

References:

[1] Sung C M, Goetze C, Mao H K. Pressure distribution in a diamond anvil cell and shear stress for fayalite [J]. Rev Sci Instrum, 1977, 48(11): 1386-1391.

[2] Meade C, Jeanloz R. Yield Strength of MgO to 40 GPa [J]. J Geophys Res, 1988, 93(B4): 3261-3269.

[3] Jeanloz R, Godwal B K, Meade C. Static strength and equation of state of rhenium at ultra-high pressures [J]. Nature, 1991, 349(6311): 687-689.

[4] Weir S T, Akella J, Ruddle C, et al. Static strengths of Ta and U under ultrahigh pressures [J]. Phys Rev B, 1998, 58(17): 11258-11265.

[5] Meade C, Jeanloz R. Yield strength of B1 and B2 phase of NaCl [J]. J Geophys Res, 1988, 93(B4): 3270-3274.

[6] Meade C, Jeanloz R. Yield strength of Al_2O_3 at high pressures [J]. Phys Rev B, 1990, 42(4): 2532-2535.

[7] Meade C, Jeanloz R. The strength of mantle silicates at high pressures and room temperature: Implications for the viscosity of the mantle [J]. Nature, 1990, 348(6301): 533-535.

[8] Jing Q M, Bi Y, Wu Q, et al. The yield strength of molybdenum at high pressures [J]. Rev Sci Instrum, 2007, 78(7): 073906-1-5.

[9] Jing Q M. Experimental study on the yield strength of typical metal at high hydrostatic pressures [D]. Mianyang: China Academy of Engineering Physics, 2007: 23-25. (in Chinese)
敬秋民. 典型金属材料屈服强度的静高压实验研究 [D]. 绵阳:中国工程物理研究院, 2007: 23-25.

[10] Hemley R J, Mao H K, Shen G, et al. X-ray imaging of stress and strain of diamond, iron, and tungsten at megabar pressures [J]. Science, 1997, 276(5316): 1242-1244.

[11] Merkel S, Hemley R J, Mao H K, et al. Finite-element modeling of a diamond deformation at multimegabar pressures [J]. Appl Phys Lett, 1999, 74(5): 656-658.

[12] Crowhurst J C, Darnell I M, Goncharov A F, et al. Determination of the coefficient of friction between metal and di-

amond under high hydrostatic pressure [J]. Appl Phys Lett, 2004, 85(22): 5188-5190.

[13] Moss W C, Halquist J O, Reichlin R, et al. Finite element analysis of the diamond anvil cell: Achieving 4.6 Mbar [J]. Appl Phys Lett, 1986, 48(19): 1258-1260.

[14] Moss W C, Goettel K A. The stability of a sample in a diamond anvil cell [J]. J Appl Phys, 1987, 61(11): 4951-4954.

[15] Moss W C, Goettel K A. Finite element design of diamond anvils [J]. Appl Phys Lett, 1987, 50(1): 25-27.

[16] Xu J A, Mao H K, Bell P M. The pressure calibration up to Mbars and the achievement of 5.5 Mbars under hydrostatic and nonhydrostatic condition [J]. Acta Phys Sin, 1987, 36(4): 500-512. (in Chinese)
徐济安, 毛河光, Bell P M. 百万大气压下的压强校准及 5.5 Mbar 静压强的获得 [J]. 物理学报, 1987, 36(4): 500-512.

[17] Kondrat'yev A I, Vohra Y K. Finite-element modeling of stresses and strains in a diamond anvil cell device: case of a diamond coated rhenium gasket [J]. High Pressure Res, 2007, 27(3): 321-331.

[18] Kieder B, Duffy T S. Finite element simulations of the laser-heated diamond-anvil cell [J]. J Appl Phys, 2005, 97: 114902(1)-114902(9).

[19] Dewaele A, Torrent M, Loubeyre P, et al. Compression curves of transition metals in the Mbar range: Experiments and projector augmented-wave calculations [J]. Phys Rev B, 2008, 78(10): 104102.

[20] Duffy T S, Shen G, Shu J, et al. Elasticity, shear strength, and equation of state of molybdenum and gold from X-ray diffraction under non-hydrostatic compression to 24 GPa [J]. J Appl Phys, 1999, 86(12): 6729-6736.

[21] Novikov N V, Polotnyak S B, Shvedov L K, et al. Regularities of phase transformations and plastic straining of materials in compression and shear on diamond: Experiments and theory [J]. J Superhard Mater, 1999, 21(4): 36-48.

Experimental Study and Numerical Simulation on Deformation of Diamond and Sample under DAC Loading

JING Qiu-Min, WU Qiang, BI Yan, YU Ji-Dong, XU Ji-An

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

Abstract: The compression experiment of molybdenum foil combined with finite element modeling calculation reveals the history of elastic deformation of diamond and elastic-plastic deformation of sample in the pressure gradient method used for measurement of yield strength at high pressures. The influence from elastic compression and cupping of diamond on the *in situ* thickness measurement and pressure profiles of molybdenum foil is analyzed. The results show that the elastic compression of diamond is very small and reasonable to ignore at least below 31 GPa which is the highest experimental pressure. The cupping of diamond is somewhat notable. But the agreement of pressure profiles and their pressure gradients between calculation and experiment indicate no evident change due to the influence of cupping of diamond below 31 GPa. The cupping finally leads to the contact of corners of culets at 60 GPa. The proposals of experimental design are also given to reduce the influence from cupping deformation of diamond at high pressure.

Key words: yield strength; finite element modeling; elastic compression; cupping