文章编号：1000-5773(2013)04-0517-06

用于原位中子散射的液压对顶砧系统*

惠 博[1]，贺端威[1]，陆裕平[1]，陈喜平[2]，张 莹[2]，孙光爱[2]，陈 波[2]

(1. 四川大学原子与分子物理研究所，四川成都 610065；
2. 中国工程物理研究院核物理与化学研究所，四川绵阳 621900)

摘要：介绍了一套自主研制的用于高压原位中子衍射测量的液压对顶砧系统(HAL-11)。该系统由内压砧、液压加载系统以及对光系统 3 部分组成。内压腔能兼容不同尺寸以及不同材质的压砧，如碳化钨、蓝宝石、碳化硅、烧结聚晶金刚石等。液压加载系统通过分离式薄型液压千斤顶可提供高达 500 kN 的加载力，在原位中子散射实验中实时补充由于封垫及样品流变导致的压力下降。对顶砧系统悬挂在四维悬挂式移动平台上，通过两束激光进行对光准直操作，整个系统容易拆卸和组装。使用碳化钨压砧对系统进行压力标定，结果显示，在外加载力为 150 kN 时，HAL-11 系统的样品腔体压力能够达到 12 GPa 以上。

关键词：液压；对顶砧；原位中子散射；高压设备
中图分类号：O521.3 **文献标识码**：A

1 引 言

在过去的 50 年，对顶砧系统已经成为最普遍的用于固、液、气相样品[1-2]产生静高压的实验装置。作为典型的对顶砧系统，金刚石压砧(Diamond Anvil Cell，DAC)被广泛用于产生上百个吉帕的压力[2-4]。为了获得凝聚态物质在高压下的结构信息，原位观测是必不可少的。高压原位观测一般采用两种技术：同步辐射技术与中子散射技术。在太帕范围内，DAC 结合同步辐射技术已经成为科研工作者一个有力的研究工具[5-8]。DAC 原位同步辐射技术的成功使人们期待利用高压对顶砧系统联合中子散射技术[9-11]能够获得更多的材料信息[12-16]以及满足一些特殊要求，如磁性等[17-18]。然而，高压对顶砧系统与中子散射技术的联合存在如下两个难点：其一，高压原位中子散射实验需要较大的样品，样品尺寸大于 1 mm[19]；其二，高压原位中子散射实验相对于原位同步辐射实验需要更长的时间采集信号和收集数据(数小时或更长)[19]，如果不能实时补压，将不可避免地导致高压样品腔内因样品及封垫流变产生的压力下降。鉴于此，本文介绍一套自主研制的用于高压原位中子衍射的液压对顶砧系统——HAL-11。采用一种特殊的腔体组装，对该系统进行离线压力标定。

2 液压对顶砧系统设计与组装

HAL-11 液压对顶砧系统由 3 部分组成：内压腔、液压加载系统以及对光系统。

2.1 内压腔

内压腔采用全景式压腔，以提供更大的衍射角[20-21]，主要由压腔主体和压砧两部分构成，如图 1 所

* **收稿日期**：2012-03-01；**修回日期**：2012-04-27
基金项目：国家自然科学基金(11027405)；国家自然科学基金委-中国工程物理研究院 NSAF 联合基金(10976018)；四川大学基础研究科研项目(2010SCU21023)
作者简介：惠 博(1987－)，男，硕士研究生，主要从事高压科学与技术研究. E-mail：huibofenger@yahoo.com.cn
通讯作者：陆裕平(1967－)，男，博士，副教授，主要从事高压科学与技术研究. E-mail：yupinglu@scu.edu.cn

示。内压腔主体高 98 mm，直径为 84 mm，由上、下两部分组成。这两部分均由热处理后的高强度不锈钢加工而成，两个压砧分别位于其中心。内压腔上、下两部分由细纹紧固螺丝固定，并进行预加载。为了最大程度地使更多中子束通过，内压腔主体中部两侧分别开有两个窗口。从样品所在的视图方向上看，窗口在水平方向（左右开角）和垂直方向（上下开角）的覆盖角度分别为 60°和 135°。在内压腔的顶面与底面中心位置分别开有两个直径为 11 mm 的圆孔，以便进行轴向中子散射实验。上、下两个压砧分别由侧边 4 个定位螺丝对中，并固定在主体的中心位置。

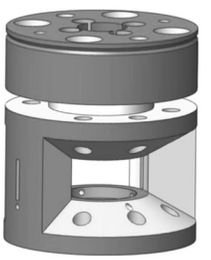


图 1(a) 内压腔结构示意图

Fig. 1(a) Schematic diagram of inner anvil cell

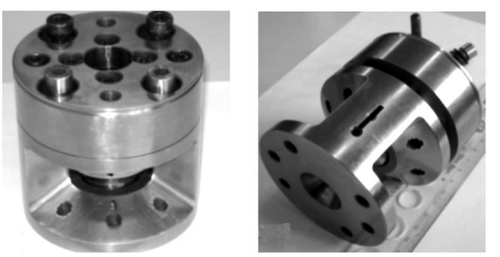


图 1(b) 内压腔实物图

Fig. 1(b) Physical pictures of inner anvil cell

该内压腔被设计成能够兼容不同尺寸和不同材料的压腔，如碳化钨（WC）、蓝宝石、碳化硅（SiC）以及烧结聚晶金刚石，以适应不同的实验环境（如蓝宝石、SiC 为非磁性非导电性陶瓷压砧，SiC 对 0.4～5.5 mm 光谱而言是良好的探测窗口[20]）和实验要求（如导电性、磁性以及可见光观测等）。可更换压砧的另一个优点是降低实验成本。当实验仅需要 10 GPa 以内的压力时，完全可以用 WC 压砧代替较为昂贵的蓝宝石及 SiC 压砧。

2.2 液压加载系统

液压加载系统由外加载主体和压力控制单元组成，如图 2 所示。外加载主体是一个中空长方体（440 mm×380 mm×100 mm），并且为了最大程度地通过中子束，在水平方向也开有与内压腔一致的 135°散射窗口。分离式薄型液压千斤顶放置在外加载主体底部，由卡套固定并对中。在千斤顶的台面置有一个自对中调节垫片，使内压腔保持水平，避免压力分布不均造成的损坏。

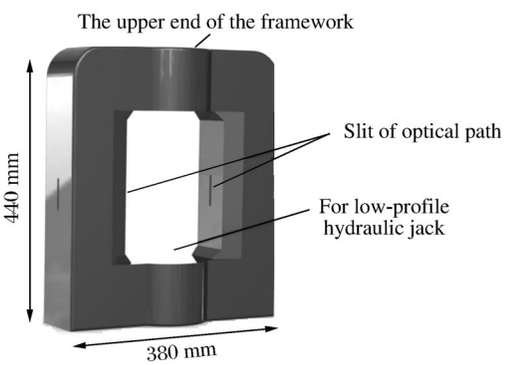


图 2 外加载主体结构图

Fig. 2 Schematic diagram of external loading framework

与 DAC 不同的是，该加载系统不是采用机械加载方式进行加压，而是通过薄型液压千斤顶和手动液压泵进行加压，最大可提供 500 kN 的油压加载力。手动液压泵通过高压胶管与直接提供加载的薄型千斤顶相连，使系统不仅可以在中子衍射平台外部进行远程控制，而且还可以在实验过程中实时补偿由于封垫和样品流变产生的压力下降。液压加载系统的油压通过压力范围为 0～100 MPa、精度为 0.5%的数显压力表进行实时显示。为了适应原位中子散射长时间（数小时以上）数据收集的实验要求，通过锁定阀和快速接口同时进行压力保持。由于该液压加载系统用手动液压泵代替机械加载，并且通过数显压力表实时监测加载油压情况，因此可以实现平滑的压力加载与卸载操作。

2.3 对光系统

对光系统由四维悬挂式移动平台和光路准直单元组成。

四维悬挂式移动平台可进行三维移动和旋转（x，y，z，ω）操作。四维悬挂式移动平台是基于以下考

虑进行设计的:(1) 应容易拆卸与组装;(2) 应方便旋转操作,以便能够采集各个方向上的样品衍射信号;(3) 能够在载重 3 kN 的条件下在 x-y 方向移动 200 mm、在 z 方向移动 400 mm,以方便放置内压腔;(4) 能够使外加载主体在轴向(ω)上旋转 360°;(5) 能够实现无级调节,以达到高定位精度;(6) 移动平台应置于中子散射范围外,以避免遮挡衍射,从而实现最大程度的信号探测。四维悬挂式移动平台的整体结构如图 3 所示。通过调节 x-y 向的手轮,使样品在 x、y 方向上移动定位。在 z 方向上有一个独特的开关设计。将开关置于上圆盘时,样品仅能沿着 z 轴上、下移动而不能旋转;将开关置于下圆盘时,样品仅能进行旋转而不能上、下运动。这一功能有效避免了移动与旋转动作的相互干扰,使光路准直与衍射角度调节独立,便于进行对光操作和特定角度的旋转。

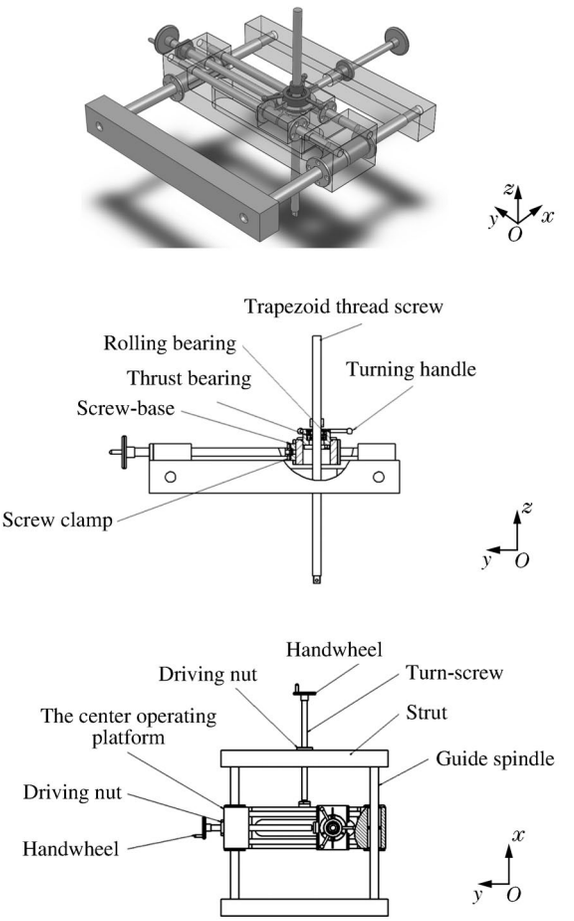


图 3　四维悬挂式移动平台示意图

Fig. 3　Schematic diagram of four dimensional pensile-type translational stage

对顶砧系统(内压腔与外加载主体)悬挂在四维悬挂式移动平台末端,并由两束激光进行准直对光。两束激光固定在衍射平台上,分别进行对顶砧系统的前、后与左、右定位。然而,样品中心会在加载压缩过程中略有移动[12],因此,对顶砧系统在装配时需要进行初始位置标定。

对光系统按照如下方式进行准直操作:首先,使用中子束在底片上曝光出一个圆点,利用激光束中心寻找此圆点,并与之重合;然后,用激光束代替不可见的中子束;最后,采用四维悬挂式移动平台调节样品中心与激光束重合。上述调节定位步骤是为了保证样品中心与衍射信号中心重合。准直对光过程如图 4 所示。该对光系统还配备了一个无线视频传输模块,可以将整个准直对光过程以及样品中心的移动实时显示在液晶显示器上,以便实时监控。

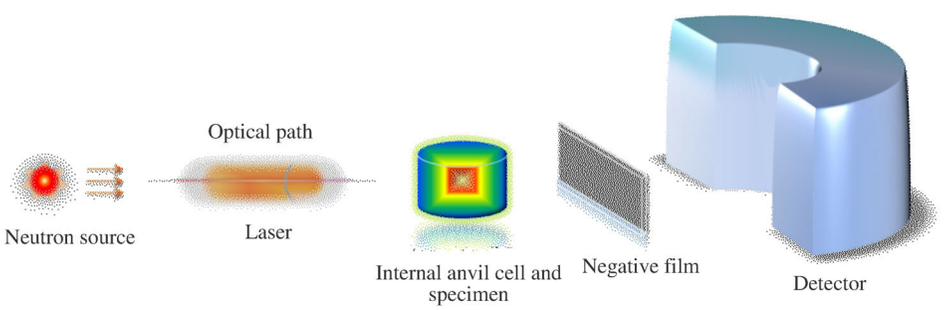


图 4　准直对光过程

Fig. 4　Process of alignment of optical path

3　样品腔组装及压力标定

压力标定实验采用 WC 压砧,以 Bi 和 ZnTe 作为压标物质。这里设计并采用了一套独特的样品腔

组装，如图 5、图 6 所示。具体的压力标定过程如下：首先，用绝缘纸将上、下两个顶砧从内压腔主体孤立出来；然后，将导线从 WC 压砧侧边引出，并使用聚四氟乙烯(PTFE)将其与压砧的 4 个定位螺丝隔离绝缘；在两个压砧的底部，使用厚度为 2 mm 的铜片作为压砧缓冲垫片，以防止因压力过大而导致绝缘纸被压穿。

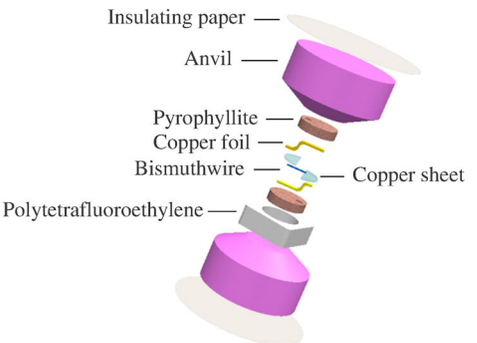


图 5 用 Bi 进行压力标定时的腔体组装

Fig. 5 Cell assembly calibrated with Bi

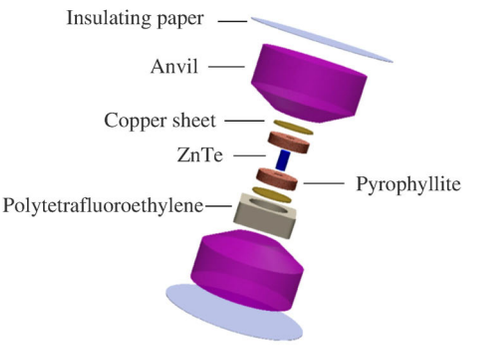


图 6 用 ZnTe 进行压力标定时的腔体组装

Fig. 6 Cell assembly calibrated with ZnTe

使用 Bi 的Ⅱ－Ⅲ、Ⅲ－Ⅳ相转变点(2.7 GPa、7.7 GPa)[22]以及 ZnTe 在Ⅲ－Ⅳ半导体到导体转变点(12.6 GPa)[23]，进行常温压力标定。图 7 给出了压力标定结果。由图 7 可知，当外加载 150 kN 时，腔体内压力达到 12 GPa 以上。然而，这并不意味着 12 GPa 是该系统的极限压力，因为 12 GPa 时系统未出现任何样品被挤出或压砧破裂的现象。若要获得更高的压力，需使用硬度更高的压砧，如蓝宝石、SiC。

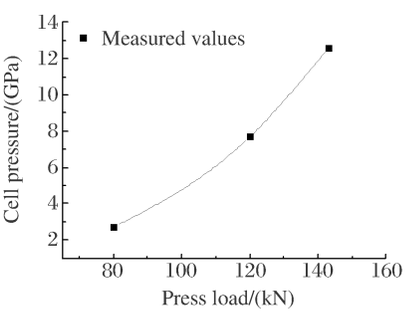


图 7 外加载力-腔体压力曲线

Fig. 7 Relation between press load and cell pressure

4 结 论

介绍了一套自主研制的用于高压原位中子衍射的液压对顶砧系统(HAL-11)。该系统能够兼容不同尺寸与材料的压砧，如 WC、蓝宝石、SiC 以及烧结聚晶金刚石等，不仅拆卸和组装方便，而且很容易旋转到任意角度，以探测和收集各个方向的衍射信号。系统配备的液压加载系统能够提供最高达 500 kN 的加载力，并且在实验过程中可以实时远程补偿由于样品及封垫流变所引起的压力下降。使用 WC 压砧，对该系统进行了离线压力标定。结果显示，当加载力为 150 kN 时，样品腔体压力能够达到 12 GPa 以上。HAL-11 系统也可以用于其它原位高压测量，如热学、电学、超声、可见光、拉曼以及红外光谱等。

References:

[1] Bassett W. Diamond anvil cell, 50th birthday [J]. High Pressure Res, 2009, 29(2): 163-186.

[2] Eremets M. High Pressure Experimental Methods [M]. Oxford, USA: Oxford University Press, 1996: 35.

[3] Xu J A, Mao H K, Bell P M. High-pressure ruby and diamond fluorescence: Observations at 0.21 to 0.55 terapascal [J]. Science, 1986, 232(4756): 1404-1409.

[4] Mao H K, Bell P M. High-pressure physics: Sustained static generation of 1.36 to 1.72 megabars [J]. Science, 1978, 200(4346): 1145-1147.

[5] Andrault D, Fiquet G, Kunz M, et al. The orthorhombic structure of iron: An *in situ* study at high-temperature and high-pressure [J]. Science, 1997, 278(5339): 831-834.
[6] Rosner H, Koudela D, Schwarz U, et al. Magneto-elastic lattice collapse in YCo_5 [J]. Nat Phys, 2006, 2: 469-472.
[7] Isshiki M, Irifune T, Hirose K, et al. Stability of magnesite and its high-pressure form in the lowermost mantle [J]. Nature, 2004, 427(6969): 60-63.
[8] Li L, Weidner D J. Effect of phase transitions on compressional-wave velocities in the Earth's mantle [J]. Nature, 2008, 454(7207): 984-986.
[9] Besson J M, Nelmes R J, Hamel G, et al. Neutron powder diffraction above 10 GPa [J]. Phys B, 1992, 180: 907-910.
[10] Goncharenko I N. Neutron diffraction experiments in diamond and sapphire anvil cells [J]. High Pressure Res, 2004, 24(1): 193-204.
[11] Besedin S P, Makarenko I N, Stishov S M, et al. Diamond anvil cells for neutron diffraction [J]. High Pressure Res, 1995, 14: 193-197.
[12] He D, Zhao Y, Daemen L L, et al. Thermoelastic and texture behavior of aluminum at high pressure and high temperature investigated by *in situ* neutron diffraction [J]. J Appl Phys, 2004, 95(9): 4645-4650.
[13] Eggert J H, Weck G, Loubeyre P, et al. Quantitative structure factor and density measurements of high-pressure fluids in diamond anvil cells by X-ray diffraction: Argon and water [J]. Phys Rev B, 2002, 65(17): 174105.
[14] Goncharenko I, Loubeyre P. Neutron and X-ray diffraction study of the broken symmetry phase transition in solid deuterium [J]. Nature, 2005, 435(7046): 1206-1209.
[15] Ahsbahs H. Diamond-anvil high-pressure cell for improved single-crystal X-ray diffraction measurements [J]. Rev Sci Instrum, 1984, 55(1): 99-102.
[16] Glazkov V P, Goncharenko I N, Irodova V A, et al. Neutron diffraction study of molecular deuterium equation of state at high pressures [J]. Z Phys Chem, 1989, 163: 509-514.
[17] Hannan A, Osakabe T, Kohgi M, et al. High-pressure magnetic phase diagram of CeP studied by neutron diffraction [J]. Appl Phys A, 2002, 74(Supplement): 565-567.
[18] Yuan H Q, Grosche F M, Deppe M, et al. Observation of two distinct superconducting phases in $CeCu_2Si_2$ [J]. Science, 2003, 302(5653): 2104-2107.
[19] Utsumi W, Kagi H, Komatsu K, et al. Neutron powder diffraction under high pressure at J-PARC [J]. Nucl Instrum Meth A, 2009, 600(1): 50-52.
[20] Xu J, Mao H. Moissanite: A window for high-pressure experiments [J]. Science, 2000, 290(5492): 783-785.
[21] Xu J, Mao H, Hemley R J, et al. The moissanite anvil cell: A new tool for high-pressure research [J]. J Phys Condens Matter, 2002, 14(44): 11543.
[22] Cannon J F. Behavior of the elements at high pressures [J]. J Phys Chem Ref Data, 1974, 3(3): 781-824.
[23] Merrill L. Behavior of the AB-type compounds at high pressures and high temperatures [J]. J Phys Chem Ref Data, 1977, 6(4): 1205-1252.

A Hydraulic Opposite Anvil System for High-Pressure *in-Situ* Neutron Diffraction

HUI Bo[1], HE Duan-Wei[1], LU Yu-Ping[1], CHEN Xi-Ping[2], ZHANG Ying[2], SUN Guang-Ai[2], CHEN Bo[2]

(1. *Institute of Atomic and Molecular Physics, Sichuan University, Chengdu* 610065, *China*;
2. *Institute of Nuclear Physics and Chemistry, CAEP, Mianyang* 621900, *China*)

Abstract: A hydraulic opposite anvil system (HAL-11) consisting of an inner anvil cell, a hydraulic

loading system, and an alignment system, is developed for high pressure *in-situ* neutron diffraction. The inner anvil cell can be compatible with various anvils with different culet sizes and materials, such as WC, sapphire, SiC, and sintered polycrystalline diamond. A maximum load up to 500 kN can be provided by the hydraulic loading system through a hydraulic jack with hand pump, and the pressure decline caused by the rheology of gasket and specimen can be compensated during the high pressure *in-situ* neutron diffraction experiments. The opposite anvil system attached on a four dimensional pensile-type translational stage is aligned by means of two lasers, and the entire system can be easily assembled and distributed. The pressure calibration results show that the sample pressure is above 12 GPa with WC anvils at a loading force of about 150 kN.

Key words: hydraulic; opposite anvil; *in-situ* neutron diffraction; high pressure apparatus