

应用于高压科学研究的国产铰链式 六面顶压机技术发展历程*

彭 放, 贺端威

(四川大学原子与分子物理研究所, 四川 成都 610065)

摘要: 国产铰链式六面顶压机是我国独立发展起来的大腔体高压装置, 经过 50 多年的不断发展, 在工业高压合成和高压科学研究领域取得了丰硕成果, 在国际上占据一席之地。本文仅以四川大学高压科学与技术实验室在国产铰链式六面顶压机应用于高压科学研究的技术研发为镜, 展示国产铰链式六面顶压机大腔体高压装置在应用于高压科学研究领域的发展历程和技术特点, 以利于该装置在今后的研发过程中继续保持和发挥其独特性能, 为我国工业高压合成和高压科学研究发挥更大的作用。

关键词: 六面顶压机; 高压科学与技术; 大腔体压机; 超硬材料

中图分类号: O521.3 **文献标识码:** A

随着近十几年国际高压技术的快速发展, 高压科学、超硬材料及其相关领域取得了一系列突破。就大腔体静高压技术而言, 受 WC 硬质合金材料强度的限制, 长期以来二级大腔体静高压装置中压腔所能产生的压力都在 30 GPa 以下^[1-2]。采用烧结多晶金刚石作为多级增压的末级压砧材料所能达到的最高压力一般不超过 100 GPa^[3]。2004 年, 日本爱媛大学地球动力学研究中心的 Irifune 等^[4-8]利用 6 000 t 两面顶压机集成的多级压腔装置合成出尺寸超过 10 mm、性能优异的纳米多晶金刚石。2010 年, Kunimoto 等^[2]利用所合成的纳米多晶金刚石作为多级增压的末级压砧, 结合同步辐射原位 X 射线衍射(XRD)技术标定出腔体压力达到 125 GPa, 温度达到 1 100 K^[1]。2015 年, Dubrovinsky 等^[9]在金刚石压砧小腔体压机装置中, 用纳米多晶金刚石作为二级压砧, 使腔体内的静压力达到 750 GPa。一直以来, 我国的高压技术, 特别是大腔体压机高压技术与国外存在较大的差距。国内科研院所使用的一级大腔体压机基本采用国产六面顶压机, 配备 WC 一级顶锤, 在压力低于 5.5 GPa、温度低于 1 800 K 的温压区开展实验研究, 与国内工业合成所用的六面顶压机性能差别不大。而国产六面顶压机二级大腔体静高压装置一直到 2007 年之前都是空白。国内各科研院所, 包括吉林大学超硬材料国家重点实验室、燕山大学亚稳相材料制备技术与科学国家重点实验室、中国科学院物理所、中国地质大学(武汉)等使用的二级大腔体高压装置均为国外进口装置。国外装置存在价格昂贵, 易损件、配套器件和高压腔组装件均需进口, 运行成本高等问题。近年来, 随着我国经济实力的不断增强、科学技术的快速发展以及工业基础制造技术的不断进步, 我国已经可以研发具有自主知识产权的高压装置, 并具有赶超世界先进水平的能力。四川大学原子与分子物理研究所一直致力于国产六面顶压机高压技术研发, 对国产六面顶压机一级大腔体高压技术进行不断改进, 并于 2007 年开始组建专门的研究团队进行国产六面顶压机二级大腔体静高压装置研发^[10]。经过十年的不断努力, 取得了预期成果, 形成了较完整的国产六面顶压机二级

* 收稿日期: 2017-06-26; 修回日期: 2017-09-26

作者简介: 彭 放(1960—), 男, 博士, 教授, 博士生导师, 主要从事高压科学与凝聚态物理研究。

E-mail: pengfang@scu.edu.cn

通信作者: 贺端威(1969—), 男, 博士, 教授, 博士生导师, 主要从事高压物理、超硬材料、大腔体静高压技术研究。

E-mail: duanweihe@scu.edu.cn

大腔体静高压装置技术体系。为了总结国产铰链式六面顶压机技术的发展历程,更好地发展我国六面顶压机大腔体高压技术,本文仅以四川大学高压科学与技术实验室用于高压科学研究的国产铰链式六面顶压机的技术发展过程管窥国产铰链式六面顶压机技术升级历程和现状。

1 研发历程

多年来,我国大腔体静高压装置主要是国产六面顶压机,其发展主要沿两条技术路线。一是不断增大六面顶压机缸径,增大合成腔体体积,提高合成金刚石及立方氮化硼的生产效率,使其更适于超硬材料的工业化发展。众所周知,经过几十年的发展,国产六面顶压机取得了丰硕的成果,已经成为国内甚至国外的主流超硬材料生产设备,金刚石年产量达到 200 亿克拉^[1]。二是拓展国产六面顶压机的用途,提高装置的自动化程度,提升高压腔的压力和温度,提高压力和温度的控制精度,实现长时间、高精度保温和保压以及稳定的慢升/降压程序,使其更适于开展高压科学、地球科学、材料科学等学科的研究工作。四川大学高压科学与技术实验室正是在这条道路上进行长期不懈的努力,并取得了丰硕的成果。

20 世纪 80 年代,我国六面顶压机技术装备水平还非常低,主要表现在:(1)压机自动化程度低,压机缸径小,压机系统提供的总压力小(大多数低于 10 MN);(2)合成腔体小(直径基本小于 20 mm,通常在 14~18 mm 范围);(3)液压增压系统落后,主要采用 $n:1$ ($7 \leq n \leq 10$) 的单行程增压器和往复式增压器提供 100 MPa 左右的高压液压力(由于单行程增压器的超程限制,无法为压机提供长时间保压;而往复式增压器虽然克服了单行程增压器不能维持压机长时间保压的限制,但是活塞需要不断换向,在整个压力加载过程中压力的波动较大);(4)加热系统多采用手动控制调压器进行温度控制,整个控制系统靠手动、接触器和继电器实现。这样的装备与当时国外两面顶大腔体压机相比存在很大的差距,无论在工业合成还是科学研究中都严重影响我国超硬材料和高压科学的发展。

四川大学原子与分子物理研究所在 20 世纪 80 年代拥有两台六面顶压机:一台采用往复式增压器的 6×6 MN 六面顶压机、一台采用单行程增压器的 6×8 MN 六面顶压机。这两种类型压机代表了当时国产六面顶压机的主流技术水平。在使用此类型六面顶压机时,发现所产生的压力低,压力波动大,温度和压力控制精度差,不能长时间保压,另外在传压介质及高压密封材料方面也存在着很多问题。这种压机不适合高温高压实验研究,必须对其进行技术改造。基于这一认识,我们将六面顶压机技术改造作为主要研究任务之一。借助改革开放的春风,1987—1997 年在苟清泉教授的带领下,四川大学高压与超硬材料合成研究团队的丁立业、罗湘捷、洪时明等与日本筑波大学物质工学系的若槻雅男教授(Masao Wakatsuki,1962 年 5 月在日本东芝公司合成出日本第一批人造金刚石)及其团队进行长期科研合作和学术交流(见图 1)。

日本方面根据当时我国六面顶压机存在的诸如不能长时间保压和控压精度不高等问题,提供了一台小注入量的超高压油泵及相应的自动控制系统,配装于国产六面顶压机(DS 6×800A 型)上。这一改进大大提高了国产六面顶压机原来靠指针接触式补压控制系统的补压精度,并且在原油路密闭较好、泄漏较少的情况下实现了长时间保压,使国产六面顶压机性能有了明显的提升。此外,双方合作开展了一系列研究,例如:硬质合金顶锤小斜边倒角(41° 和 45°)对高压腔密封性能和压力传递性能的影响,利用不同碳源合成金刚石,采用温度梯度法和过剩压法生长金刚石大单晶,南非叶蜡石、NaCl、MgO、ZrO₂、滑石及其混合传压介质的传压性能等。这些合作研究取得了丰硕的成果,若槻雅男教授因在中日



图 1 苟清泉(前排中间)、洪时明(后排右一)和若槻雅男(前排右一)

Fig. 1 Gou Qingquan (seated at the center), Hong Shiming (standing, first from the right), and Masao Wakatsuki (seated, first from the right) and their research team

高压技术和超硬材料合成领域做出的突出贡献,获得了 1996 年国务院颁发的“友谊奖”(国家“友谊奖”是我国政府为表彰在中国现代化建设和改革开放事业中做出贡献的外国专家而设立的最高奖项)。

考虑到知识产权和技术局限性等因素,日本提出的六面顶压机改进方案不适合在我国广泛推广。为此,在积累了丰富的国产六面顶压机技术改造经验的基础上,利用高压泵、可控硅技术结合计算机自动控制技术,进一步对六面顶压机压力和温度的全自动、高精度控制进行了研究。1999 年四川大学高温高压实验室与郑州磨料磨具磨削研究所合作,开展了“静高压体系压力温度参数测量及稳定技术研究”工作,对中国工程物理研究院流体物理研究所的一台工业用六面顶压机进行技术改造。通过调研和实验摸索,最终利用高压泵、高精度液压传感器结合计算机实现了系统升压、保压、卸压的全自动控制,并能长时间(24 h 以上)保压。将改造后的六面顶压机性能与本实验室经中日合作改造的六面顶压机性能进行对比,结果表明,自主改进的六面顶压机控制系统性能优于日本的技术改进。2002 年,四川大学与郑州磨料磨具磨削研究所合作对本实验室的 6×8 MN 压机进行技术改造,拆除了与原日本合作所用的小高压泵压力控制系统和温度控制系统,采用全新的动态压力控制系统理念(即在压机的整个升压和保压过程中,高压缸中的高压液压油不断地经由溢流阀流进和流出),通过配备国产高压泵和变频技术,实现了高精度全自动压力控制,油压控制精度达到 ± 0.1 MPa,实现了高压腔内利用热电偶进行温度控制和加热功率自动控制两种温度控制模式,使高压腔内温度的控制精度达到 ± 1 $^{\circ}\text{C}$ 。2012 年,四川大学联合郑州磨料磨具磨削研究所和桂林冶金机械总厂(桂林冶金重工业股份公司),基于我国科研院所所使用六面顶大腔体压机的需求,在四川大学开发了一台 6×14 MN 六面顶压机。该压机的油压控制精度达到 ± 0.05 MPa,具有动态和静态两种加压模式,实现了压机砧面位移显示、双电源加热等功能。

21 世纪初,为满足地球科学中的岩石流变研究、材料科学中的应力-应变关系研究等需求,Liebermann^[1]在六面顶压机上开发了 D-DIA 型压机。该装置可以在高压腔体中 x 、 y 、 z 3 个独立加载方向的某一方向单独加压,从而实现三维空间的不对称加压。针对这一功能,我们自 2009 年开始与郑州磨料磨具磨削研究所合作研发,并于 2015 年在国产六面顶压机上实现了该功能,如图 2 所示。这是国产六面顶压机实现在 xy 平面 4 个顶锤的相同压力作用下 z 方向上、下 2 个顶锤独立加压的首次报道,至此国产六面顶压机实现了非对称加压功能。与此同时,国内其他科研单位也在国产六面顶压机上成功地开发出高压原位超声测量等功能。

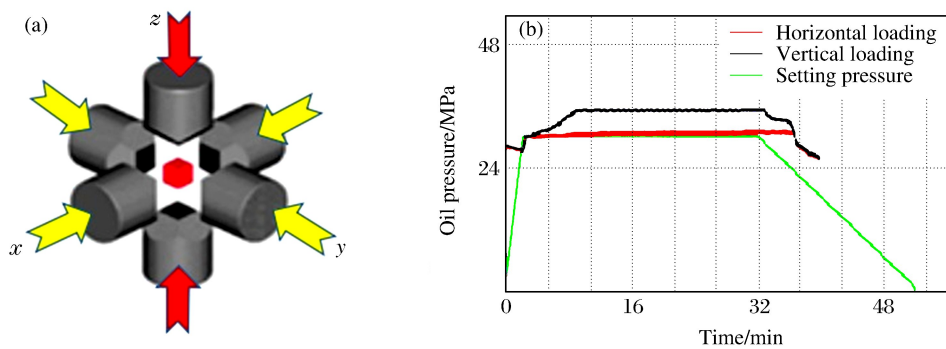


图 2 实现上下独立加压的国产六面顶压机(a)及其顶锤压力变化曲线(b)

Fig. 2 Domestic-made cubic presses implemented the function of independent loading in the vertical direction (a) and oil pressure-time history (b)

通过以上不断的技术改进,国产六面顶压机性能日臻完善。在对六面顶压机进行技术改造的同时,还对高压腔中各种组件的材料性能及组件结构进行了比较系统的研究。先后研究了传压介质的压力传递性能、保温材料的绝热性能、加热材料的压力-温度-电阻特性、屏蔽材料的高温高压稳定性等问题。采用在传压介质中嵌入硬质合金增压块技术,使六面顶压机一级压力达到 9 GPa,温度达到 1700 $^{\circ}\text{C}$ ^[12]。通过不断的探索,形成了一套比较成熟和完善的具有自主知识产权的国产六面顶压机大腔体高压高温技术,该项技术已经向北京大学地球与空间科学院、中国地震局地震预测研究所等科研院所推广,大大

提升了我国六面顶压机性能,使国产六面顶压机技术达到国外相应水平。

2007 年以前,国内在国产大腔体二级增压技术领域仍属空白。国内的科研院所一般从国外购买两面顶压机作为大腔体二级增压加载装置,利用国外二级大腔体静高压技术从事科学研究。这些设备通常很昂贵,且其配件、高压组件和原材料均需进口,供货周期长,不利于国内使用和推广。如何利用国产六面顶压机开发具有自主知识产权、高质量、低成本的二级大腔体高压装置,推动我国高压科学与技术发展,是我们研究的另一个目标。四川大学高压科学与技术实验室的贺端威、彭放、寇自力、雷力从 2007 年开始开展基于国产六面顶压机的二级增压装置研发工作,以期在六面顶大腔体压机上实现 20 GPa 以上的压力,发展具有中国特色的大腔体静高压装置,填补国内空白,缩短该领域与国外越来越大的差距。

国外使用的大腔体二级增压装置(如图 3 所示)大多采用成熟的两面顶压机作为一级压力源,通过压机的滑块式组件将两面顶压腔转换成六面顶压腔,再在其中内置 8 个切角立方块,形成最终的八面体高压腔。这就是通常采用的 2-6-8 型大腔体高压装置,该装置和技术在国外已经比较成熟。

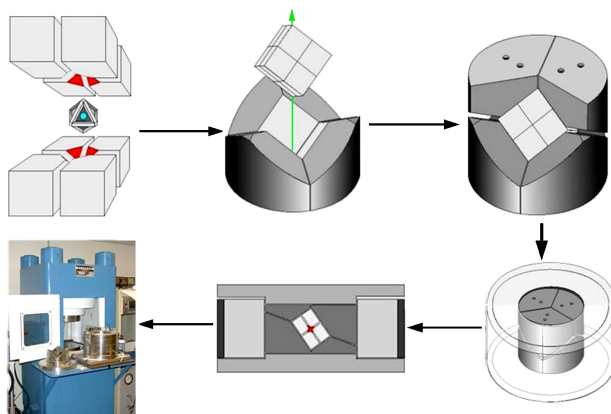


图 3 国外 2-6-8 型增压装置^[13-14]

Fig. 3 Foreign-made pressurized device of 2-6-8 type^[13-14]

国产六面顶压机大腔体二级增压装置如图 4 所示。它以国产六面顶压机为一级压力源,形成六面顶压腔,再在其中内置 8 个切角立方块,组成最终的八面体高压腔,形成 6-8 型大腔体高压装置。与国外 2-6-8 型大腔体高压装置相比,该装置从原理上具有结构简单、效率更高的优势。经过 10 年的不懈努力,本实验室利用硬质合金材料成功地开发出 10/4、12/6、14/8、36/20 等型号的二级增压单元,在国产六面顶压机上实现了 20 GPa、2000 °C 以上的高温高压条件,合成腔体从毫米级发展到厘米级,实现了从硬质合金增压块到整个高压腔组件的完全国产化,总体使用成本不到同类进口装置的 1/3。

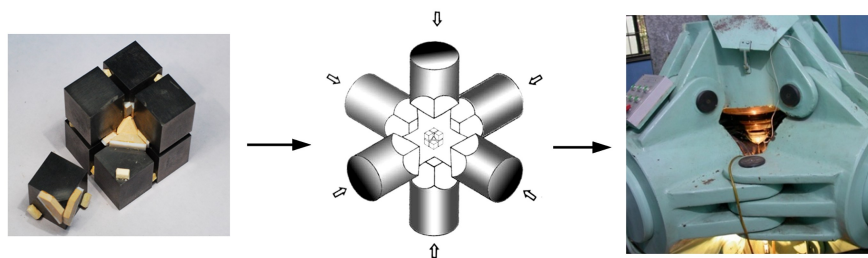


图 4 国产六面顶压机 6-8 型增压装置

Fig. 4 Domestic-made pressurized device of 6-8 type cubic presses

实践证明,国产六面顶压机不仅在一级大腔体装置性能上赶超两面顶压机,而且在集成二级大腔体高压装置方面也达到了两面顶压机水平。可以预见,在大吨位、大合成腔体和高合成效率等发展趋势

上,国产六面顶压机将显示出更大的优势。

此外,我们还在二级大腔体高压装置上进行了压力拓展方面的尝试:采用烧结金刚石作为二级增压单元,开展六面顶压机二级大腔体高压装置研究。近年来,在不断完善国产六面顶压机二级增压大腔体高压装置的基础上,利用该技术获得了一系列科研成果。2013 年,在自行研发的六面顶压机二级增压装置上成功合成出我国首批纳米多晶金刚石块体材料^[15];2013 年在国产六面顶压机上利用二级增压单元和烧结金刚石获得了 35 GPa 的高压^[16],创造了国产六面顶压机的最高压力;2013 年合成出纯相亚微米多晶立方氮化硼块体材料^[17];2015 年合成出金刚石-立方氮化硼超硬固溶体合金^[18],对 B_6O 、 BC_4N 以及过渡金属硼化物、氮化物等材料的合成、烧结和表征做出创造性研究成果。并在《Proceedings of the National Academy of Sciences》《Advanced Materials》《Physical Review B》《Applied Physics Letters》《Journal of Applied Physics》《Diamond and Related Materials》等国际高水平期刊上发表 100 多篇论文。

2 展 望

国产六面顶压机经历了 50 多年的发展,作为多面顶大腔体压机在国际上独树一帜,无论是在我国超硬材料行业还是高压科学研究领域都发挥着重要作用。如图 5 所示,随着工业高压合成条件从传统的 5 GPa、1 500 °C 区域向 20 GPa、2 000 °C 区域发展以及国外大腔体压机实现百万大气压水平,国产六面顶压机面临新的挑战。预计国产六面顶压机的未来发展方向是:在 20 GPa、2 000 °C 新的温压区域内将高精度温压控制与工业化设备相结合,实现大腔体、高合成压力及合成温度、高效率、高精度温压控制的新型六面顶压机。为此,实现 20 GPa、2 000 °C 以上的厘米级合成条件将是我们今后在高温高压技术研发方面的思路和努力方向。相信依靠六面顶压机自身的优势和我们的不断努力,国产六面顶大腔体压机技术将不断创新并在国际大腔体高压技术领域崭露头角。

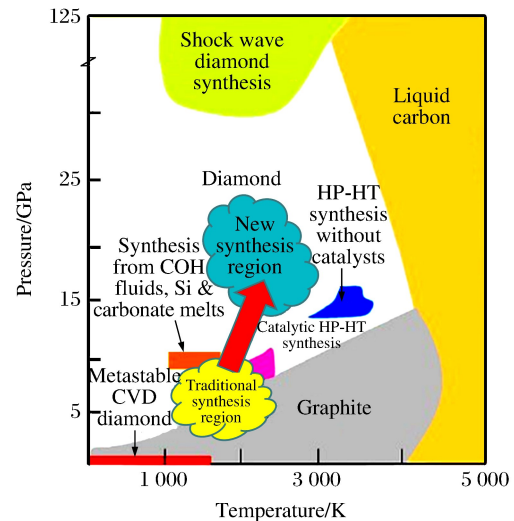


图 5 工业高温高压合成区域发展示意

Fig. 5 Pressure-temperature diagram of industrial synthesis

参考文献:

- [1] LIEBERMANN R C. Multi-anvil, high pressure apparatus: a half-century of development and progress [J]. High Pressure Research, 2011, 31(4): 493-532.
- [2] KUNIMOTO T, IRIFUNE T. Pressure generation to 125 GPa using a 6-8-2 type multi-anvil apparatus with nanopolycrystalline diamond anvils [C]//Journal of Physics: Conference Series. IOP Publishing, 2010, 215(1): 012190.
- [3] KUNIMOTO T, IRIFUNE T, SUMIYA H. Pressure generation in a 6-8-2 type multi-anvil system; a performance test for third-stage anvils with various diamonds [J]. High Pressure Research, 2008, 28(3): 237-244.
- [4] SUMIYA H, IRIFUNE T. Indentation hardness of nano-polycrystalline diamond prepared from graphite by direct conversion [J]. Diamond and Related Materials, 2004, 13(10): 1771-1776.
- [5] SUMIYA H, HARANO K, IRIFUNE T. Ultrahard diamond indenter prepared from nanopolycrystalline diamond [J]. Review of Scientific Instruments, 2008, 79(5): 056102.
- [6] 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.
- [7] LE GUILLOU C, BRUNET F, IRIFUNE T, et al. Nanodiamond nucleation below 2 273 K at 15 GPa from carbons with different structural organizations [J]. *Carbon*, 2007, 45(3): 636-648.
- [8] IRIFUNE T, KURIO A, SAKAMOTO S, et al. Formation of pure polycrystalline diamond by direct conversion of graphite at high pressure and high temperature [J]. *Physics of the Earth and Planetary Interiors*, 2004, 143: 593-600.
- [9] DUBROVINSKY L, DUBROVINSKAIA N, BYKOVA E, et al. The most incompressible metal osmium at static pressures above 750 gigapascals [J]. *Nature*, 2015, 525(7568): 226-229.
- [10] 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.
- [11] 方啸虎. 中国超硬材料与制品 50 周年精选论文集 [M]. 杭州: 浙江大学出版社, 2014: 23-31.
- [12] 王海阔. 基于国产六面顶压机增压装置的压力产生极限扩展与应用 [D]. 成都: 四川大学, 2013.
- WANG H K. Development and application of pressure generation techniques based on hinge-type cubic press [D]. Chengdu: Sichuan University, 2013.
- [13] WALKER D, CARPENTER M A, HITCH C M. Some simplifications to multianvil devices for high pressure experiments [J]. *The American Mineralogist*, 1990, 75(9/10): 1020-1028.
- [14] OHTANI E, OKADA Y, KAGAWA N, et al. Development of a new guide-block system and high pressure and temperature generation [C]//Abstract of the 28th High Pressure Conference of Japan. Kobe, 1987: 222-223.
- [15] 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.
- [16] 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.
- [17] LIU G D, KOU Z L, YAN X Z, et al. Submicron cubic boron nitride as hard as diamond [J]. *Applied Physics Letters*, 2015, 106(12): 121901.
- [18] WANG P, HE D W, WANG L P, et al. Diamond-cBN alloy: a universal cutting material [J]. *Applied Physics Letters*, 2015, 107(10): 101901.

Development of Domestic Hinge-Type Cubic Presses Based on High Pressure Scientific Research

PENG Fang, HE Duanwei

(*Institute of Atomic and Molecular Physics, Sichuan University, Chengdu 610065, China*)

Abstract: The China-made hinge-type large volume cubic press is a high-pressure device independently developed in China. After 50 years of continuous development, it has achieved fruitful results in industrial synthesis and high-pressure scientific research and occupied a special place in the world. In this paper, we take the topic of China-made hinge-type large volume cubic press used in high-pressure scientific research at the High Pressure Science and Technology Laboratory of Sichuan University, and demonstrate its development and technical characteristics. The technical performance of the device will be continuously improved in the development process in the future, so that it will play a greater role in China's industrial high-pressure synthesis and high-pressure scientific research.

Keywords: cubic press; high pressure science and technology; large volume press; superhard material