

高压物理学报

金刚石压腔加载下硅油中的压力分布

徐天成 邓袁昊 洪晨 黄海军 徐丰

Pressure Distribution Investigation in Silicon Oil Compressed in Diamond Anvil Cell

XU Tiancheng, DENG Yuanhao, HONG Chen, HUANG Haijun, XU Feng

引用本文:

徐天成, 邓袁昊, 洪晨, 等. 金刚石压腔加载下硅油中的压力分布[J]. 高压物理学报, 2025, 39(3):031101. DOI: 10.11858/gywlb.20240860

XU Tiancheng, DENG Yuanhao, HONG Chen, et al. Pressure Distribution Investigation in Silicon Oil Compressed in Diamond Anvil Cell[J]. *Chinese Journal of High Pressure Physics*, 2025, 39(3):031101. DOI: 10.11858/gywlb.20240860

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.11858/gywlb.20240860>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

非静水压下HMX炸药晶体的高压相变

High Pressure Phase Transition of HMX Crystal under Non-Hydrostatic Pressure

高压物理学报. 2022, 36(3): 030102 <https://doi.org/10.11858/gywlb.20220559>

多晶铌酸钾钠在高压下的声学 and 弹性性质研究

Acoustic and Elastic Properties of Polycrystalline Potassium Sodium Niobate under High Pressures

高压物理学报. 2023, 37(6): 061101 <https://doi.org/10.11858/gywlb.20230660>

大腔体压机腔体压强28 GPa的标定方法

Pressure Calibration Method of 28 GPa for Large-Volume Press

高压物理学报. 2024, 38(3): 030201 <https://doi.org/10.11858/gywlb.20230807>

高温高压条件下聚合物的状态方程和相变

Polymers at High Pressures and High Temperatures: Advances in Equation of State and Phase Transition Investigations

高压物理学报. 2025, (): <https://doi.org/10.11858/gywlb.20240863>

基于同步辐射的强冲击荷载下原位诊断技术及其应用研究进展

Progress on Synchrotron Based *in-Situ* Dynamic X-Ray Diagnostics and Its Applications

高压物理学报. 2023, 37(5): 050104 <https://doi.org/10.11858/gywlb.20230747>

高压下主族金属富氮化合物的结构与含能特性

Structure and Energy Properties of Nitrogen-Rich Compounds of Main Group Metals under High Pressure

高压物理学报. 2024, 38(4): 040101 <https://doi.org/10.11858/gywlb.20230810>

金刚石压腔加载下硅油中的压力分布

徐天成, 邓袁昊, 洪 晨, 黄海军, 徐 丰

(武汉理工大学物理与力学学院, 湖北 武汉 430070)

摘要: 金刚石压腔是被广泛使用的静高压装置之一, 具有压力范围宽, 光学适用性优良以及使用便利等优点, 对高压科学的发展起到了巨大的推动作用。然而, 压力较高时, 传压介质固化等因素可能造成压腔内静水压环境失衡, 从而产生压力梯度。采用皮秒超声技术测量压腔内各处的声学信号, 通过声学数据分析获得了高压下样品腔内硅油的压力分布, 结果显示: 压力梯度随压强的升高而增大, 从 1 GPa 时的 1.3×10^{-4} GPa/ μm 增长为 30 GPa 时的 5.3×10^{-2} GPa/ μm 。该方法不仅克服了以往实验技术在信号测量连续性、样品选择等方面的限制, 还可在普通实验室搭建和使用。此外, 还结合原位拉曼光谱技术, 分析了加压过程中硅油中压力标准差的异常波动, 该波动可能与硅油在经历了玻璃化转变之后发生固-固相变有关。

关键词: 金刚石压腔; 压力梯度; 皮秒超声; 硅油; 相变

中图分类号: O521.2; O521.3

文献标志码: A

历经数十年的发展, 金刚石压腔(diamond anvil cell, DAC)已成为地球科学、行星科学、材料学、凝聚态物理学等领域研究中不可或缺的高压实验装置^[1-2]。DAC 由 2 颗对顶的金刚石和钻有小孔的垫片共同形成密闭的样品腔。压力通过 DAC 外部的机械结构, 以轴向力传递给金刚石, 再通过样品腔以及传压介质传递给样品。传压介质的使用不可或缺, 它能够将压力较为均匀地施加在样品上, 从而提供理想的静水压或准静水压环境。目前, DAC 已能够产生 600 GPa 以上^[3]的实验压力, 压力范围覆盖了多数高压科学研究领域, 如在地球科学中, 最极端的高压约为 360 GPa^[4]。然而, DAC 并非能始终为样品提供静水压环境。压力较高时, 样品腔内部的压力往往具有不均匀性^[5], 且会随着压力的升高变得愈发明显^[6]。造成静水压环境失衡的原因很多: 人为因素包括装配时金刚石的台面不平行, 垫片打孔时四周不对称等; 客观因素包括传压介质在高压下的固化或相变^[7], 样品腔整体在加压过程中的持续变薄^[8], 金刚石砧面的内凹变形^[9]等。红宝石作为最常用的压力标定物质^[10], 通常被布置在样品的周边, 即样品腔边缘附近。高压实验中, 往往将一颗红宝石测得的压力或者多颗红宝石测得的压力的平均值作为样品所受的压力。但是, 压力梯度的存在不可避免地影响压力标定, 且压力越高, 误差越大^[6, 11], 最终影响研究结论^[12-13]。因此, 研究 DAC 加载下样品腔内的压力分布, 对于压力的精确标定具有重要意义。

以往测量 DAC 压腔内压力分布的方法有 2 种: 一种是通过布置若干颗红宝石来测量, 另一种是通过物质的状态方程测量。前者将红宝石颗粒置于压腔内的不同径向位置, 根据其荧光峰的位置得到压力分布^[14]。该方法简单直接, 但在组装过程中, 红宝石的放置具有一定的随机性, 且在填充传压介质时极易将已排布好的红宝石颗粒冲散, 因而难以获得指定方向上连续的压力分布信息。后者是利用 X 射线衍射(X-ray diffraction, XRD)测量受挤压样品的晶胞参数, 结合该物质的状态方程推导压力的分布^[6]。虽然该方法可以较为精确地测量样品腔内指定方向上压力的连续分布, 但要求被测样品为晶体, 且测量时需要同步辐射光源, 研究成本高昂, 在普通实验室无法开展。由于声速与压力息息相关, 因此, 本

* 收稿日期: 2024-07-23; 修回日期: 2024-08-16

基金项目: 国家自然科学基金(41504070, 42274124)

作者简介: 徐天成(2003—), 男, 本科, 主要从事高压实验技术研究. E-mail: 794356848@qq.com

通信作者: 徐 丰(1984—), 男, 博士, 副教授, 主要从事高压物理研究. E-mail: xufeng@whut.edu.cn

研究创新性地提出采用声速测量的方法研究 DAC 样品腔内的压力分布。皮秒超声技术是一种全光学、超短时空分辨的泵浦-探测技术^[15]。该技术利用超短激光脉冲在样品内激发和探测短波长(数十纳米)、高频率(数十至数百吉赫兹)的超声波,其高分辨特性恰好适用于 DAC 内微纳米尺寸样品的声速、弹性、超声成像等研究^[16-21]。本研究利用皮秒超声技术,通过分析声学信号在 DAC 样品腔中的分布获得压力分布信息。该方法克服了以往测量技术的局限性,可以实现:(1)任意指定方向上信号的连续采集;(2)对样品的选择没有限制,可以是晶体或非晶体、透明或不透明、固态或液态等;(3)在普通实验室实现,测试更高效、便捷。

本研究选择较为常见的液态传压介质——硅油作为测试样品。硅油特指一系列聚硅氧烷流体,本研究中使用的硅油是 AldRich 公司的八甲基三硅氧烷,化学式为 $[(CH_3)_3SiO]_2Si(CH_3)_2$ 。在常温常压条件下,其密度为 0.82 g/cm^3 ,黏度为 1.0 cSt 。选择硅油是基于以下几方面的考虑:首先,硅油是被广泛使用的传压介质,相比于常用的液体传压介质——4:1 甲醇混合物,硅油的黏度更高、挥发性更低,更有利于 DAC 中样品的装填;其次,即使在高压下发生相变,硅油依然呈非晶态,故当利用皮秒超声技术测量压力空间分布时,测量结果不受物质本身的声速各向异性及晶体择优取向的影响^[22];另外,硅油在高压下的静水压性能至今仍存在较大争议,其高压相变行为值得进一步探讨。Ragan 等^[23]测得硅油在压力小于 15 GPa 时可以提供与 4:1 甲醇混合物相似的静水压性能。Shen 等^[24]报道了压力大于 20 GPa 时硅油的静水压性能优于 4:1 甲醇混合物。Hsieh 等^[25]通过研究硅油的热传导和弹性性质,揭示了其流体状态可持续至 23 GPa 。与上述观察相反,Klotz 等^[14]和 Murata 等^[26]通过由红宝石获得的压力标准差发现:硅油在 $3\sim 4 \text{ GPa}$ 时会发生玻璃化转变,导致压力梯度增大。最近,Chen 等^[27]利用红宝利用红宝石压标并结合原位 XRD 和拉曼散射方法系统性地对硅油在高压下的相变进行了研究,结果显示:硅油的玻璃化转变发生在压力约 3 GPa 时,但不排除 10 GPa 以上接连发生另外 2 次固-固相变的可能。为了更好地理解硅油的高压相变行为,本研究将结合高压原位拉曼测量对硅油散射信号的演变进行探讨。

1 实验细节及原理

图 1(a) 为皮秒超声实验示意图。掺钛蓝宝石激光器输出波长(λ)为 800 nm 的脉冲激光,脉冲宽度为 140 fs ,重复频率为 80 MHz 。之后,激光被分为泵浦光和探测光。其中,泵浦光被声光调制器调制成

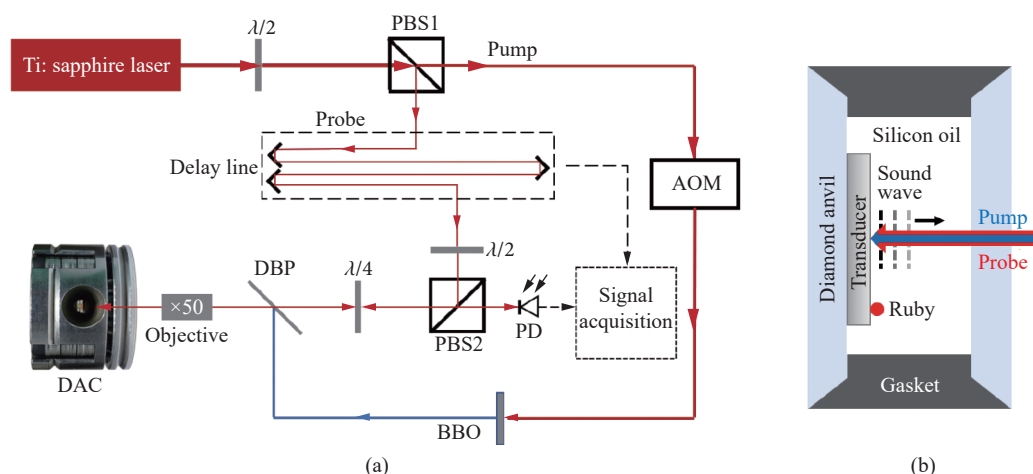


图 1 (a) 皮秒超声实验装置(PBS 为偏振分束器, $\lambda/4$ 为 $1/4$ 波片, $\lambda/2$ 为 $1/2$ 波片, AOM 为声光调制器, DBP 为二向色分束器, PD 为光电探测器); (b) 放大的金刚石压腔(Transducer 为光声换能介质(钨箔), 样品腔的剩余空间由硅油填充, 图中还注明了泵浦光和探测光的光路及声波的传播路径)

Fig. 1 (a) Schema of the picosecond ultrasonics experiment setup (PBS represents polarization beam splitter, $\lambda/4$ represents quarter waveplate, $\lambda/2$ represents half wave plate, AOM is acousto-optic modulator, DBP is dichroic beam splitter, and PD is photodetector); (b) enlarged diagram of the diamond anvil cell (transducer stands for the opto-acoustic transducer (tungsten foil), optical paths of pump and probe beams, as well as propagation of sound waves are shown as well in the figure.)

1 MHz 的方波, 经偏硼酸钡非线性晶体(beta-barium borate, BBO)后, 波长由 800 nm 变为 400 nm, 最后经 50 倍的长工作距物镜聚焦于 DAC 样品腔内。与此同时, 探测光经过延迟线, 光程被可控地延长, 最终也被导入物镜, 探测光与泵浦光共线聚焦于 DAC 内^[28]。经聚焦的激光光斑直径约为 2 μm , 远小于压力分布测量时的空间距离 10 μm , 可以认为, 光斑尺寸对测量结果无显著影响。

本研究采用对称型金刚石压机, 金刚石台面的尺寸为 300 μm , 密封垫的材质为 T301 不锈钢, 预压厚度约为 40 μm , 样品腔钻孔直径约为 140 μm 。由于透明的传压介质(本研究中的硅油)无法直接将光脉冲转化为声波, 皮秒超声实验中通常使用金属薄膜作为光声换能介质。此处选择钨箔作为光声换能介质, 因为钨具有高硬度、高熔点等优异特性, 在高压实验中不易发生塑性形变, 在激光加载下其物理性质也能保持稳定。该钨箔由直径约为 15 μm 的单颗钨粉颗粒经金刚石对顶砧压制成薄圆片, 直径约为 60 μm , 厚度约为 0.6 μm (如图 2(a))。钨箔紧贴一侧的金刚石砧面放置(如图 1(b)), 且位于砧面中心处。红宝石颗粒作为压力标定介质布置于距台面中心约 21.7 μm 的地方, 与钨箔重叠且位于台面较边缘处(图 2(a))。样品腔的剩余空间由硅油填充。

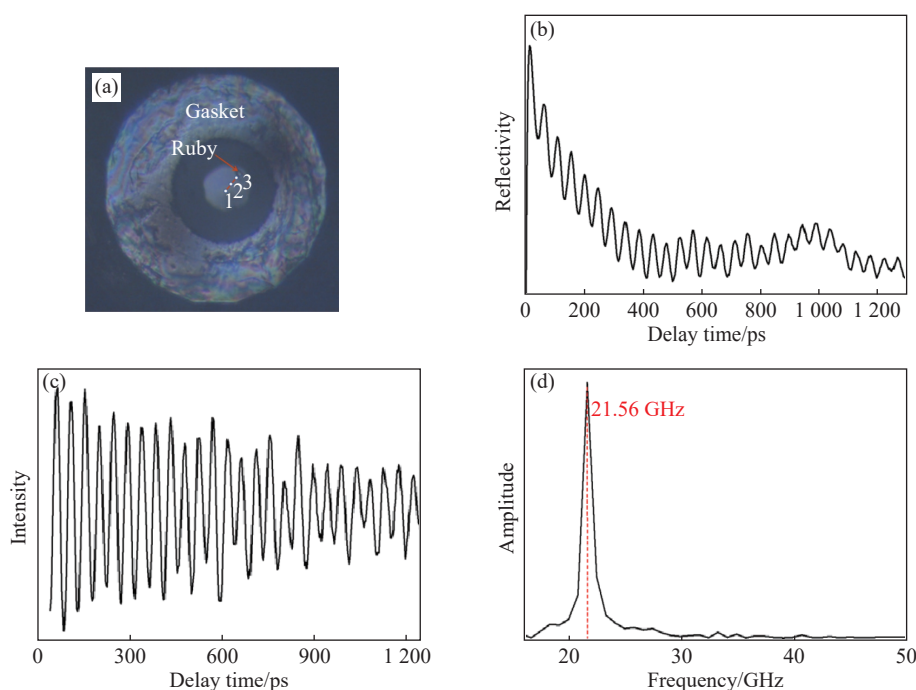


图 2 (a) 显微镜下 DAC(最外圈的亮色圆环(直径为 300 μm)对应金刚石台面, 中间的浅色圆片为钨箔, 图中标出了测量点 1、2 和 3 以及红宝石的位置); (b) 4.1 GPa 时点 1 处采集的超声原始信号; (c) 去除热背景后的布里渊振荡信号; (d) 将 (c) 进行快速傅里叶变化后得到的频域信号

Fig. 2 (a) Image inside the DAC observed under microscope (The outermost bright-colored circular region stands for the culet area with diameter of 300 μm . The middle-most light-colored circular plate are the tungsten foil, measuring positions 1, 2, and 3, as well as the location of ruby are labeled.); (b) raw signal of picosecond ultrasonics collected at pressure of 4.1 GPa at Position 1; (c) Brillouin oscillations after subtraction of the thermal background; (d) frequency spectrum after Fourier transformation of (c)

泵浦脉冲进入 DAC 后, 相继穿过金刚石、硅油, 最后到达光声换能介质-钨箔的表面。光脉冲的部分能量被钨箔浅表吸收, 导致该区域的温度突然升高, 从而引起热膨胀。膨胀产生的应变朝硅油的内部传播(对应图 1(b)中朝右的方向)。同时, 探测脉冲借助延迟线探测样品内部反射光强的瞬态演化。探测光一方面被系统内的固定界面(如钨/硅油界面)反射, 另一方面被正在向右传播的超声波散射, 二者之间的干涉形成振荡信号。行进中的声波对探测光的非弹性散射称为布里渊散射, 产生的振荡信号称为布里渊振荡^[15, 28], 其频率 f 的表达式为

$$f = 2nv/\lambda \quad (1)$$

式中: v 为传压介质的纵波声速, n 为介质的折射率。可见, 布里渊振荡频率 f 与硅油的纵波声速 v 密切相关, 且受介质的折射率 n 和探测光波长 λ 的影响。由于压力的标定直接与该振荡频率对应, 因此, 测量压力分布时无需高压下硅油的声速与折射率信息。

图 2(b) 展示了一个典型的皮秒超声实验信号。当探测脉冲与泵浦脉冲同时到达钨箔表面时, 金属中的电子在数皮秒内获得光子能量, 导致温度突变, 体现为图 2(b) 中 $t=0$ 时探测光反射强度骤升。之后是持续数百皮秒甚至数纳秒的热衰减过程, 过程中伴随的高频周期性信号即为布里渊振荡。原始信号经去除热学背底(图 2(c))和快速傅里叶变换, 即可获得布里渊振荡的频率信息(图 2(d))。更多关于皮秒超声技术的数据分析方法可参考文献 [29–30]。

为了测量压力分布, 选取样品腔内径向的 3 个点作为测量点位, 点 1、2 和 3 之间的间距为 $10\ \mu\text{m}$, 其中, 点 1 位于压腔的几何中心。红宝石距离点 3 约 $2\ \mu\text{m}$, 由于距离极短, 将该红宝石标定的压力视为点 3 处的压力。红宝石标定的压力与点 3 处的振荡频率间的联系将提供新的压标。

2 结果与讨论

表 1 列举了 1~30 GPa 压力范围内样品腔中点 1、2 和 3 处采集的布里渊振荡信号的频率。

表 1 高压下 3 个测量点处采集的布里渊振荡频率和由红宝石标定的压强
Table 1 Brillouin oscillation frequencies collected at the three measuring positions and pressures calibrated by ruby at different pressure steps

No.	Frequency/GHz			Pressure on ruby/GPa
	Position 1	Position 2	Position 3	
1	13.07(6)	13.04(6)	13.04(6)	1.0
2	21.56(12)	21.51(12)	21.43(12)	4.1
3	25.52(14)	25.42(14)	25.36(14)	7.0
4	29.38(18)	29.18(18)	28.99(18)	10.2
5	33.17(17)	33.09(17)	33.01(17)	13.8
6	38.10(20)	37.74(20)	37.50(20)	20.2
7	41.98(22)	41.67(22)	41.30(22)	25.0
8	45.79(24)	45.58(24)	45.05(24)	30.0

由于点 3 处采集的布里渊振荡频率 f 与临近处红宝石标定的压强 p 相对应, 因此, 可以获得不同压强条件下点 3 处的频率与压强的对应关系, 采用三阶多项式进行拟合, 得到

$$p = 6.55 - 0.99f + 0.047f^2 - 0.0003f^3 \quad (2)$$

式中: 压强的单位为 GPa, 频率的单位为 GHz。

点 1 和点 2 处的频率可根据式 (1) 获得对应的压力值。因此, 原本的频率-位置(f - x)关系可转变为更为常见的压力-位置(p - x)关系, 如图 3(a) 所示。图 3(a) 中压力的误差由表 1 中频率的测量误差结合式 (2) 计算获得。不难看出, 在不同的压强下, 压腔内的压力分布均沿径向递减, 中心(点 1 处)的压力最高, 边缘(点 3 处)的压力最低。为了更清晰地呈现压强随位置的变化趋势, 图 3(b) 显示了不同压强下各点位之间的压力差。总体上看, 点位间压力的递减近乎呈线性, 变化梯度随压强的升高而增大。例如: 1 GPa 时, 梯度近乎为零, 仅为 1.3×10^{-4} GPa/ μm , 在 30 GPa 时, 梯度增长至 5.3×10^{-2} GPa/ μm 。该结果与 Chen 等^[27] 采用红宝石测压法获得的数据符合较好; 同样地, 在约 7 GPa 时, 本研究测量的梯度值 6.5×10^{-3} GPa/ μm 与 Chen 等^[27] 报道的 6.9×10^{-3} GPa/ μm 非常接近。因此, 本研究采用的测试方法具有高可靠性和精确性。虽然受限于测量空间, 只能获得压腔中心 $20\ \mu\text{m}$ 半径范围内的压力分布, 但该距离

范围内的压力差在 $p = 30$ GPa 时便已达到约 1 GPa。依此推测, 在极端高压条件下, 若样品距离压标的位置较远, 则由压标标定的压力与样品处的压力之间可能存在显著误差。

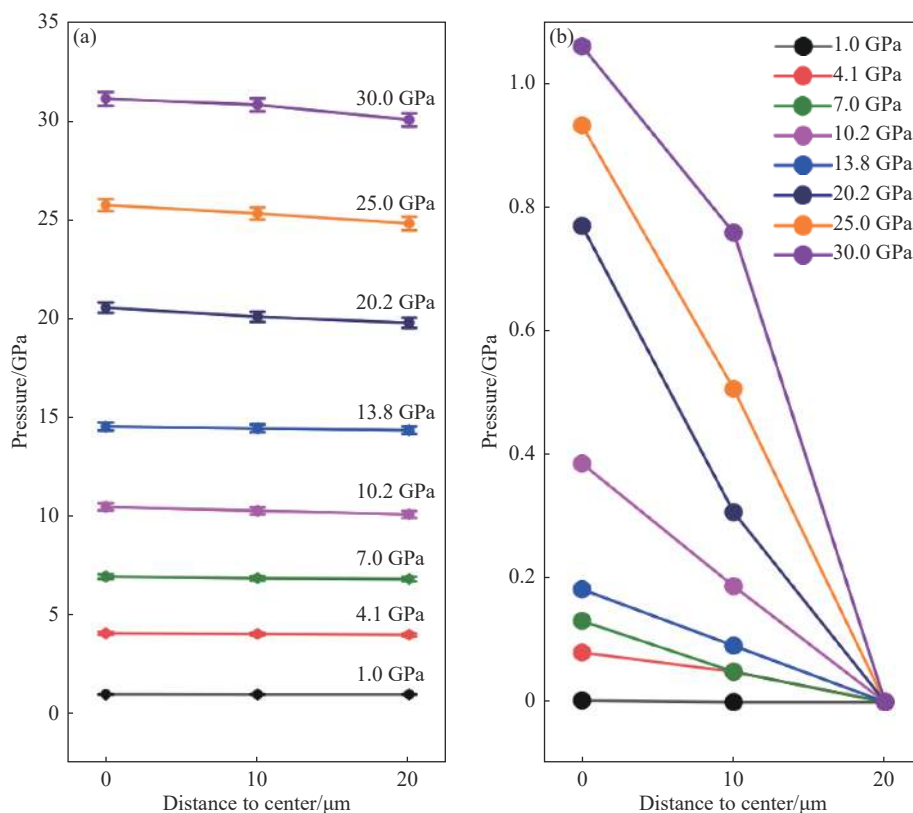


图 3 (a) 高压下点 1、2 和 3 处的压力分布及其误差, (b) 各点与点 3 之间的压力差(点 3 设为参照, 其压强均设置为零)

Fig. 3 (a) Pressure distribution at measuring positions 1, 2 and 3; (b) corresponding pressure gradient (the pressure gradient at point 3 is set to zero)

压力的空间分布是衡量传压介质静水压性能的重要指标。图 4 显示了不同压强条件下点 1、点 2 和点 3 处压力的标准差。可以看到: 在 1 GPa 下, 标准差近乎为零, 说明硅油仍处于液态, 能够提供理想的静水压环境; 但从 4.1 GPa 开始, 标准差不再为零, 且呈现出缓慢的增长趋势(直至 7.0 GPa), 表明硅油可能已经发生了液-固相变, 即玻璃化转变; 在 7.0~10.2 GPa 之间, 标准差的增长幅度加快, 而后, 在 13.8 GPa 下标准差曲线发生波动; 随后, 标准差又呈现出明显的快速增长趋势, 由 13.8 GPa 下的约 0.1 GPa 增长至 20.2 GPa 下的 0.4 GPa 以上。在 13.8 GPa 下观察到的异常波动可能与硅油中发生的固-固相变有关, 类似的情况在以往的研究中也有过报道^[14, 27], 该现象可解释为: 对于处于相变过程中的物质, 其内部微观状态的短暂混乱可能会使压腔内的环境更接近静水压环境, 最终导致压力的标准差降低。

为了更好地解释相变造成的影响, 本研究对样品进行了高压原位拉曼测量。测量采用的 Horiba 公司的 LabRAM HR Evolution 拉曼光谱仪, 激发光源的波长为 633 nm, 采谱时间为 60 s, 且每个信号点均

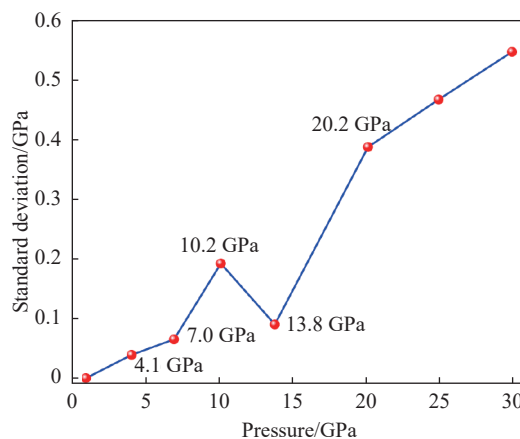


图 4 高压下各测量点间压力的标准差

Fig. 4 Standard deviation of the pressures measured at different measuring positions at different pressures

采谱 2 次以获得更高的信噪比。由于光谱仪的测量范围有限, 因此, 分别采集了 $300\sim 1100\text{ cm}^{-1}$ 的低波数段和 $2700\sim 3300\text{ cm}^{-1}$ 的高波数段的信号, 该方式规避了在 1332 cm^{-1} 波数附近金刚石的高强度拉曼信号。实验压力范围覆盖 $0.3\sim 36.8\text{ GPa}$ 区间, 测量结果呈现于图 5 中。整体而言, 随着压力的升高, 两个波段的散射峰均持续向高波数方向移动, 且伴随峰强度的逐渐减弱和峰宽的增大。但在整个压缩过程中并没有出现新的振动信号, 所以无法通过上述信息直接判断硅油的结构变化。然而, 值得注意的是散射峰强度在约 9.6 GPa 时的异常情况: 在低波数段, 低压时较为复杂的振动峰在压缩至 $9.6\sim 13.3\text{ GPa}$ 区间时伴随小峰的逐渐减弱和消失; 在高波数段, 低压时 2 个明显的散射峰强度在约 9.6 GPa 时突然减弱, 随后, 散射峰在 13.3 GPa 出现增强。此处拉曼信号强度的突然变化很可能与硅油的相变相关, 类似现象也曾在文献 [31] 中有过报道。结合图 4 所示的压力标准差数据, 硅油可能发生的相变信息总结如下: 当压力低于 7 GPa 时, 压力标准差随压力的升高而逐渐增大, 揭示了硅油可能已经经历了玻璃化转变, 但该转变在拉曼散射谱中的体现并不明显; 当压力处于 $7.0\sim 13.8\text{ GPa}$ 范围内时, 标准差发生了异常波动, 该压力范围与拉曼信号中观察到的振动峰强度的突然减弱(在 9.6 GPa 附近)吻合, 说明硅油可能发生了固-固相变。类似的相变信息在文献 [27] 中也有过报道: 硅油的原位 XRD 揭示了其衍射峰在约 13 GPa 时出现的异常折返移动, 该异常很难由玻璃化转变引起的物质固化进行解释, 更可能是发生了固-固相变。

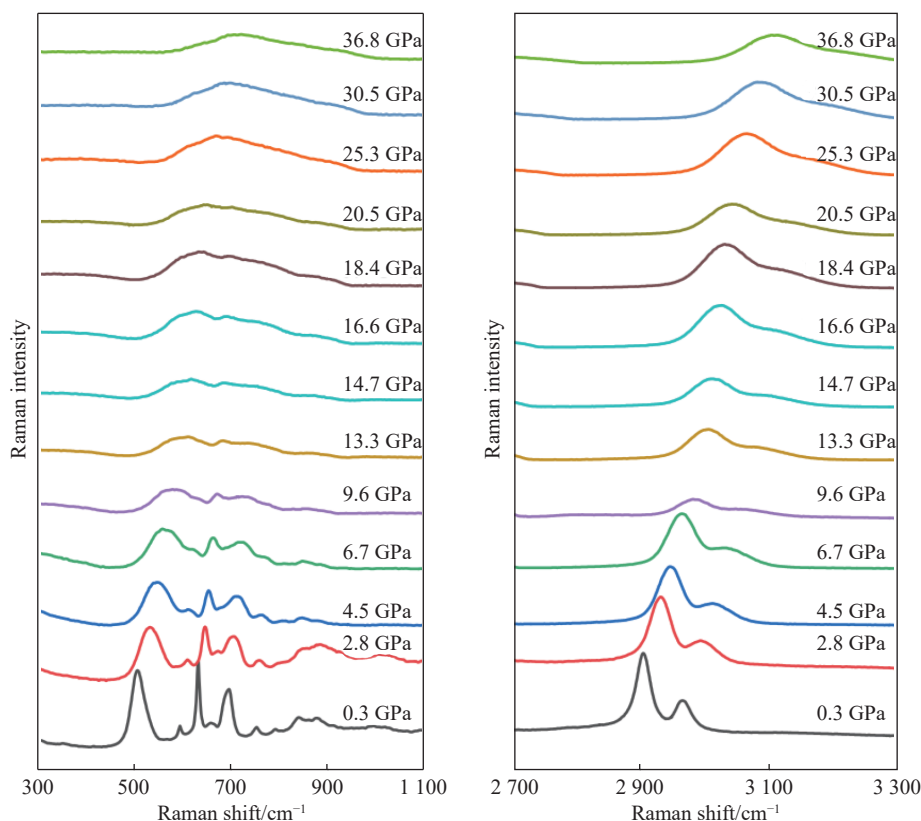


图 5 高压下硅油的拉曼光谱

Fig. 5 Raman spectra of silicon oil at different pressures

3 结 论

鉴于声速与压力息息相关, 为此, 本研究创新性地提出了利用皮秒超声技术研究 DAC 内压力分布的新方法。采用该方法测量了常用传压介质——硅油在 $1\sim 30\text{ GPa}$ 压力范围内的声学信号。结果显示, 高压下硅油中的压力从样品腔中心向外递减, 且梯度从 1 GPa 时的 $1.3\times 10^{-4}\text{ GPa}/\mu\text{m}$ 增长至 30 GPa 时的 $5.3\times 10^{-2}\text{ GPa}/\mu\text{m}$ 。此外, 结合高压原位拉曼光谱技术, 对比和分析了硅油在高压下可能发

生的固-固相变行为。本研究结果显示,皮秒超声技术有能力在更宽的压力范围内对更多的传压介质在金刚石样品腔内的压力分布进行系统性的研究,这将为高压实验中压力的精确标定提供支撑。

参考文献:

- [1] BASSETT W A. Diamond anvil cell, 50th birthday [J]. [High Pressure Research](#), 2009, 29(2): 163–186.
- [2] JAYARAMAN A. Diamond anvil cell and high-pressure physical investigations [J]. [Reviews of Modern Physics](#), 1983, 55(1): 65–108.
- [3] DUBROVINSKY L, DUBROVINSKAIA N, PRAKAPENKA V B, et al. Implementation of micro-ball nanodiamond anvils for high-pressure studies above 6 Mbar [J]. [Nature Communications](#), 2012, 3: 1163.
- [4] STIXRUDE L, COHEN R E. High-pressure elasticity of iron and anisotropy of Earth's inner core [J]. [Science](#), 1995, 267(5206): 1972–1975.
- [5] TAKEMURA K. Hydrostatic experiments up to ultrahigh pressures [J]. [Journal of the Physical Society of Japan](#), 2007, 76: 202–205.
- [6] LI B, JI C, YANG W G, et al. Diamond anvil cell behavior up to 4 Mbar [J]. [Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America](#), 2018, 115(8): 1713–1717.
- [7] PIERMARINI G J, BLOCK S, BARNETT J D. Hydrostatic limits in liquids and solids to 100 kbar [J]. [Journal of Applied Physics](#), 1973, 44(12): 5377–5382.
- [8] EREMETS M I. High pressure experimental methods [M]. Oxford: Oxford University, 1996.
- [9] HEMLEY R J, MAO H K, SHEN G Y, et al. X-ray imaging of stress and strain of diamond, iron, and tungsten at megabar pressures [J]. [Science](#), 1997, 276(5316): 1242–1245.
- [10] FORMAN R A, PIERMARINI G J, BARNETT J D, et al. Pressure measurement made by the utilization of ruby sharp-line luminescence [J]. [Science](#), 1972, 176(4032): 284–285.
- [11] SUNG C M, GOETZE C, MAO H K. Pressure distribution in the diamond anvil press and the shear strength of fayalite [J]. [Review of Scientific Instruments](#), 1977, 48(11): 1386–1391.
- [12] TAKEMURA K, DEWAELE A. Isothermal equation of state for gold with a He-pressure medium [J]. [Physical Review B](#), 2008, 78(10): 104119.
- [13] GOÑI A R, ZHOU T, SCHWARZ U, et al. Pressure-temperature phase diagram of the spin-peierls compound CuGeO_3 [J]. [Physical Review Letters](#), 1996, 77(6): 1079–1082.
- [14] KLOTZ S, CHERVIN J C, MUNSCH P, et al. Hydrostatic limits of 11 pressure transmitting media [J]. [Journal of Physics D: Applied Physics](#), 2009, 42(7): 075413.
- [15] THOMSEN C, GRAHN H T, MARIS H J, et al. Surface generation and detection of phonons by picosecond light pulses [J]. [Physical Review B](#), 1986, 34(6): 4129–4138.
- [16] DECREMPS F, BELLIARD L, PERRIN B, et al. Sound velocity and absorption measurements under high pressure using picosecond ultrasonics in a diamond anvil cell: application to the stability study of AlPdMn [J]. [Physical Review Letters](#), 2008, 100(3): 035502.
- [17] DECREMPS F, BELLIARD L, GAUTHIER M, et al. Equation of state, stability, anisotropy and nonlinear elasticity of diamond-cubic (ZB) silicon by phonon imaging at high pressure [J]. [Physical Review B](#), 2010, 82(10): 104119.
- [18] ZHAO B, XU F, BELLIARD L, et al. Sound velocities and elastic moduli of phases I and V of silicon at high pressures [J]. [Physica Status Solidi \(RRL\)-Rapid Research Letters](#), 2019, 13(8): 1900173.
- [19] RAETZ S, KURIAKOSE M, DJEMIA P, et al. Elastic anisotropy and single-crystal moduli of solid argon up to 64 GPa from time-domain Brillouin scattering [J]. [Physical Review B](#), 2019, 99(22): 224102.
- [20] SANDEEP S, THRÉARD T, DE LIMA SAVI E, et al. 3D characterization of individual grains of coexisting high-pressure H_2O ice phases by time-domain Brillouin scattering [J]. [Journal of Applied Physics](#), 2021, 130(5): 053104.
- [21] GUSEV V E, RUELLO P. Advances in applications of time-domain Brillouin scattering for nanoscale imaging [J]. [Applied Physics Reviews](#), 2018, 5(3): 031101.
- [22] XU F, DJEMIA P, BELLIARD L, et al. Influence of elastic anisotropy on measured sound velocities and elastic moduli of

- polycrystalline cubic solids [J]. *Journal of Applied Physics*, 2021, 130(3): 035903.
- [23] RAGAN D D, CLARKE D R, SCHIFERL D. Silicone fluid as a high-pressure medium in diamond anvil cells [J]. *Review of Scientific Instruments*, 1996, 67(2): 494–496.
- [24] SHEN Y R, KUMAR R S, PRAVICA M, et al. Characteristics of silicone fluid as a pressure transmitting medium in diamond anvil cells [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2004, 75(11): 4450–4454.
- [25] HSIEH W P. Thermal conductivity of methanol-ethanol mixture and silicone oil at high pressures [J]. *Journal of Applied Physics*, 2015, 117(23): 235901.
- [26] MURATA K, YOKOGAWA K, YOSHINO H, et al. Pressure transmitting medium Daphne 7474 solidifying at 3.7 GPa at room temperature [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2008, 79(8): 085101.
- [27] CHEN X H, LOU H B, ZENG Z D, et al. Structural transitions of 4 : 1 methanol-ethanol mixture and silicone oil under high pressure [J]. *Matter and Radiation at Extremes*, 2021, 6(3): 038402.
- [28] ZHANG X Z, LI C H, XU F, et al. Sound velocity anisotropy and single-crystal elastic moduli of MgO to 43 GPa [J]. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 2023, 128(6): e2022JB026311.
- [29] DECREMPS F, GAUTHIER M, AYRINHAC S, et al. Picosecond acoustics method for measuring the thermodynamical properties of solids and liquids at high pressure and high temperature [J]. *Ultrasonics*, 2015, 56: 129–140.
- [30] KURIAKOSE M, RAETZ S, CHIGAREV N, et al. Picosecond laser ultrasonics for imaging of transparent polycrystalline materials compressed to megabar pressures [J]. *Ultrasonics*, 2016, 69: 259–267.
- [31] 王晓霞, 李志慧, 陈晨, 等. 硅油的高压拉曼散射 [J]. *高等学校化学学报*, 2014, 35(11): 2410–2415.
- WANG X X, LI Z H, CHEN C, et al. High pressure raman spectra of silicone oil [J]. *Chemical Journal of Chinese Universities*, 2014, 35(11): 2410–2415.

Pressure Distribution Investigation in Silicon Oil Compressed in Diamond Anvil Cell

XU Tiancheng, DENG Yuanhao, HONG Chen, HUANG Haijun, XU Feng

(School of Physics and Mechanics, Wuhan University of Technology, Wuhan 430070, Hubei, China)

Abstract: Diamond anvil cell (DAC) is a kind of widely used static-high-pressure device. Benefitting from its wide pressure range, excellent optical applicability and convenience of use, DAC provides a tremendous boost to the development of high-pressure science. However, at high pressures, factors like solidification of pressure transmitting medium may cause destruction of the hydrostatic pressure condition in the DAC sample chamber, leading to the generation of pressure gradients. In this work, a new method of using the technique of picosecond ultrasonics to investigate acoustic signal distribution at various locations within the sample chamber was proposed, which can analyze the pressure distribution via the acoustic observations. Limitations in the continuity of signal acquisition, sample selection, etc. can be overcome in this experimental technique, which could be built and manipulated in an ordinary laboratory. Here, pressure gradient in silicon oil was carried out under compression using this technique, and the results revealed that the pressure gradient in the sample chamber increased from 1.3×10^{-4} GPa/ μm at 1 GPa to 5.3×10^{-2} GPa/ μm at 30 GPa. In addition, the anomalous change of standard deviation of the pressure distribution was analyzed by combining it with *in-situ* Raman spectroscopy, then the possible phase transitions of silicone oil at high pressures were discussed.

Keywords: diamond anvil cell; pressure gradient; picosecond ultrasonics; silicone oil; phase transition