

氟化铅高压声速研究：高阻抗标准窗口的发现*

黄海军¹, 李梓宁¹, 刘勋¹, 高畅¹, 张清¹, 李泽辉¹, 孙晨辉¹, 覃天¹,
周佳琦¹

(1. 武汉理工大学物理与力学学院, 湖北 武汉 430070)

摘要: 动高压声速精准测量迫切需求高阻抗窗口材料, 然而目前该类理想材料仍未见报道。本文在 64–198 GPa 压强范围内, 结合动高压实验和量子分子动力学模拟, 系统研究了氟化铅 (PbF₂) 单晶的 Hugoniot 状态方程、声速, 理论模拟结果与实验测试数据高度吻合。研究发现, PbF₂ 在冲击压强约 89.6 GPa 时转变为液态金属, 该金属化特征可实现冲击波阵面对激光信号的有效反射, 依托高精度激光测速装置, 可精准捕获冲击波传播速度和稀疏波追及冲击波的时间特征参数, 为极端高压下各类材料的精准声速测试提供了关键技术支撑。高压下 PbF₂ 兼具高阻抗、高压相结构稳定性、压力诱导金属化等多重优异特性, 满足高阻抗标准窗口的核心要求。

关键词: PbF₂; Hugoniot 状态方程; 声速; 相变;

中图分类号: O521.2

国标学科代码: 14040

文献标识码: A

High-Pressure sound velocity of PbF₂: a high-impedance standard window material

HUANG Haijun¹, LI Zining¹, LIU Xun^{1*}, GAO Chang^{1*}, ZHANG Qing¹, LI Zehui¹, SUN
Chenhui¹, QIN Tian¹, ZHOU Jiaqi¹

¹School of Physics and Mechanics, Wuhan University of Technology, Wuhan, Hubei 430070, China

Abstract: Accurate sound velocity measurement under high pressure requires high-impedance window materials. However, no ideal candidates have been reported to date. In this study, the Hugoniot data and sound velocity of single-crystal lead fluoride (PbF₂) in the pressure range of 64–198 GPa were investigated by shock compression techniques and quantum molecular dynamics simulations. The theoretical simulation results of Hugoniot data and sound velocities are in excellent agreement with the experimental data. Along Hugoniot, the sound velocities of liquid PbF₂ increase linear with particle velocity. The signal of a displacement interferometer system for any reflector (DISAR) and simulation results confirm reveal that PbF₂ transforms into a liquid metal at 89.6 GPa, which enables efficient laser reflection at the shock front. Using a DISAR, both the shock wave velocity and the catch-up time of rarefaction waves can be accurately measured, providing critical technical support for the precise determination of sound velocity in materials under extremely high pressure. These superior properties, including high

*收稿日期: 2026-04-28; 修回日期: 2026-05-31;

基金项目: 国家自然科学基金 (42274124);

第一作者: 黄海军 (1976—), 男, 博士, 教授. E-mail: hjhuang@whut.edu.cn;

通信作者: 刘勋 (1984—) 男, 博士, 副教授. E-mail: xun_liu@whut.edu.cn
高畅 (1993—) 男, 博士, 讲师. E-mail: gaochang@whut.edu.cn

impedance, structural stability under high pressure, and pressure-induced metallization, enable PbF_2 fully meet the core requirements for high-impedance standard windows.

Keywords: PbF_2 ; Equation of state along Hugoniot; Sound velocity; Phase transition;

1 前言

冲击压缩下材料的声速测量在凝聚态物理、冲击动力学和地球科学中具有重要地位。声速测量有助于揭示冲击诱导的相变，包括熔化^[1-6]。此外，通过声速测量还可确定弹性模量，这对于构建材料的力学本构关系至关重要^[7, 8]。高温高压下，描述物质的状态方程所需的重要热力学参数——Grüneisen 参数 (γ) 也能够根据液体的声速数据确定^[9, 10]。此外，在地球科学领域，探究地球内部成分的最可靠方法之一，是在极端条件下测量候选矿物的声速，并与地震波观测数据进行对比分析^[11-15]。

由于受样品尺寸的限制，在磁驱动压缩装置和激光加载压缩装置上目前仍无法开展高精度声速测量实验，当前冲击加载条件下的声速实验研究主要依托二级气体炮实验装置。在该装置上，测量材料声速的方法主要有两种，分别是光分析技术和透明窗口反向碰撞技术。在光分析技术中，样品需制备为台阶状，且样品后界面紧密贴合窗口材料。在早期实验中，通常使用三溴甲烷或含铅玻璃作为窗口材料，这些材料在常温常压下具有良好透明性，但在冲击压缩条件下失去透明性，且呈现出黑体辐射特征，因此这类窗口也称为黑体窗口^[1]。该技术基本原理如下：飞片与样品撞击后，会在飞片和样品内产生两个传播方向相反的冲击波；样品中的冲击波传播至窗口时，其内部温度会急剧升高，此时高温计可观测到光谱辐射亮度突然升高并保持恒定。当飞片内的冲击波传播至其后界面时，会生成一个中心稀疏波，稀疏波的波头以声速在飞片和样品内传播。当稀疏波在窗口内追赶上冲击波时，高温计会观测到黑体窗口的辐亮度出现明显下降。由于样品厚度与稀疏波在窗口内追赶上冲击波的时间呈线性关系，外推时间差为零时，即可确定稀疏波在样品内恰好追上冲击波阵面的位置（即追赶厚度），据此得到样品的声速。随着激光测速仪的问世与应用，后续研究采用氟化锂（LiF）窗口替代传统黑体窗口，通过测量样品/窗口界面的粒子速度变化，反演追赶厚度^[13, 16]。光分析技术的优势在于：当飞片为高阻抗材料时，可实现较高压强下的声速测量。但也存在明显不足：实验装置比较复杂，在样品窗口界面处，波的相互作用过程复杂，导致相对测量误差较大。此外，近期研究发现，如果材料表现出准弹性释放效应，会导致使用光分析技术获得的声速测量结果可能存在较大偏差^[16]。

与光分析技术相比，透明窗口反向碰撞技术的实验装置相对简单。该技术的基本原理是将样品作为飞片，直接撞击光学窗口^[2, 17]。此时，会在样品和窗口内部会产生两个传播方向相反的冲击波。若窗口材料在冲击加载下保持透明状态，激光测速系统会观测到样品/窗口界面的粒子速度突然上升，并保持不变。当样品中的冲击波传至样品后界面时，会产生一个中心稀疏波；当稀疏波到达样品/窗口界面时，界面粒子速度会逐渐降低。根据稀疏波在样品中的传播时间以及样品厚度，可以精准测量在冲击加载下材料的声速。

透明窗口反向碰撞技术的核心要求是，窗口在冲击压缩下必须保持透明状态。相关研究表明，当冲击压力超过约 100 GPa 时，仅有 LiF 单晶能保持良好的透明度^[4, 18]。该技术的显著优势在于实验装置和波的相互作用过程相对简单，因此利用该方法测量声速的精度极高。然而，由于 LiF 冲击阻抗比较低，即使样品的速度很高，实验可实现的冲击压强依然较低。为突破这一局限，寻找高阻抗透明窗口材料，学者们对 $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$, Al_2O_3 , LiTaO_3 , MgAl_2O_4 等多种材料在冲击加载下的透明性开展了系统研究，但研究结果表明，上述材料均无法满足高阻抗与冲击透明性的双重要求^[19-24]。

为解决上述问题，我们提出使用灰体窗口反向碰撞技术测量材料在冲击加载下的声速。该方法的实验装置与透明窗口反向技术基本相同，仅将透明窗口替换为灰体窗口。为实现较高的冲击压强，窗口材料需具备高阻抗特性（阻抗定义为 $Z = \rho_0 D_S$, ρ_0 为初始密度， D_S 为冲击波速度）；同时，在高压范围内保持结构稳定性，以确保声速随冲击压力呈单调变化。经过大量对比分析，我们认为氟化铅

(PbF_2) 能够满足上述基本要求^[25]: 首先, 它在高压下的阻抗显著高于液态二氧化硅 (SiO_2)^[10]、蓝宝石 (Al_2O_3)^[21,26]、 LiF ^[27]、铅玻璃 (ZF6)^[28] (图 1); 其次, 沿着 Hugoniot 线, PbF_2 在约 56 GPa 时熔化, 因此在高压下能够保持稳定的相结构。然而, 目前尚未发现有关该窗口材料在冲击加载下的声速数据报道。

在本研究中, 我们测量了 PbF_2 在 64-198 GPa 压强范围内的声速, 同时采用量子分子动力学 (QMD) 方法, 系统研究了液态 PbF_2 在高温高压极端条件下的状态方程与声速, 并将模拟结果和实验数据对比, 验证实验数据的可靠性。该研究结果表明, PbF_2 能够作为标准高阻抗窗口材料。

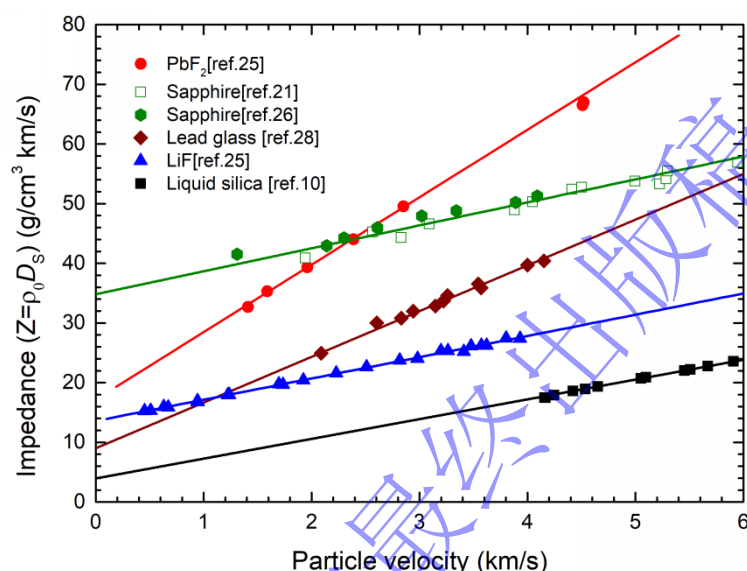


图 1 窗口材料的阻抗随粒子速度变化趋势。

Fig. 1 The impedance of window materials versus particle velocity.

2 研究方法

2.1 实验研究

本研究所用的 PbF_2 样品来自河南微米光学科技有限公司, 为圆片状的 β - PbF_2 单晶, 经 X 射线单晶衍射测定其晶向为 $\langle 100 \rangle$ 。电子探针微区分析 (JXA-8230) 样品的纯净度为 99.3%。经排水法测量, 样品在室温常压下的密度为 $7.740(5) \text{ g/cm}^3$ 。冲击压缩实验在武汉理工大学物理与力学学院的二级轻气炮开展^[29]。利用磁测速装置测量飞片的速度。靶的装置如图 2(a)所示: 两个直径约 20.00 (10) mm 的 PbF_2 样品, 其厚度分别为 $\sim 1.55 \text{ mm}$ (样品 1) 和 $\sim 4.07 \text{ mm}$ (样品 2)。样品表面均抛光至光学级平整度 ($\sim 2 \mu\text{m}$), 在抛光过程中导致样品的厚度发生变化, 因此实验所用样品厚度存在差异。样品 1 的前界面镀有约 100 nm 厚的铜膜, 并用环氧树脂粘接 10 μm 厚的铜箔, 以防止发射管内前冲性气体对测试信号的干扰。样品 2 的前界面镀有约 1 μm 厚的消光膜, 在可见光范围内将光辐射强度降低约 50%, 目的是测量冲击波到达两样品之间界面的时间, 进而获得冲击波速度。冲击波阵面的光辐射亮度由直径 600 μm 的石英光纤收集, 并耦合至十六通道光学高温计^[19, 28]。每次实验前, 高温计均使用标准光源进行标定。本文采用 400 W 的溴钨灯作为标准光源, 其光谱辐射亮度随着波长的变化曲线由四川省产业计量测试研究院的高温黑体炉标定得到。此外, 在距离样品中心 6 mm 的位置, 均匀布置三根直径为 9 μm 的光纤, 与任意反射面位移激光干涉仪 (DISAR)^[30] 耦合, 用于监测飞片撞击样品时的倾斜角和冲击波速度的时间变化特征。

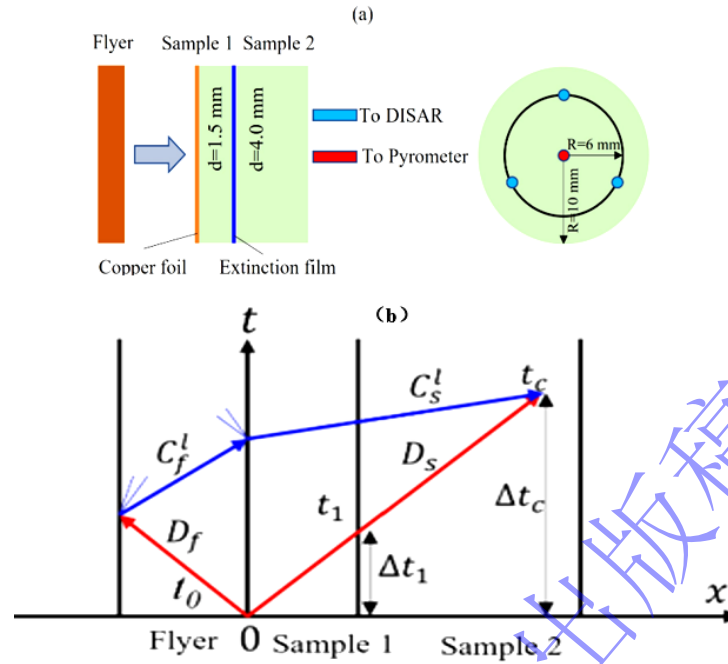


图 2 (a) 实验装置示意图；(b) 拉格朗日坐标系下的波系相互作用图，红线与蓝线分别代表冲击波和稀疏波。由于铜箔和消光膜厚度极薄，二者对波的传播过程的影响可忽略不计。

Fig. 2 (a) Experimental setup and (b) Wave interactions in Lagrangian coordinates. The red and blue lines represent shock and rarefaction waves, respectively. The effects of the copper foil and extinction film on wave propagation are neglected due to their small thicknesses.

图 2(b)为拉格朗日坐标系（坐标固定在流体粒子上的参考系）中，飞片和 PbF_2 样品内的波相互作用图。飞片于 t_0 时刻撞击样品后，高温计记录的光谱辐射亮度迅速上升并保持稳定，表明 PbF_2 在冲击压缩下变为不透明状态；在 t_1 时刻冲击波经过消光膜，高温计记录的光谱辐射亮度突然升高（图 3(a)）。样品中的冲击波速度由公式（1）确定：

$$D_s = h_1 / (t_1 - t_0) = h / \Delta t_1 \quad (1)$$

其中 h_1 为样品 1 的厚度。由于 PbF_2 样品在冲击加载下失去透明性，因此 DISAR 不能测量铜膜/ PbF_2 界面的粒子速度；但是当样品压强超过 75 GPa 时，发现 PbF_2 样品中的冲击波阵面能够反射激光信号，即可以利用 DISAR 测量样品中的冲击波速度。图 3(b)为实验 0627 中， PbF_2 样品内冲击压强为 150.6 GPa 时 DISAR 记录的信号。该图中的插图清晰呈现了冲击波经过消光膜界面实引发的小扰动。由于 PbF_2 窗口引入了额外的光程，DISAR 测量的是表观冲击波速度 D_0 与真实冲击波速度 D_s 的关系为 $D_s = D_0/n$ ，其中 n 为 PbF_2 的折射率。基于本文测量结果， PbF_2 对波长为 1550 nm（DISAR 的工作波长）光的折射率测定为 1.716(3)。两种方法测量的冲击波速度可以相互校验，提高了冲击波速度测量的准确性。

以上是冲击波速度测量的基本原理，利用上述装置还可以同时测量声速。当飞片内的冲击波 D_f 向左传播到飞片后界面时，会反射一个向右传播的中心稀疏波（图 2 (b)）。在压缩区域，该稀疏波的波头以声速在飞片和 PbF_2 内进行传播，并最终于 t_c 时刻在样品内追赶上冲击波 D_s 。这时，高温计和 DISAR 会显示光谱辐射亮度以及冲击波速度发生显著降低(图 3)。在拉格朗日坐标系内， PbF_2 样品内的声速可由公式（2）给出。

$$C_S^L = \frac{D_S}{1 - [d/(t_c - t_0)](1/D_f + 1/C_f^L)} \quad (2)$$

式中 d 为飞片厚度, D_f 和 C_f^L 分别为飞片的冲击波速度和声速。在欧拉坐标系中, 样品的声速为 $C_S = \rho_0 C_s^L / \rho$, 其中 ρ_0 为样品初始密度。本文选用钽 (Ta) 和铜 (Cu) 作为飞片材料, 这两类材料的 Hugoniot 数据与声速数据已被系统、完备表征。表 1 汇总了 Ta 和 Cu 的 Hugoniot 参数 C_0 和 S 。图 4 汇总了 Akin 等人^[31]、Xi 等人^[32]、Brown 等人^[6]、Hu 等人^[33]、Yu 等人^[34]和 Rigg 等人^[35]报道的 Ta 的声速实验数据。图 4 同时给出了 Cu 的声速最新测量结果^[16]。当压强超过 140 GPa 以上, Cu 的声速数据出现明显的分散性。因此, 本研究以铜做飞片时, 严格控制冲击压强低于 140 GPa。依据飞片的 Hugoniot 参数 (表 1) 和阻抗匹配法^[36], 可计算样品的粒子速度 U_p 、冲击压强 P_H 和压缩密度 ρ 。

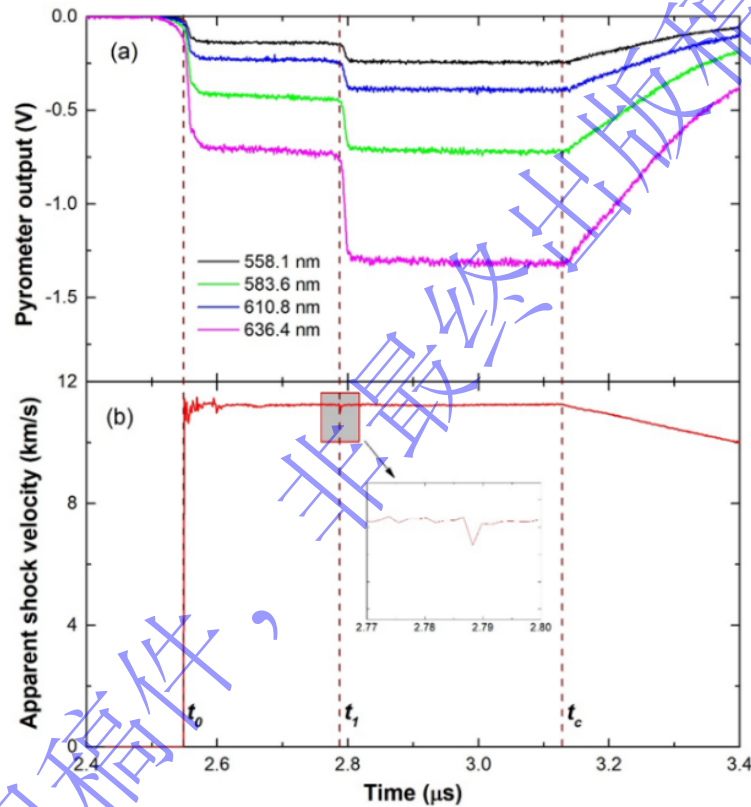


图 3 实验 0627 实验观测信号: (a) 高温计信号 (为清晰起见仅展示四个通道), 以及 (b) DISAR 测量的表观冲击波速度。(b) 中的放大图显示了样品界面引起的小扰动。

Fig. 3 Typical experimental results for No.0627: (a) Pyrometer signals (only four channels are shown for clarity), and (b) Apparent shock velocity measured by DISAR. The enlargement in (b) shows the small disturbance induced by the sample interface.

表 1 飞片材料的 Hugoniot 参数

Table 1 Hugoniot parameters for flyer materials

Material	ρ_0	C_0	S	Reference
Cu ^[36]	8.935	3.933(42)	1.500(25)	[36]
Ta ^[36]	16.654	3.293(49)	1.307(25)	[36]
PbF ₂	7.740	2.214(34)	1.465(13)	This work

注: ρ_0 为样品初始密度。在材料不发生相变时, 冲击波速度 D_S 和粒子速度 u_p 满足线性关系: $D_S = C_0 + Su_p$, 系数 C_0 和 S 称为 Hugoniot 参数。

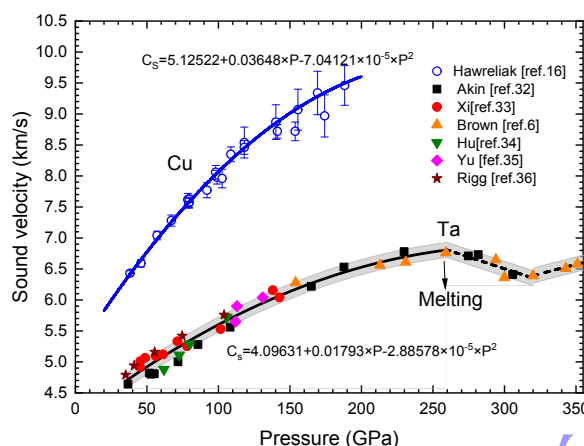


图 4 冲击加载下钽 (Ta) 和铜 (Cu) 的声速随压强变化趋势。Ta: 黑色实心矩形 (Akin 等人^[31])、红色实心圆 (Xi 等人^[32])、橙色实心三角形 (Brown 等人^[6])、橄榄色实心倒三角 (Hu 等人^[33])、品红色实心菱形 (Yu 等人^[34]) 和空心圆 (Rigg 等人^[35]) 为实验数据。Cu: 蓝色空心圆 (Hawreliak 等人^[16])。实线为二项式拟合结果。

Fig.4 Summarized sound velocity of shocked tantalum (Ta) and copper (Cu). Data of Ta are from Akin et al. ^[31], Xi et al. ^[32], Brown et al. ^[6], Hu et al. ^[33], Yu et al. ^[34], and Rigg et al. ^[15]. Data of Cu are from (Hawreliak et al. ^[16]). Solid lines correspond to quadratic fits of the experimental data.

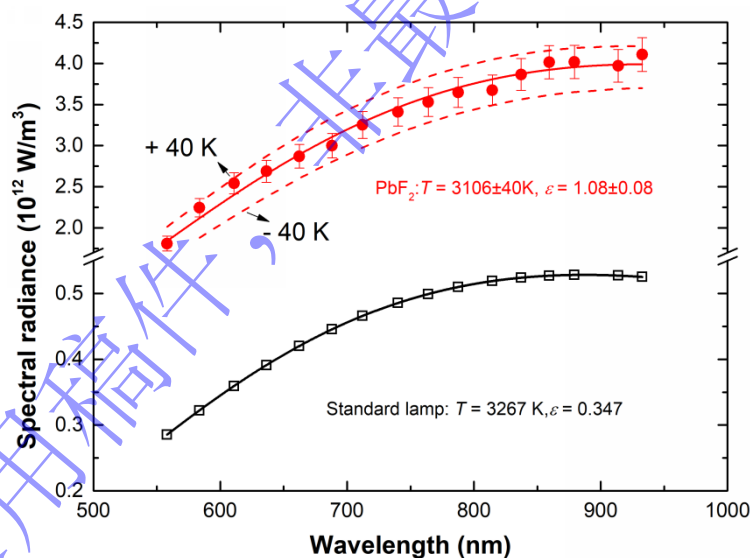


图 5 实验 (0702) 样品光谱辐射亮度随波长变化趋势。红色实心圆表示在 75.9 GPa 时 PbF_2 的光谱辐射亮度。黑色空心矩形为标准灯光谱辐射亮度。实线为公式 (3) 拟合曲线, 虚线代表不确定度区间。

Fig. 5 The spectral radiance with wavelength for experiment 0702. The red solid circles denote the spectral radiance of PbF_2 under shock pressure of 75.9 GPa, and the black open squares represent the spectral radiance of the standard lamp. The solid lines are the fitting results by Equation (3), and the dashed lines indicate the uncertainty bounds.

高温计不仅可以用来测量冲击波速度和声速, 还可以用来测量 PbF_2 的冲击温度。由于高温计中的光电倍增管工作电压与光谱辐射亮度呈线性关系, 因此根据高温计记录的电压、标定电压和标准溴钨灯的光谱辐射亮度, 可求解 t_1-t_c 时刻之间各波长对应的光谱辐射亮度。利用 Planck 灰体辐射公式对光谱辐射亮度进行拟合, 即可得到冲击温度 T 和发射率 ε :

$$I_i(\lambda_i, T) = \varepsilon c_1 \lambda_i^{-5} / \left[\exp\left(\frac{c_2}{\lambda_i T}\right) - 1 \right] \quad (3)$$

式中, $I_i(\lambda_i, T)$ 为波长为 λ_i 的光谱辐射亮度, ε 为发射率(假设与波长无关), T 为冲击温度, $c_1=1.19106 \times 10^{-16} \text{ W} \cdot \text{m}^2/\text{sr}$ 和 $c_2=1.43878 \times 10^{-2} \text{ m} \cdot \text{K}$ 分别为第一和第二辐射常数。图5为实验0702的光谱辐射亮度的实验测量结果, 以及拟合得到的 T 和 ε 。拟合的 $\varepsilon=1.08(8)$ 与黑体的发射率 $\varepsilon=1$ 非常接近, 说明液态 PbF_2 在冲击压强低于75.9 GPa时, 可以视作黑体窗口材料。并且在此压强范围内, DISAR未观测到激光发射信号, 进一步支持黑体窗口特征。在89.6 GPa(实验0605), 拟合的 $\varepsilon=0.78(4)$, DISAR也观测到了来自冲击波阵面的激光反射信号, 说明这时窗口材料为灰体窗口。在更高的压强下(103.5-198 GPa), 由于光谱辐射亮度峰值所对应的波长向紫外波段偏移, 超出本研究所用高温计(波长558-932nm)波长范围, 导致拟合的发射率和冲击温度出现较大误差, 例如部分实验拟合的发射率略大于1, 但是冲击波阵面能够反射激光信号说明 PbF_2 为灰体窗口材料。

2.2 量子分子动力学模拟

为了深入探究液态 PbF_2 的热力学行为, 本文沿用前期研究中的计算代码和参数设置^[25], 在更宽的温度区间(3000-18000 K)和压强区间(67-412 GPa)内开展系统量子分子动力学(QMD)模拟。电子间的交换关联作用采用广义梯度近似下的PBE泛函进行描述^[37], 原子核与核心电子的势场则通模守恒赝势表征^[38], 该赝势精度和效率都经过大量检验。计算中, 铅(Pb)最外层14个电子, 氟(F)原子外层7个电子被设为价电子, 足够描述温度在3万开尔文以内的所有电子行为。因为此时温度对应的热动能并不能将更内层的电子电离(Pb和F的内壳层电子的电离能至少在32 eV和35 eV, 对应于37万开尔文和40万开尔文), 将内壳层电子采用“冻芯近似”可以保证物理真实的情况下提高计算效率。此外, 我们对不同的平面波基组的截断能和体系原子数目进行了收敛性计算, 发现当能量截断为100 Ry时, 体系的能量和压强基本上已趋于收敛; 选取48个原子就足以满足收敛要求。

为了精准复现 PbF_2 在液态微观结果, 先将初始晶态模型置于20000 K超高温环境下充分熔融弛豫, 该温度远高于其熔点(约为1150 K)。本次模拟体系共计48个原子, 对于离子液体体系, 该尺度可实现径向分布函数等关键结构参数的有效收敛, 同时兼顾了模拟计算效率。

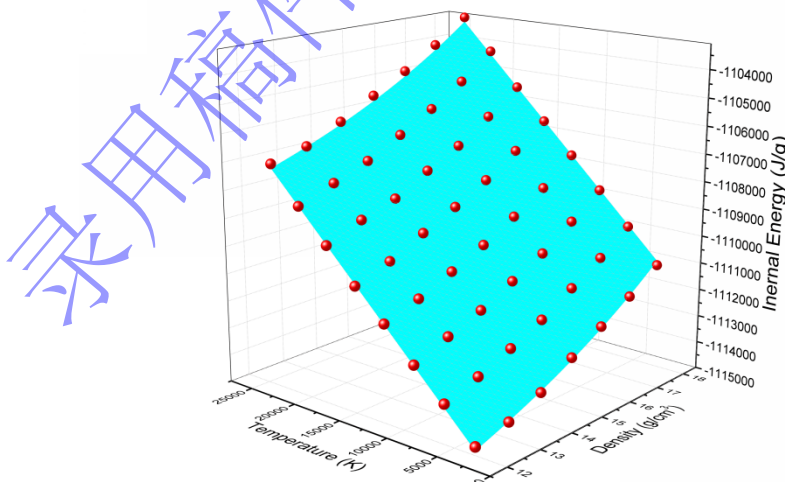


图6 液态 PbF_2 的内能随温度和密度的变化趋势。红色实心球是模拟数据, 曲面是拟合结果。

Fig. 6 Variation trend of internal energy for liquid PbF_2 with temperature and density. Red solid circles represent simulation data, and the curved surface denotes the fitting result. 为了获取宽广温压条件下液态 PbF_2 的内能与压强演化规

律, 本研究设将模拟温度拓展至 3000 - 24000 K, 步长为 3000 K; 结合高压物理实验背景, 体系密度取值范围设定为 12 - 18 g/cm³, 梯度间隔为 1 g/cm³。液态 PbF₂内能随密度、温度的变化趋势如图 6 所示, 图中红色实心球为模拟数据, 三维曲面为利用公式 (4) 的拟合结果:

$$E(\rho, T) = E(\rho, T_r) - C_V(T_r - T) \quad (4)$$

式中, $E(\rho, T_r)$ 为在参考温度 $T_r=18000$ K 时体系的内能, 它与密度呈指数函数关系:

$$E(\rho, T_r) = -1.11245 \times 10^6 + 627.63 \cdot e^{(\rho/7.47356)} \quad (5)$$

C_V 为液态 PbF₂的定容比热, 拟合结果为 $C_V=3.615R/(\mu/m)$, 其中 R 为气体常数, μ 为摩尔质量, m 为分子中的原子个数。

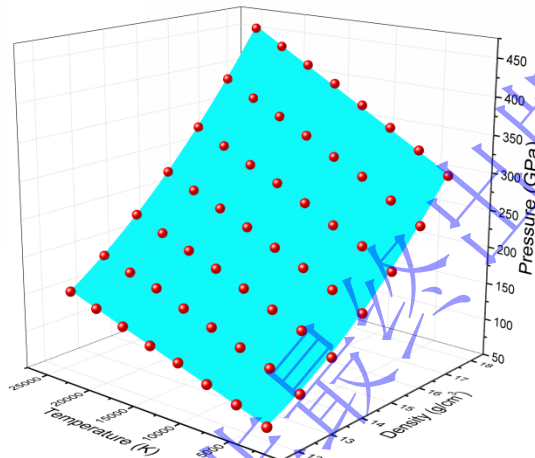


图 7 液态 PbF₂的压强随温度和密度的变化趋势。红色实心球是模拟数据, 曲面是拟合结果。

Fig. 7 Variation trend of pressure for liquid PbF₂ with temperature and density. Red solid circles represent simulation data, and the curved surface denotes the fitting result.

图 7 为液态 PbF₂的压强随温度和密度的变化趋势, 红色实心球是模拟数据, 拟合曲面由公式 (6) 得到:

$$P(\rho, T) = P(\rho, T_r) - \gamma \rho \int_{T_r}^T C_V dT \quad (6)$$

$P(\rho, T_r)$ 为 $T_r=18000$ K 时液态 PbF₂的等温状态方程, 本文用修改的 Vinet 方程进行拟合

$$P = 3K_r x^{-2}(1-x) \exp\left[\frac{3}{2}(K'_r - 1)(1-x)\right] + P_r \quad (7)$$

$$x = (\rho_r / \rho)^{1/3} \quad (8)$$

式中 P_r 和 ρ_r 分别为参考压强和参考密度。本文选取温度为 18000 K 时液态 PbF₂的密度 $\rho_r=12$ g/cm³ 和压强 $P_r=133.6$ GPa 为参考点。 K_r 和 K'_r 分别为在该压强和温度下的体模量及其对压强的一阶导数。利用公式 (7) 拟合可快速收敛, 得到的最优拟合参数为 $K_r=343.3(7.2)$ GPa、 $K'_r=3.56(12)$ 。公式 (6)

式中 γ 为 Grüneisen 参数。忽略自由电子的贡献, γ 仅为密度的单值函数:

$$\gamma = \gamma_0 (\rho_0 / \rho)^q \quad (9)$$

下标“0”代表常温常压条件。联立公式 (6-9) 对全区间数据进行拟合, 最优拟合参数为 $\gamma_0=0.85(3)$, $q=-0.35(5)$ 。联立公式 (4) 和公式 (6), 可实现任意给定温度、密度条件下的内能与压强的定量求解。进一步结合 Rankine-Hugoniot 方程^[39], 可得到冲击加载下液态 PbF₂ 的 Hugoniot 数据:

$$E - E_0 = 0.5(P + P_0)(V - V_0) \quad (10)$$

其中 $V=1/\rho$ 为比容, 下标 0 表示室温常压。在给定密度和压强条件下液态 PbF₂ 的声速则通过以下公式计算^[13]:

$$C_s^2 = -V^2 \left(\frac{\partial P}{\partial V} \right)_{V,T} + \gamma^2 C_V T \quad (11)$$

3 结果与讨论

3.1 Hugoniot 数据和声速

表 2 汇总了 PbF₂ 的 D_s , U_p , P_H , ρ , C_s 和 T 等关键物性参数, 其中括号内的数字表示误差, 与实验值最后一位对齐。误差主要来自样品厚度、飞片的 Hugoniot 参数、高温计和 DISAR 给出的稀疏波追赶上冲击波的时间差等。图 8(a)展示了实验测量的 D_s 随 U_p 变化趋势, 图 8(b)展示了 PbF₂ 的压强随密度的变化趋势, 本文最新测数据与团队之前实验结果^[25]高度重合, 模拟结果与实验结果也吻合良好。结合之前的研究结果^[25], 可确定 PbF₂ 在高于 56 GPa 时转变为液态。对液相区内的 D_s - U_p 进行线性拟合, 得到的 Hugoniot 参数为: $C_0=2.214(34)$ km/s, $S=1.465(13)$ 。图 9 对比了液态 PbF₂ 声速的实验测量值和模拟结果, 二者高度一致。在高压下, McCoy 等人发现液态铜的 C_s 与 U_p 之间呈线性关系^[9], 本研究发现液态 PbF₂ 的声速也具有相同特征。

$$C_s = 2.881(57) + 1.144(24)U_p \quad (12)$$

其线性拟合截距为 2.881 km/s, 与 PbF₂ 在常压条件下的体声速 2.854 km/s 基本吻合^[40], 有效验证了本文实验数据的准确性与可靠性。

表2 冲击加载下PbF₂ 的实验结果。

Table 2 The experimental data of PbF₂ under shock compression

No.	Flyer	W (km/s)	D_s (km/s)	U_p (km/s)	P_H (GPa)	ρ (g/cm ³)	C_s (km/s)	T (kK)
0527	Ta	3.612(18)	5.684(22)	2.353(15)	103.5(8)	13.21(7)	5.61(7)	4.65(30)
0531	Ta	4.088(20)	6.085(25)	2.644(17)	124.5(10)	13.69(8)	5.95(8)	5.61(40)
0605	Ta	3.278(16)	5.385(20)	2.150(13)	89.6(6)	12.88(6)	5.37(6)	3.67(11)
0627	Ta	4.620(23)	6.570(22)	2.963(15)	150.6(9)	14.10(7)	6.28(8)	6.29(46)
0628	Ta	4.937(25)	6.855(32)	3.152(21)	167.2(14)	14.33(10)	6.53(11)	7.73(29)
0701	Ta	5.402(27)	7.218(35)	3.436(23)	191.9(16)	14.77(11)	6.78(11)	9.00(77)
0702	Cu	3.336(17)	5.081(19)	1.931(13)	75.9(6)	12.48(6)	5.05(5)	3.10(6)
0704	Ta	5.506(28)	7.315(35)	3.497(23)	198.0(16)	14.83(11)	6.82(15)	9.22(52)
0710	Cu	2.971(15)	4.781(16)	1.733(11)	64.1(5)	12.14(5)	4.88(5)	2.63(4)
0715	Cu	4.247(21)	5.775(23)	2.426(15)	108.4(8)	13.34(7)	5.62(6)	4.77(36)

注:
 $W, D_s,$
 $U_p, P_H,$
 ρ, C_s
和 T 分
别代
表飞

片速度、冲击波速度、粒子速度、冲击压强、压缩密度、欧拉声速和冲击温度。括号里的数字代表误差，与实测数据的最后一位对齐。

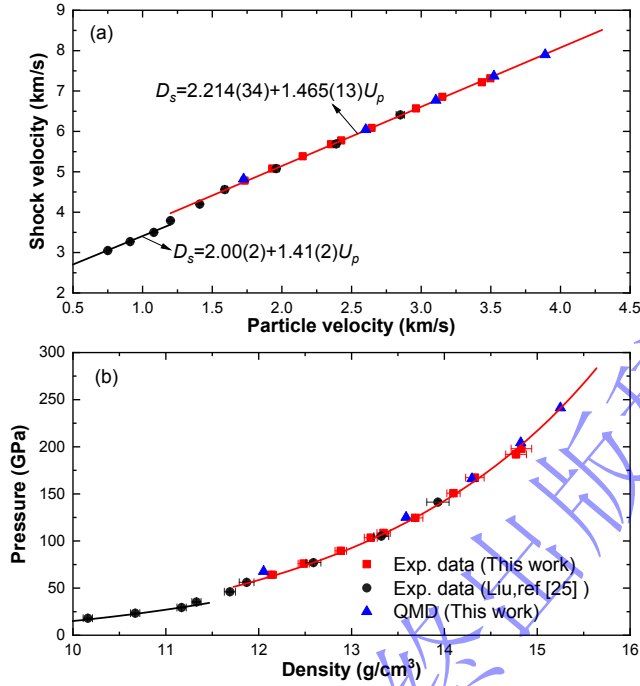


图 8 PbF_2 的 Hugoniot 数据。(a) 冲击波速度与粒子速度的关系，以及 (b) 压力与密度的关系。红线是根据拟合的 Hugoniot 参数计算结果。

Fig.8 Measured Hugoniot data for PbF_2 , plotting (a) shock velocity as a function of particle velocity and (b) pressure as a function of density. The red line corresponds to calculated results based on the fitted Hugoniot parameters.

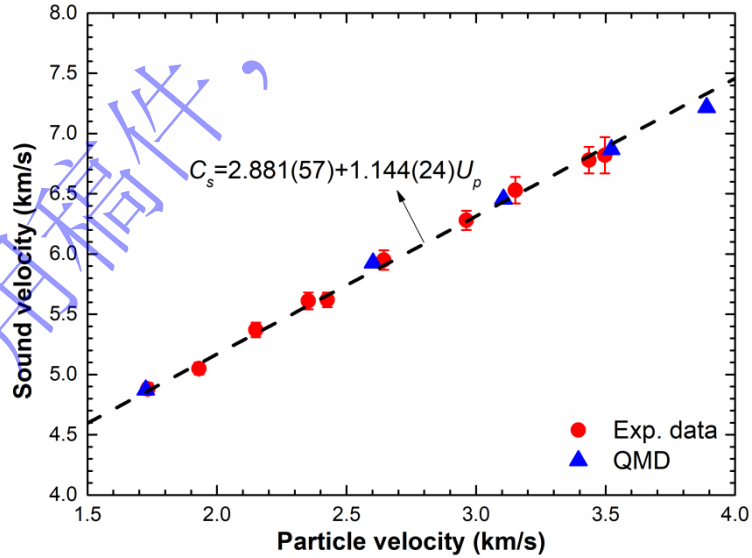


图 9 冲击加载下 PbF_2 的声速。虚线线性拟合结果。

Fig. 9 Sound velocity of shocked PbF_2 . The dashed line is a linear fit to the experimental data based on the above measured sound velocity data, the Grüneisen parameter γ of liquid PbF_2 can be directly solved by formula (13):

$$C_s^2 = -V^2 \left(\frac{dP}{dV} \right)_H \left[1 - \left(\frac{\gamma}{V} \right) \left(1 - \frac{V}{V_0} \right) \frac{V_0}{2} \right] + V^2 \left(\frac{\gamma}{V} \right) \frac{P}{2} \quad (13)$$

图 10 展示了 γ 的实验测量结果与 QMD 模拟结果，两组数据虽然存在小幅偏差。鉴于 γ 对声速变化具有高度敏感性，该偏差大小是可以接受的。利用公式 (9) 对实验数据进行拟合，得到 $\gamma_0=0.78(6)$ 和 $q=-0.64(13)$ 。通常情况下， γ 随压缩密度增大而减小，即 q 大于零，因此 q 值为负值时较为少见。已有研究指出，部分液态硅酸盐和二氧化硅体系中同样存在 γ 随密度增大而上升的反常规律，该现象被解释为 Si-O 配位数的连续增加^[10, 41-43]。液态 PbF_2 的 γ 值反常变化是否与 Pb-F 配位数和局域结构变化，还需要理论进一步研究。

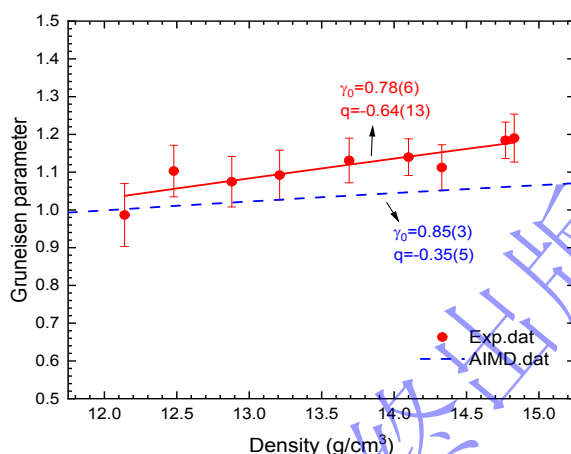


图 10 Grüneisen 参数的实验和理论模拟结果。

Fig. 10 The experimental data and simulated results of the Grüneisen parameter.

3.2 高压下 PbF_2 的金属化相变

除高阻抗特性， PbF_2 还具备另一核心优势：当冲击压强超过 89.6 GPa 时，能够用 DISAR 系统直接测量 PbF_2 的冲击波速度与稀疏波追赶上冲击波的时间，为高精度测量其它材料声速提供关键实验支撑。实验结果显示，当冲击压力超过 75.9 GPa 时（实验 0702）， PbF_2 冲击波阵面可以反射激光信号，但信号强度较弱（图 11 (a)）；冲击压强提升至 89.6 GPa（实验 0605），反射的激光信号显著增强（图 11(b)）。这一现象表明，强冲击压缩条件下， PbF_2 发生压力诱导金属化相变。

为进一步明确高压下液态 PbF_2 的金属化行为，基于 QMD 方法，模拟获得了在 0、63、92、137 GPa 冲击压强下 PbF_2 的电子态密度 (DOS) 分布（图 12）。在 0 压下，费米能级处态密度为 0，价带与导带间存在显著带隙，表明常温常压下 PbF_2 是典型绝缘体；当压强为 63 GPa，带隙显著收窄，费米能级处仍无电子占据，液态 PbF_2 呈现半导体特征；当压强升至 92 GPa 及以上，带隙完全闭合，费米能级处态密度持续增大，证实液态 PbF_2 完全金属化。结合实验观测和理论模拟结果，89.6 GPa 时为液态 PbF_2 金属化相变临界压强。

冲击诱导金属化相变是高压材料的普遍现象，并非 PbF_2 独有。例如， α -石英 (SiO_2) 在 90–100 GPa 以上出现金属化，其冲击波阵面能够反射激光信号，且具有完备的 Hugoniot 曲线和等熵卸载曲线，常作为激光加载实验的标准阻抗匹配材料^[44, 45]。但受限于低冲击阻抗与复杂的相变行为， α -石英无法适配二级轻气炮实验装置，应用场景受限。

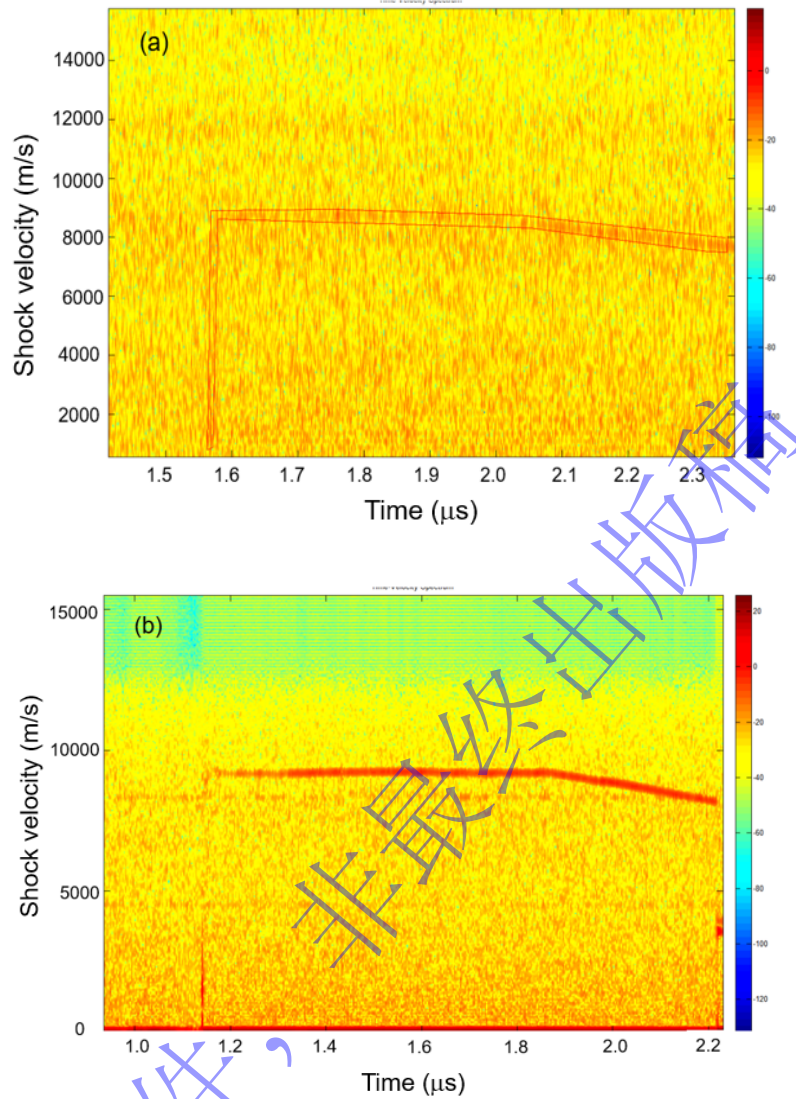


图 11 实验 DISAR 探测到来自冲击波阵面反射的激光信号经傅里叶变换后的结果。(a)实验 0702 的冲击波阵面反射信号, 冲击压强为 75.9 GPa。(b) 实验 0605 的冲击波阵面反射信号, 冲击压强为 89.6 GPa。

Figure 11 Fourier-transformed results of laser signals reflected from the shock front detected by experimental DISAR. (a) Reflected signal of shot 0702 at a shock pressure of 75.9 GPa.(b) Reflected signal of shot 0605 at a shock pressure of 89.6 GPa.

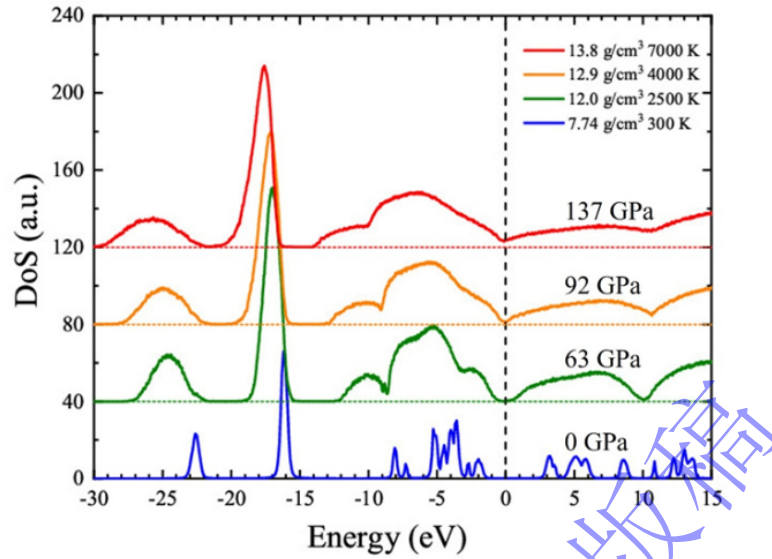


图 12 在特定的压力 - 温度条件下计算的 PbF_2 电子态密度 (DOS)

Fig.12 Calculated electronic density of states (DOS) of PbF_2 at several pressure-temperature conditions

3.3 PbF_2 的冲击温度

图 13 展示了冲击波温度的实验测量结果和模拟结果的对比。当冲击压强低于~130 GPa 时，实验测得的冲击温度与 QMD 数据吻合良好；但在更高压强条件下，二者出现明显偏差。该偏差产生可能有两个原因：当冲击温度高于 5610 K（实验 0531），光谱辐射亮度峰值所对应的波长向紫外波段偏移；该偏差的产生可能源于 QMD 模拟未充分考虑非简谐效应与电子贡献，进而低估了材料的定容热容。因为液态 PbF_2 在~89.6 GPa 发生了金属化转变，所以在更高的压强下，除了考虑晶格对定容比热的贡献 (C_{VN}) 外，还必须考虑电子对定容比热的贡献 (C_{VE}) [1]：

$$C_V = C_{VN} + C_{VE} = \frac{3R}{\mu/m} + \beta_0 \left(\frac{\rho_0}{\rho} \right)^\kappa T \quad (14)$$

其中 β_0 和 κ 为常数，和费米面上的电子态密度有关。根据已有理论计算结果，高温高压下铁的 $\beta_0=0.091 \text{ kg}^{-1}\text{K}^{-2}$ ， $\kappa=1.34$ [46]。假设金属化后 PbF_2 的 κ 值与铁近似相等，我们利用热力学模型（公式 14-18）[1] 计算了 PbF_2 在的冲击温度。发现当 $\beta_0=0.08 \text{ kg}^{-1}\text{K}^{-2}$ 时，计算结果与实验测量结果吻合度高。若仅用 QMD 模拟给出的定容比容 $C_V=3.615 R$ ，则计算的冲击温度与 QMD 模拟结果一致。该对比结果证实了我们的猜测：即 QMD 模拟未充分考虑非简谐效应与电子贡献，导致对 PbF_2 定容比热的低估，进而引发高压区间温度模拟值与实验值的偏差。进一步分析可知，在 6000-15000 K 温度范围内， PbF_2 的电子对比热的贡献为 2~4.5 R，该值已经接近甚至超过晶格对定容比热的贡献 (3R)，因此在高温高压实验与模拟中，必须考虑电子对定容比热的贡献，才能保证冲击温度计算结果的准确性。对弈理论模拟结果与实验测量的冲击温度产生的差异，究竟是哪种因素占主导作用，还需后续进一步深入研究。

$$dT = -T \left(\frac{\gamma}{V} \right) dV + \frac{1}{2C_V} \left[(V_0 - V) \frac{dP}{dV} + (P - P_0) \right] dV \quad (15)$$

$$P = \rho_0 C_0^2 \eta / (1 - S\eta)^2 \quad (16)$$

$$\frac{dP}{dV} = -\rho_0^2 C_0^2 (1 + \lambda \eta) / (1 - S\eta)^3 \quad (17)$$

$$\eta = 1 - \rho_0 / \rho \quad (18)$$

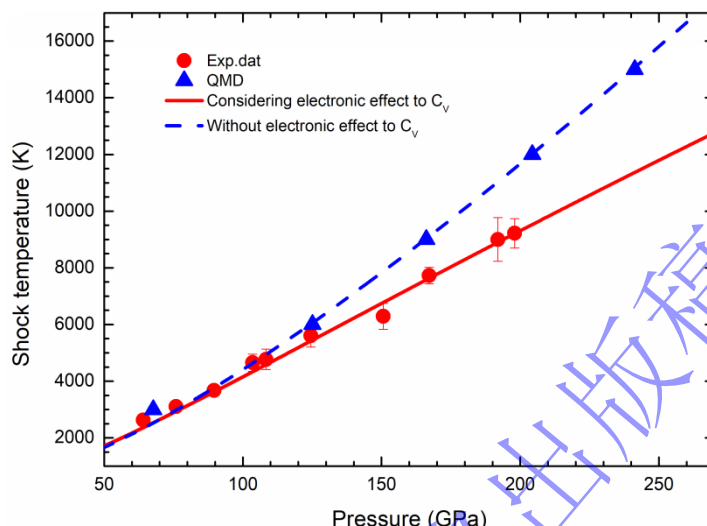


图 13 PbF₂的冲击温度随压强变化趋势。红色实心圆为实验数据，蓝色实心三角形为 QMD 模拟数据。利用热力学模型（公式 15），考虑电子对比热的贡献，计算的冲击温度如图中红色实线所示；用 QMD 给出的比热，计算的冲击温度如图中的蓝色虚线所示。

Fig.13 Variation of shock temperature of PbF₂ with pressure. Red solid circles denote experimental data, and blue solid triangles represent QMD simulation data. The shock temperatures calculated by the thermodynamic model (Equation 15) with consideration of electronic contributions to heat capacity are shown as the red solid line; the shock temperatures calculated using the heat capacity from QMD are presented as the blue dashed line.

4 结论

本文在 64-198 GPa 的压强范围内，系统开展了 PbF₂ 单晶的 Hugoniot 状态方程、声速及冲击温度的实验和理论模拟研究，实验测得的 Hugoniot 数据和声速结果与理论模拟结果高度吻合，并且沿着 Hugoniot 线液态 PbF₂ 的声速随粒子速度线性增大。研究证实，冲击压强超过约 89.6 GPa 时，液态 PbF₂ 发生压力诱导金属化相变。该金属化特征可实现激光干涉测速系统对 PbF₂ 内部冲击波速度的直接精准测量，能够为冲击加载条件下其它材料的声速表征提供关键技术支撑。综上，PbF₂ 具备优异的综合物性，是一类极具应用潜力的高阻抗标准灰体窗口材料。

致谢 感谢国家自然科学基金面上项目（42274124）的资助，感谢课题组吴也教授和徐丰教授给与的建议。

参考文献

- [1] BROWN J M, MCQUEEN R G. Elasticity for shocked iron between 77 GPa and 400 GPa [J]. Journal of Geophysical Research: Solid Earth, 1986, 91(B7): 7485-7494. DOI: 10.1029/JB091iB07p07485.
- [2] HU J B, ZHOU X M, TAN H, et al. Successive phase transitions of tin under shock compression [J]. Applied Physics Letters, 2008, 92(11): 111905. DOI: 10.1063/1.2895756.

- [3] BEASON M T, JENSEN B J, CROCKETT S D. Shock melting and the hcp-bcc phase boundary of Mg under dynamic loading [J]. *Physical Review B*, 2021, 104(14): 144106. DOI: 10.1103/PhysRevB.104.144106.
- [4] HAWRELIAK J A, WINEY J M, TOYODA Y, et al. Shock-induced melting of [100] lithium fluoride: Sound speed and Hugoniot measurements to 230 GPa [J]. *Physical Review B*, 2023, 107(1): 014104. DOI: 10.1103/PhysRevB.107.014104.
- [5] NGUYEN J H, HOLMES N C. Melting of iron at the physical conditions of the Earth's core [J]. *Nature*, 2004, 427(6972): 339-342. DOI: 10.1038/nature02248.
- [6] BROWN J M, SHANER J W. Rarefaction velocities in shocked tantalum and the high-pressure melting point [C]// ASAY J R, GRAHAM R A, STRAUB G K. **Shock Waves in Condensed Matter 1983: Proceedings of the American Physical Society Topical Conference Held in Santa Fe**, New Mexico, July 18-21, 1983. Amsterdam: Elsevier, 1984: 91-94.
- [7] MCCOY C A, KNUDSON M D, DESJARLAIS M P. Sound velocity, shear modulus, and shock melting of beryllium along the Hugoniot [J]. *Physical Review B*, 2019, 100(5): 054107. DOI: 10.1103/PhysRevB.100.054107.
- [8] SONG P, CAI L-C, TAO T-J, et al. Melting along the Hugoniot and solid phase transition for Sn via sound velocity measurements [J]. *Journal of Applied Physics*, 2016, 120(19): 195901. DOI: 10.1063/1.4967515.
- [9] MCCOY C A, KNUDSON M D, ROOT S. Absolute measurement of the Hugoniot and sound velocity of liquid copper at multimegabar pressures [J]. *Physical Review B*, 2017, 96(17): 174109. DOI: 10.1103/PhysRevB.96.174109.
- [10] OCAMPO I, WINEY J M, DUFFY T S. Sound velocity and Grüneisen parameter in shock-melted silica at deep earth pressures [J]. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 2025, 130(9): e2025JB031366. DOI: 10.1029/2025JB031366.
- [11] HUANG S X, WU X, QIN S. Ultrahigh-pressure phase transitions in FeS₂ and FeO₂: Implications for super-Earths' deep interior [J]. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 2018, 123(1): 277-284. DOI: 10.1002/2017JB014766.
- [12] HUANG H J, FAN L L, LIU X, et al. Inner core composition paradox revealed by sound velocities of Fe and Fe-Si alloy [J]. *Nature Communications*, 2022, 13(1): 616. DOI: 10.1038/s41467-022-28438-8.
- [13] HUANG H J, FEI Y W, CAI L C, et al. Evidence for an oxygen-depleted liquid outer core of the Earth [J]. *Nature*, 2011, 479(7374): 513-516. DOI: 10.1038/nature10621.
- [14] HIROSE K, LABROSSE S, HERNLUND J. Composition and state of the core [J]. *Annual Review of Earth and Planetary Sciences*, 2013, 41: 657-691. DOI: 10.1146/annurev-earth-050212-124007.
- [15] ZHANG Y J, WANG Y, HUANG Y Q, et al. Collective motion in hcp-Fe at Earth's inner core conditions [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2023, 120(41): e2309952120. DOI: 10.1073/pnas.2309952120.
- [16] HAWRELIAK J A, WINEY J M, TOYODA Y, et al. Sound speed determination in copper shock compressed to 190 GPa [J]. *Journal of Applied Physics*, 2024, 136(16): 165902. DOI: 10.1063/5.0266765.
- [17] DUFFY T S, AHRENS T J. Compressional sound velocity, equation of state, and constitutive response of shock-compressed magnesium oxide [J]. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 1995, 100(B1): 529-542. DOI: 10.1029/94JB02065.
- [18] YOUNG G, LIU X, LENG C W, et al. Refractive index of [100] lithium fluoride under shock pressures up to 151 GPa [J]. *AIP Advances*, 2018, 8(12): 125114. DOI: 10.1063/1.5065543.
- [19] ZHOU X M, NELLIS W J, LI J, et al. Optical emission, shock-induced opacity, temperatures, and melting of Gd₃Ga₅O₁₂ single crystals shock-compressed from 41 to 290 GPa [J]. *Journal of Applied Physics*, 2015, 118(5): 053508. DOI: 10.1063/1.4928081.
- [20] MASHIMO T, CHAU R, ZHANG Y, et al. Transition to a virtually incompressible oxide phase at a shock pressure of 120 GPa (1.2 Mbar): Gd₃Ga₅O₁₂ [J]. *Physical Review Letters*, 2006, 96(10): 105504. DOI: 10.1103/PhysRevLett.96.105504.
- [21] CAO X X, WANG Y, LI X Z, et al. Refractive index and phase transformation of sapphire under shock pressures up to 210 GPa [J]. *Journal of Applied Physics*, 2017, 121(11): 115902. DOI: 10.1063/1.4978746.

- [22] LI J, ZHOU X M, ZHU W J, et al. A shock-induced phase transformation in a LiTaO₃ crystal [J]. *Journal of Applied Physics*, 2007, 102(8): 083503. DOI: 10.1063/1.2794721.
- [23] FURNISH M D, ELERT M, RUSSELL T P, et al., eds. **Shock Compression of Condensed Matter - 2005**: Proceedings of the Conference of the American Physical Society Topical Group on Shock Compression of Condensed Matter, Held in Baltimore, Maryland, 31 July – 5 August 2005 [C]. Melville, New York: American Institute of Physics, 2006.
- [24] CAO X X, YU Y H, HE H Z, et al. Optical properties of transparent ceramics under shock compression: Correlation mechanism and design strategies [J]. *Matter and Radiation at Extremes*, 2025, 10(6): 067801. DOI: 10.1063/4.0000236.
- [25] LIU X, GAO C, MASHIMO T, et al. Shock-induced polymorphic transitions of PbF₂ up to 1 TPa and their implications for the universal behavior of shocked AX₂ compounds [J]. *Physical Review B*, 2021, 103(9): 094106. DOI: 10.1103/PhysRevB.103.094106.
- [26] ERSKINE D. High pressure Hugoniot of sapphire [C]// SCHMIDT S C, SHANER J W, SAMARA G A, et al. **High-Pressure Science and Technology – 1993**: Proceedings of the American Physical Society Topical Conference on High-Pressure Science and Technology, Colorado Springs, Colorado, June 28 – July 2, 1993. New York: AIP Press, 1994: 141-143.
- [27] MARSH S P. LASL shock Hugoniot data [M]. Los Angeles: University of California Press, 1980: 1-658.
- [28] ZHOU X M, LIU X, LI J B, et al. Shock-induced decomposition of a high density glass (ZrF₆) [J]. *Journal of Applied Physics*, 2011, 110(1): 013507. DOI: 10.1063/1.3601115.
- [29] HU X J, YANG G, ZHAO B, et al. Shock compression behavior of a mixture of cubic and hexagonal boron nitride [J]. *Journal of Applied Physics*, 2018, 123(17): 175903. DOI: 10.1063/1.5023490.
- [30] WENG J D, TAN H, WANG X, et al. Optical-fiber interferometer for velocity measurements with picosecond resolution [J]. *Applied Physics Letters*, 2006, 89(11): 111101. DOI: 10.1063/1.2335948.
- [31] AKIN M C, NGUYEN J H, BECKWITH M A, et al. Tantalum sound velocity under shock compression [J]. *Journal of Applied Physics*, 2019, 125(14): 145903. DOI: 10.1063/1.5054332.
- [32] XI F, JIN K, CAI L C, et al. Sound velocity of tantalum under shock compression in the 18–142 GPa range [J]. *Journal of Applied Physics*, 2015, 117(18): 185902. DOI: 10.1063/1.5051192.
- [33] HU J B, DAI C D, YU Y Y, et al. Sound velocity measurements of tantalum under shock compression in the 10–110 GPa range [J]. *Journal of Applied Physics*, 2012, 111(3): 033505. DOI: 10.1063/1.3681815.
- [34] 俞宇颖, 谭华, 胡建波, 等. 钽和 LY12 铝的高压声速测量 [J]. *爆炸与冲击*, 2006, 26(6): 486-491. DOI: 10.11883/1001-1455(2006)06-0486-06.
- YU Y Y, TAN H, HU J B, et al. Measurements of sound velocities in shock-compressed tantalum and LY12 Al [J]. *Explosion and Shock Waves*, 2006, 26(6): 486-491. DOI: 10.11883/1001-1455(2006)06-0486-06.
- [35] RIGG P A, SCHARFF R J, HIXSON R S. Sound speed measurements in tantalum using the front surface impact technique [C]// **Journal of Physics: Conference Series**. Volume 500. Bristol: IOP Publishing, 2014: 032018. DOI: 10.1088/1742-6596/500/3/032018.
- [36] MITCHELL A C, NELLIS W J. Shock compression of aluminum, copper, and tantalum [J]. *Journal of Applied Physics*, 1981, 52(5): 3363-3374. DOI: 10.1063/1.329160.
- [37] PERDEW J P, BURKE K, ERNZERHOF M. Generalized gradient approximation made simple [J]. *Physical Review Letters*, 1996, 77(18): 3865-3868. DOI: 10.1103/PhysRevLett.77.3865.
- [38] RAPPE A M, RABE K M, KAXIRAS E, et al. Optimized pseudopotentials [J]. *Physical Review B*, 1990, 41(2): 1227-1230. DOI: 10.1103/PhysRevB.41.1227.
- [39] MEYERS M A. *Dynamic behavior of materials* [M]. Hoboken, NJ: John Wiley & Sons, 1994: 1-668.
- [40] JAMIESON J C, MANGHNANI M H, MATSUI T, et al. Variation of elastic constants of cubic PbF₂ with volume [J]. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 1986, 91(B5): 4643-4649. DOI: 10.1029/JB091iB05p04643.

- [41] ASIMOW P D, AHRENS T J. Shock compression of liquid silicates to 125 GPa: The anorthite-diopside join [J]. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 2010, 115(B10): B10209. DOI: 10.1029/2009JB007145.
- [42] RENGANATHAN P, DUFFY T S, GUPTA Y M. Sound velocities in shock-compressed soda lime glass: Melting and liquid-state response [J]. *Physical Review B*, 2021, 104(1): 014113. DOI: 10.1103/PhysRevB.104.014113.
- [43] DE KOKER N P, STIXRUDE L, KARKI B B. Thermodynamics, structure, dynamics, and freezing of Mg_2SiO_4 liquid at high pressure [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2008, 72(5): 1427-1441. DOI: 10.1016/j.gca.2007.12.019.
- [44] KNUDSON M D, DESJARLAIS M P. Shock compression of quartz to 1.6 TPa: Redefining a pressure standard [J]. *Physical Review Letters*, 2009, 103(22): 225501. DOI: 10.1103/PhysRevLett.103.225501.
- [45] KNUDSON M D, DESJARLAIS M P. Adiabatic release measurements in α -quartz between 300 and 1200 GPa: Characterization of α -quartz as a shock standard in the multimegabar regime [J]. *Physical Review B*, 2013, 88(18): 184107. DOI: 10.1103/PhysRevB.88.184107.
- [46] BONESS D A, BROWN J M, MCMAHAN A K. The electronic thermodynamics of iron under Earth core conditions [J]. *Physics of the Earth and Planetary Interiors*, 1986, 42(4): 227-240. DOI: 10.1016/0031-9201(86)90025-7.