

文章编号 1004-924X(2017)11-2829-06

轻气炮加载下晶格响应的实时 X 射线衍射测量

唐 波^{1,2}, 黑东炜^{2*}, 马 戈², 盛 亮², 周海生², 刘 旭², 夏惊涛², 罗剑辉², 魏福利²

(1. 清华大学 工程物理系, 北京 100084;

2. 西北核技术研究所 强脉冲辐射环境模拟与效应国家重点实验室, 陕西 西安 710024)

摘要:开展了轻气炮加载条件下材料动力学微观响应测量的实验研究。基于脉冲宽度约 25 ns 的商业化闪光 X 射线源, 采用积分式记录设备, 建立了轻气炮加载条件下的实时 X 射线衍射诊断系统。介绍了实时 X 射线衍射测量原理及系统, 讨论了由于冲击过程持续时间短, 且闪光源输出 X 射线脉冲时具有延时和抖动, X 射线脉冲与冲击波到达样品被探测区域难以同步的问题。最后, 提出了采用精细的多层靶结构设计和纳秒响应的压电探针实现探测 X 射线脉冲和冲击波精确同步的方法, 并获得了轻气炮加载下 LiF 晶体峰值压缩状态的实时 X 射线衍射图像。实验结果显示: 加载压力为 2.33 GPa 时, LiF 晶体的晶格形变量为 1.73%。该实验技术为开展轻气炮加载下材料微观特性研究提供了一种有效技术途径。

关键词:实时 X 射线衍射测量; 材料动力学; 微观响应; 晶格形变; 轻气炮加载

中图分类号: O766.3 **文献标识码:** A **doi:** 10.3788/OPE.20172511.2829

Real-time X-ray diffractometry for lattice response measurement under gas-gun loading

TANG Bo^{1,2}, HEI Dong-wei^{2*}, MA Ge², SHENG Liang², ZHOU Hai-sheng²,
LIU Xu², XIA Jing-tao², LUO Jian-hui², WEI Fu-li²

(1. Department of Engineering Physics, Tsinghua University, Beijing 100084, China;

2. State Key Laboratory of Intense Pulsed Radiation Simulation and Effect,
Northwest Institute of Nuclear Technology, Xi'an 710024, China)

* Corresponding author, E-mail: heidw@163.com

Abstract: The microscopic response measurement of material dynamics was researched experimentally under the loading conditions of gas gun loading. Based on a flash X-ray source with the half width of 25 ns, a real-time X-ray diffraction diagnostic system was developed by using integral record devices. The measuring principle of X-ray diffraction system was introduced. Due to the duration of shocked state in the probed region and the output timing jitter of the X-ray source, the difficulty of system synchronization for X-ray pulse and shock wave in arriving probe region was discussed. Finally, the method to realize the synchronization of the X-ray pulse with the shock wave was achieved by utilizing a fine multilayered target and a piezoelectric pin with ns response time, and a real time X-ray diffraction image of LiF in the peak compressed state was obtained under gas-gun loading.

收稿日期: 2017-03-31; 修订日期: 2017-05-04.

基金项目: 装备预先研究基金资助项目 (No. 51311060503)

Experimental results indicate that the lattice compression of LiF is 1.73% when shocked pressure is 2.33 GPa. The experimental technique provides an effective means for research of the microscopic response under a gas-gun loading experiment.

Key words: real-time X-ray diffraction; kinetics of material; microscopic response; lattice deformation; gas-gun loading

1 引言

极端条件下材料结构变化的衍射效应研究是 X 射线衍射技术应用的一个新方向,同时也是材料冲击微观特性诊断最有力的工具之一。实时 X 射线衍射测量技术可以直接探测物质在冲击加载条件下原子的瞬间运动状态。冲击材料的实时 X 射线衍射图像反映了观测材料晶格层面的瞬时微观结构,通过对比分析材料静态和冲击压缩状态的衍射信号可获得冲击弹塑性形变及相变过程的微观机理信息,提升对材料冲击响应的认识和理解。20 世纪 60 年代以来,国外学者围绕冲击材料的 X 射线衍射测量进行了很多探索工作,并在弹塑性形变、冲击相变及高压屈服强度测量等方面取得了大量的研究成果^[1-12]。而我国对实时 X 射线衍射测量技术在冲击动力学领域中的应用研究才刚刚起步,且主要集中于激光加载条件^[13-14]。

轻气炮加载是冲击压缩实验中常用的加载方式,由于飞片与靶样品撞击的速度测量精度高,因此成为冲击波压缩领域精度最好、表征最准确的加载手段^[15]。然而,现有的轻气炮加载条件实验测量方法都是宏观层面的,从晶格层面上理解冲击压缩下材料的响应机理则有待探索。本文基于小型闪光 X 射线源(Scandiflash 公司的 TD-450S 系统)建立了轻气炮加载条件下的实时 X 射线衍射诊断系统,实现了冲击材料的微观动力学响应测量。

2 实时 X 射线衍射测量原理及系统

衍射方向和强度是 X 射线衍射信号的主要特征。其中衍射方向由布拉格定律确定,直接反映了晶体晶胞的大小及形状。实时 X 射线衍射测量通过观测冲击晶体衍射线的方向变化来获取其瞬时晶格信息。冲击加载实验中,利用已知波长的 X 射线照射受冲击的晶体样品,通过测量衍射角的改变量可获得晶体样品的瞬时晶面间距值,测量原理如图 1 所示。由布拉格方程可得晶

面间距改变量 Δd 与衍射角变化量 $\Delta\theta$ 的关系为:

$$\frac{\Delta d}{d_0} = 1 - \frac{\sin \theta_0}{\sin(\theta_0 + \Delta\theta)}, \quad (1)$$

式中 d_0 和 θ_0 分别为初始静态条件下的晶面间距和衍射角。衍射角的改变量对应 X 射线探测器上衍射峰的偏移量,这样就把微观尺度的晶格变化转换为宏观可测量的量。

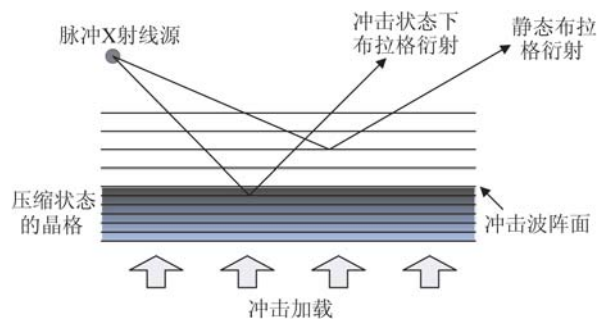


图 1 冲击材料的实时 X 射线衍射测量原理图

Fig. 1 Schematic view of real-time X-ray diffraction measurement of shocked solids

轻气炮加载下的实时 X 射线衍射测量系统如图 2 所示,飞片加速至预定速度后与待测晶体样品碰撞,在样品内部形成冲击波使它处于高压形变状态。X 射线探测脉冲由商业化闪光 X 射线源输出,X 射线源的电压为 160~480 kV,峰值电流为 10 kA。闪光 X 射线管采用 Mo 作为阳极材料,实验中利用 Mo 的 K 系谱线($\lambda=0.071$ nm)进行晶体样品瞬时结构的衍射分析。系统图像记录端使用空间分辨率为 100 μm 的成像板,成像板与入射 X 射线垂直且与晶体中心的距离为 257 mm。由于冲击材料的衍射数据是在闪光 X 射线脉冲持续时间(约 25 ns)内的积分结果,因此为了获得可定量分析的实时 X 射线衍射数据,系统需在合适时刻触发闪光 X 射线源以保证 X 射线曝光过程中样品被测区域处于稳定的压缩状态,如图 3 所示。闪光灯被触发后,经过一定延迟时间(约 800 ns)将输出 X 射线脉冲入射到样品表面,并在图像记录端形成瞬时 X 射线衍射图像。该图像即待测样品冲击压缩状态的衍射结果,对应其冲

击瞬时微观特性。实验使用的 X 射线窗口材料为厚 100 μm 的聚酯薄膜,对应 Mo-K α 线的透过率为 99%。

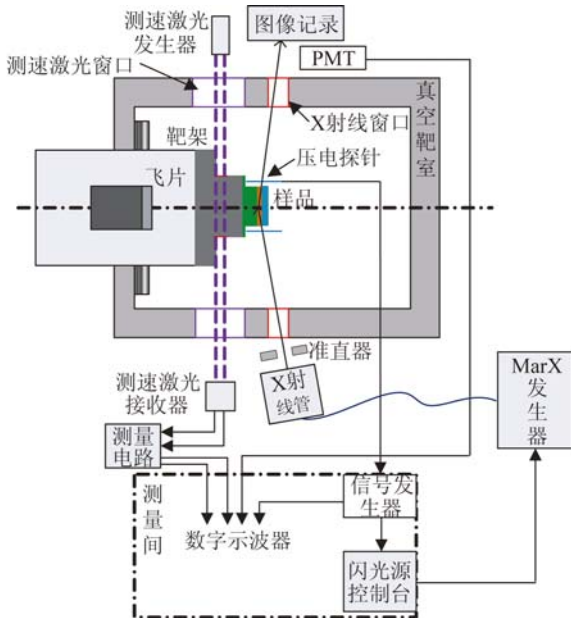


图 2 轻气炮加载下实时 X 射线衍射测量系统

Fig. 2 Real-time X-ray diffraction measurement system under gas-gun loading

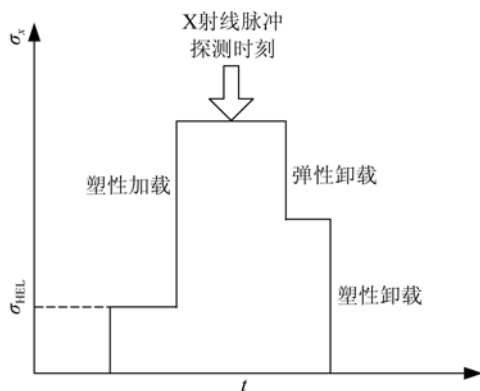


图 3 X 射线脉冲与冲击波的时间关系

Fig. 3 Time relationship of X-ray pulse and shock wave

3 实验关键技术

为了实现轻气炮加载条件下的实时 X 射线衍射测量,需解决 X 射线脉冲与冲击波到达样品被探测区域的同步控制问题。系统精确同步的难点在于:(1)闪光灯输出 X 射线脉冲的延时与抖动,主要受高压发生器中气体开关工作状态的影响;(2)冲击波到达探测区域的时间不确定性,主

要来自于飞片的实际速度与预定速度的偏差,约为 5%~10%;(3)冲击过程持续时间短,通常为百纳秒量级。这些因素使得 X 射线脉冲与冲击波的同步技术成为衍射测量实验的关键。如图 4 所示,实验采用的多层样品靶由四组材料组合而成。由撞击面开始,依次为缓冲层 1、缓冲层 2、样品 LiF(100) 以及背板层。缓冲层材料为 z 切石英,其冲击阻抗高于 LiF 晶体样品。调整缓冲层 2 的厚度可以控制冲击波到达 LiF 样品被测区域的时间。晶体样品后表面的背板层用以延伸样品被测区域冲击状态的持续时间,样品与背板层分界面的压力可维持到卸载波从背板层自由面到达分界面。背板层应为 X 射线透过率高的非晶材料,同时冲击波速度慢,以使最薄的背板层得到最大的波传播时长。实验选择 Alfa Aesar 公司的 I 型玻璃碳作为背板层,其冲击阻抗比 LiF 晶体样品低。

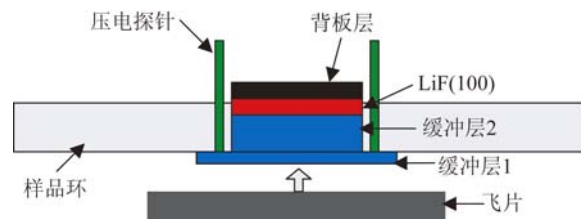


图 4 靶结构示意图

Fig. 4 Configuration of target

实验中利用 PZT 压电探针提供闪光 X 射线源触发信号,冲击加载下其响应时间小于 10 ns。探针端面与缓冲层 2 的前表面平齐,同时紧贴缓冲层 1 的后表面。当冲击波到达“缓冲层 1/缓冲层 2”界面时,压电探针产生电信号用以触发信号发生器。定义探针输出信号的时刻为参考零时刻,系统时序图如图 5(a)所示。飞片与样品靶碰撞后产生冲击波传入缓冲层 1 中。 t_1 时刻缓冲层 2 中的冲击波到达“缓冲层 2/LiF”界面,向 LiF 中透射初始冲击波,入射压力为 σ_m ,同时向缓冲层 2 中反射稀疏波。 t_2 时刻 LiF 中的初始冲击波到达“LiF/玻璃碳”界面,向玻璃碳中透射冲击波,同时向处于冲击态的 LiF 中反射稀疏波,经该稀疏波卸载后的压力为 σ_{ref} 。当玻璃碳中的冲击波到达其自由面,即 t_3 时刻,将向玻璃碳中反射一个自由面卸载波,自由面卸载波到达“LiF/玻璃碳”界面的时刻为 t_4 。图 5(b)为 LiF 样品 X 射线穿

透深度处的压力-时间曲线,其中 AB 段为初始冲击波压缩,CD 段为“LiF/玻璃碳”界面反射稀疏波卸载后的压力状态。X 射线脉冲应在 LiF 处于稳定压缩状态,即 CD 段曝光。

实验中根据闪光灯延时 t_{delay} 及预估的 z 切石英的冲击波速度来确定缓冲层 2 的厚度,它决定了闪光 X 射线探测时 LiF 样品被测区域所处的压缩状态。背板层厚度决定了 CD 段的持续时间 t_{CD} ,实验中应满足 t_{CD} 大于 X 射线脉冲持续时间 $t_{\text{X-ray}}$ 与抖动时间 t_{jitter} 。

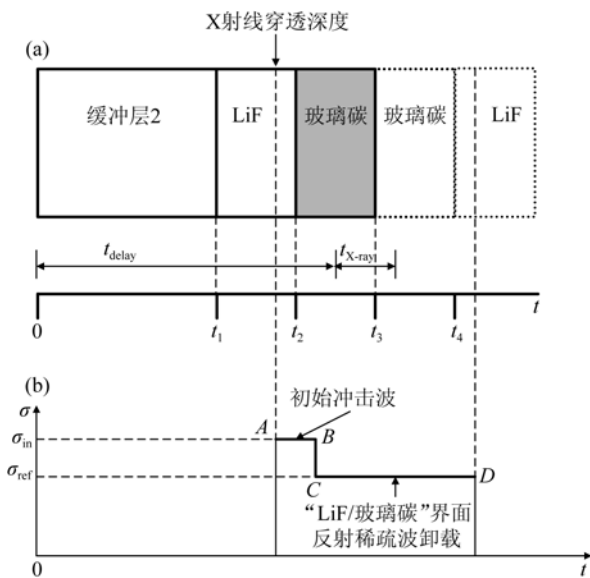


图 5 (a)实时 X 射线衍射测量系统时序图;(b)LiF 中 X 射线穿透深度处的压力-时间曲线

Fig. 5 (a) Time sequence of real-time X-ray diffraction measurement system;(b) Stress history at X-ray probe depth of LiF

4 冲击加载实验与结果

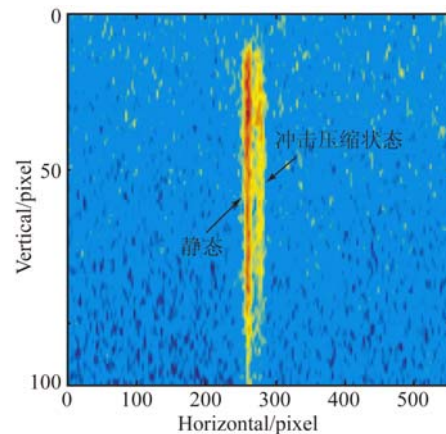
冲击加载实验在西北核技术研究所 $\Phi 57$ mm 口径的一级轻气炮上进行,利用平面碰撞技术实现对 LiF 样品的一维应变加载,加载方向沿[100]晶向。飞片材料为 6061-T6 Al,尺寸为 $\Phi 56$ mm \times 3 mm。样品靶尺寸如表 1 所示,利用透明环氧树脂进行各层粘接,并保证粘接层的厚度为微米量级。样品环材料为有机玻璃,用于固定样品周边的压电探针。实验中利用光电倍增管监测 X 射线脉冲的精确曝光时刻。

表 1 样品靶尺寸

Tab. 1 Size of sample (mm)

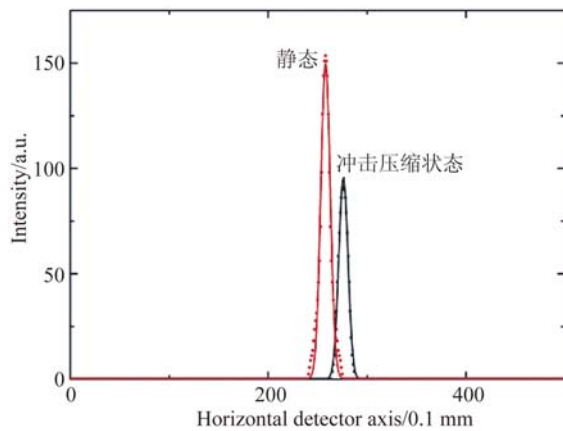
靶组成	直径	厚度
缓冲层 1	35	1
缓冲层 2	20	3.2~3.8(可调整)
LiF(100)	20	1
背板层	20	1

撞击速度为 492 m/s 时 LiF 晶体的实时 X 射线衍射结果如图 6 所示。根据材料雨贡纽参数和阻抗匹配技术计算得到 X 射线曝光时 LiF 的加载压力为 2.33 GPa。图 6(a)中的衍射条纹分别对应静态和冲击压缩状态,图 6(b)为衍射谱线的高斯拟合结果。测量系统的时序监测结果如图 7 所示,图 7 表明 X 射线曝光时 LiF 处于稳定压缩状态。



(a) X 射线衍射图像

(a) X-ray diffraction images



(b) 衍射谱线的高斯拟合结果

(b) Gauss fitting of diffraction data

图 6 轻气炮加载下的实时 X 射线衍射测量结果

Fig. 6 Real-time X-ray diffraction data under gas-gun loading

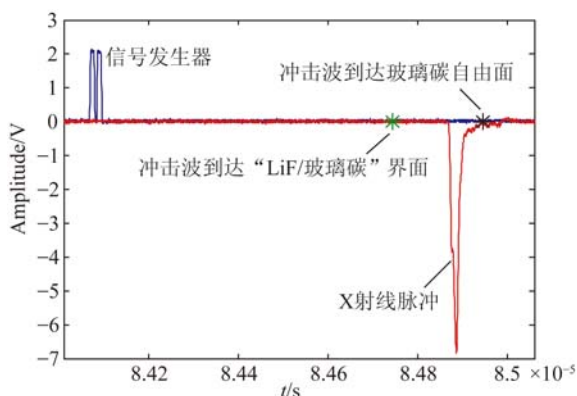


图 7 轻气炮加载下实时 X 射线衍射测量系统的时序监测结果

Fig. 7 Time sequence of real-time X-ray diffraction system under gas-gun loading

实验测得的衍射峰偏移量扣除晶体样品宏观位移的影响后,可以得到冲击晶格变形所引起的峰偏移及相应的衍射角变化 $\Delta\theta=0.18^\circ$ 。闪光

X 射线衍射测量结果表明,沿[100]方向加载 LiF 晶体,加载压力为 2.33 GPa 时,晶格被压缩,形变量为 1.73%。

5 结 论

小型闪光 X 射线源具有易使用、成本低、可商业购置及易移动等突出优点。本文立足于轻气炮加载条件,采用闪光 X 射线源和积分型 X 射线探测器建立了实时 X 射线衍射测量系统,解决了冲击波与闪光 X 射线脉冲同步的难题,获得了平面冲击压缩下 LiF 单晶的实时 X 射线衍射数据及晶格形变量,为材料一维应变特性的研究提供了微观诊断方法。目前,该系统仅能获取冲击材料峰值压缩状态的衍射信息,为了获取冲击压缩过程的序列图像,下一步考虑采用具有 ns 甚至亚 ns 时间分辨能力的 X 射线探测器,以提升系统的诊断能力。

参考文献:

- [1] WARK J S, WHITLOCK R R, HAUER A, *et al.*. Shock launching in silicon studied with use of pulsed X-ray diffraction [J]. *Physical Review B*, 1987, 35(17): 9391-9394.
- [2] WARK J S, WHITLOCK R R, HAUER A A, *et al.*. Subnanosecond X-ray diffraction from laser-shocked crystals [J]. *Physical Review B*, 1989, 40(8): 5705-5715.
- [3] RIGG P A, GUPTA Y M. Real-time X-ray diffraction to examine elastic-plastic deformation in shocked lithium fluoride crystals [J]. *Applied Physics Letters*, 1998, 73(12): 1655-1657.
- [4] GUPTA Y M, ZIMMERMAN K A, RIGG P A, *et al.*. Experimental developments to obtain real-time X-ray diffraction measurements in plate impact experiments [J]. *Review of Scientific Instruments*, 1999, 70(10): 4008-4014.
- [5] D'ALMEIDA T, GUPTA Y M. Real-time X-ray diffraction measurements of the phase transition in KCl shocked along [100] [J]. *Physical Review Letters*, 2000, 85(2): 330-333.
- [6] KALANTAR D H, BELAK J F, COLLINS G W, *et al.*. Direct observation of the $\alpha\text{-}\epsilon$ transition in shock-compressed iron via nanosecond X-ray diffraction [J]. *Physical Review Letters*, 2005, 95(7): 075502.
- [7] EGOROV L A, BARENBOIM A I, MOKHOVA V V, *et al.*. X-ray diffraction studies of the structures of dynamically compressed Be, Al, LiF, KCl, and SiO₂ [J]. *AIP Conference Proceeding*, 2006, 845(1): 1253-1256.
- [8] TURNEAURE S J, GUPTA Y M. Real time synchrotron X-ray diffraction measurements to determine material strength of shocked single crystals following compression and release [J]. *Journal of Applied Physics*, 2009, 106(3): 033513.
- [9] TURNEAURE S J, GUPTA Y M, ZIMMERMAN K, *et al.*. Real-time microstructure of shocked LiF crystals: Use of synchrotron X-rays [J]. *Journal of Applied Physics*, 2009, 105(5): 053520.
- [10] TURNEAURE S J, GUPTA Y M. Material strength determination in the shock compressed state using X-ray diffraction measurements [J]. *Journal of Applied Physics*, 2011, 109(12): 123510.
- [11] GUPTA Y M, TURNEAURE S J, PERKINS K, *et al.*. Real-time, high-resolution X-ray diffraction measurements on shocked crystals at a synchrotron facility [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2012, 83(12): 123905.
- [12] WEHRENBURG C E, COMLEY A J, BARTON N R, *et al.*. Lattice-level observation of the elastic-to-plastic relaxation process with subnanosec-

ond resolution in shock-compressed Ta using time-resolved *in situ* Laue diffraction [J]. *Physical Review B*, 2015, 92(10): 104305.

- [13] 王海容, 肖沙里, 阳庆国, 等. 诊断 LiF 单晶弹性变形的瞬态 X 射线衍射[J]. *强激光与粒子束*, 2014, 26(2): 024004.
WANG H R, XIAO SH L, YANG Q G, *et al.*. Transient X-ray diffraction to diagnose elastic deformation of shocked lithium fluoride single crystal [J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2014, 26(2): 024004. (in Chinese)

- [14] GUO X, JIANG ZH Y, CHEN L, *et al.*. Ultra-fast structural dynamics studied by kilohertz time-resolved X-ray diffraction [J]. *Chinese Physics B*, 2015, 24(10): 108701.

- [15] GRAHAM R A. 固体的冲击波压缩: 力学、物理和化学[M]. 贺红亮, 译. 北京: 科学出版社, 2010: 53-54.
GRAHAM R A. *Solids Under High-Pressure Shock Compression-Mechanics, Physics, and Chemistry* [M]. HE H L, Transl.. Beijing: Science Press, 2010: 53-54. (in Chinese)

作者简介:



唐波(1991—),女,安徽淮南人,博士研究生,研究实习员,2012年于中国科学技术大学获得学士学位,主要从事X射线衍射及辐射诊断方面的研究。E-mail: tang-b12 @ mails. tsinghua. edu. cn

导师简介:



黑东炜(1969—),男,陕西榆林人,研究员,博士生导师,1992年、2000年于清华大学分别获得学士、博士学位,1995年于西北核技术研究所获得硕士学位,主要从事脉冲射线物理及辐射成像等方面的研究。E-mail: heidw@163.com