

基于原位X射线衍射技术的动态晶格响应测量方法研究

李俊 陈小辉 吴强 罗斌强 李牧 阳庆国 陶天炯 金柯 耿华运 谭叶 薛桃

Experimental investigation on dynamic lattice response by *in-situ* Xray diffraction method

Li Jun Chen Xiao-Hui Wu Qiang Luo Bin-Qiang Li Mu Yang Qing-Guo Tao Tian-Jiong Jin Ke
Geng Hua-Yun Tan Ye Xue Tao

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, **66**, 136101 (2017) DOI: 10.7498/aps.66.136101

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.136101>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I13>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

金属有机物化学气相沉积同质外延 GaN 薄膜表面形貌的改善

Surface morphology improvement of homoepitaxial GaN grown on free-standing GaN substrate by metalorganic chemical vapor deposition

物理学报.2017, 66(10): 106101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.106101>

H₃BO₃ 对 Y_{1.98}O₃:Eu_{0.01}, Dy_{0.01} 红色长余辉发光材料结构和余辉性能的影响

Effect of H₃BO₃ on structure and long persistence properties of Y_{1.98}O₃:Eu, Dy red long-afterglow phosphor

物理学报.2014, 63(1): 016101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.016101>

空穴掺杂 Sr₂FeMoO₆ 的晶体结构及磁性研究

Hole doping effects on structure and magnetic properties of Sr₂FeMoO₆

物理学报.2012, 61(22): 226101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.226101>

Cu 掺杂 AgSbTe₂ 化合物的相稳定、晶体结构及热电性能

Phase stability, crystal structure and thermoelectric properties of Cu doped AgSbTe₂

物理学报.2012, 61(8): 086101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.086101>

X射线衍射多相谱中某一物相点阵参数的直接求解方法

Direct method of determining the lattice parameters of a phase from X-ray diffraction pattern of multi-phase

物理学报.2011, 60(8): 086101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.60.086101>

基于原位X射线衍射技术的动态晶格响应 测量方法研究*

李俊[†] 陈小辉 吴强 罗斌强 李牧 阳庆国 陶天炯 金柯 耿华运
谭叶 薛桃

(中国工程物理研究院流体物理研究所冲击波物理与爆炸物理实验室, 绵阳 621900)

(2017年2月14日收到; 2017年4月24日收到修改稿)

获取动态压缩条件下结构演化过程是冲击相变及其动力学机理研究最为关注的基础问题之一. 对此, 基于激光驱动瞬态X射线衍射技术, 通过系列实验的物理状态关联和抽运-探测时序控制, 实现了静态与动态晶格衍射信号的同时获取, 消除了不同实验的装置结构和样品差异带来的测量误差, 建立了一种基于原位X射线衍射技术的动态晶格响应测量方法. 利用上述实验方法, 成功实现了激光冲击加载下[111]单晶铁晶格压缩过程的原位测量, 获取弹性及塑性响应的晶格压缩度与宏观雨贡纽测量结果完全符合, 从晶格层面证实了超快激光加载下的高屈服强度(雨贡纽弹性极限值大于6 GPa), 以及可能与晶向效应或加载率效应相关的相变迟滞现象(至终态压力23.9 GPa仍为体心立方结构), 相关物理机制仍有待进一步研究. 上述测量方法的建立为后续开展相变动力学机理研究提供了可行的技术途径和重要的参考价值.

关键词: 原位X射线衍射, 动态晶格响应, [111]单晶铁

PACS: 61.05.cp, 62.50.Ef, 61.66.-f

DOI: 10.7498/aps.66.136101

1 引言

动态压缩(高温、高压和高应变速率)条件下材料的结构、相态等基础响应行为是高压物理研究的重要内容之一, 是理解材料高压物性变化规律、构建和验证多相物态方程物理模型的基础, 在凝聚态物理、材料科学、地球科学等领域及国防工程应用中具有重要的科学价值. 多年来, 人们对于动态压缩下物质结构变化和相变的大多数认识来自于波的分析^[1-7], 这一诊断方法可以判定动态压缩下相变的发生, 但无法获取相变过程中发生的微观结构信息. 通过静高压实验手段(比如金刚石压砧结合X射线结构诊断技术^[8])可确定高压新相的结构及类型^[9-13], 但是无法对涉及相变弛豫、可能的亚稳态等超快动力学行为的基本物理过程进行描述. 因而, 发展动态压缩下材料结构或晶格响应的原

位诊断能力^[14-17]显得尤为重要. 其中原位X射线衍射技术与冲击加载结合是近年来的热点研究之一^[18-33]. 从基本原理来看, 通过衍射信号最后得到的本质是样品电子的空间分布. 利用X射线衍射, 我们可以得到材料的结构(周期性晶体结构, 非晶材料的局域结构)、物态方程、电子密度分布、残余应力、晶粒取向分布及平均粒径等信息.

动态压缩的原位X射线衍射技术研究起源于20世纪70年代Johnson和Mitchell^[18]的工作. 1972年, Barker和Hollenbach^[1]通过速度波剖面确定出铁冲击相变的发生, 高压新相结构仍是未知的. 为此, Johnson和Mitchell^[18]尝试利用X射线衍射技术实时测量铁冲击相变的结构变化, 但由于冲击实验的复杂性和瞬时性, 最初的探索并没有获取可用的实验数据. 在随后的几十年, 人们专注于技术的探索与突破. 目前主要有两条技术途径: 一是通过火炮加载与脉冲X光源(或同步辐射光源)

* 国家自然科学基金(批准号: 11602251, 11302202)和科学挑战专题(批准号: JCKY2016212A501)资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: lijun102@caep.cn

诊断结合的方式;二是利用大型激光装置分束激光同时实现加载和产生诊断光源.两者相比,激光装置在同步性控制和光源产生方面更有优势,而气炮加载对于实现稳态冲击波更为有效、精准.

对于火炮加载与脉冲X光源的结合,1999年美国华盛顿州立大学Gupta小组^[19]通过一系列的技术改进,首次在一维平面撞击实验中实现了原位X射线衍射测量.他们利用改进的连续光X光机产生所需的诊断光源(X射线脉宽50—90 ns),再根据样品内部冲击波传播走时和CCD记录系统的时间门控关系,由靶面触发探针来控制火炮加载和脉冲X光诊断的时间同步性,以获取冲击载荷下某一压缩状态的衍射数据.但由于光源能力的限制,上述技术仅适用于氟化锂(LiF)单晶^[20]、氯化钾(KCl)单晶^[21]等具有较高衍射效率的透明样品,且对于晶格演化过程的时间分辨有限.为此,Turneure等^[22]开始将该技术移植到同步辐射光源,发展了亚纳秒时间分辨的瞬态X射线衍射技术^[23],并在美国APS装置上开展了冲击压缩下[111]单晶铝(Al)^[24]的微观结构特性研究.

与此同时,激光驱动瞬态X射线衍射技术也在20世纪90年代末开始发展.最早的研究工作为美国洛斯阿拉莫斯国家实验室Kalantar等^[25,26],他们利用Nova和OMEGA激光装置的高能激光,以直接烧蚀方式在物理靶上形成冲击加载,同时分束激光轰击固体金属箔靶产生ns时间量级的高亮X射线源,采用X光成像板进行原位的广角X射线衍射测量.利用上述技术,2005年Kalantar等^[16]获取了[001]晶向铁(Fe)在5.4和26 GPa的衍射图谱,在实验上首次观测到了冲击载荷下低压BCC结构(α 相)和高压HCP结构(ϵ 相),引发了相关科学界的极大研究热情^[17,27-30].2008年,Swift^[17]也成功演示了多晶铍在冲击前后(10—20 GPa)的晶格压缩.2012年,Milathianaki等^[29]开展了冲击压缩下多晶镁的原位晶格测量,获取了在12—45 GPa压力范围内的不同相(HCP结构和BCC结构),确定出相变压力为 (26.2 ± 1.3) GPa.最近,Denoued等^[30]还成功实现了Fe在冲击压力100和170 GPa的HCP相观测,为确定铁的高压相图提供了直接实验证据.不难看出,利用原位X射线衍射测量可以获取不同压力状态的结构,为判定动态压缩下材料的结构变化或相变发生提供最为直接的实验证据,但是目前尚未观测到相变动力学研究中最为关注的晶格演化过程.

实现晶格演化过程的诊断最为有效的方法是抽运-探测,即精准调控加载与诊断的时间延迟至亚纳秒量级,但是目前除了基于X射线自由电子激光(如美国LCLS装置)的极少数相关研究工作^[31,32]之外,对于火炮加载和激光驱动的瞬态X射线衍射技术均存在较大困难.前者与同步辐射光源结合,虽然诊断的时间分辨可达100 ps量级,但是由于加载方式固有的局限性(弹速的漂移通常为5%—10%),难以实现亚纳秒量级的延迟控制;后者在时间同步性上可以精确控制,但实测晶格衍射数据不仅依赖于光源参数,而且与实验装置空间几何布局及样品特性密切相关(靶样品、诊断光源与探测器在几何空间的微小差异,或者同一晶向的不同单晶样品在切割加工时晶向角的偏移或旋转误差,均会引起衍射谱线的位置移动或方向的变化),在不可重复的动态压缩实验中,如何消除这些影响仍十分困难.

针对上述技术问题,本文通过一发实验中静态与动态衍射信号的同时获取,对比消除实验装置几何结构和样品差异的影响,完善了激光驱动瞬态X射线衍射技术,再结合抽运-探测建立基于原位X射线衍射技术的动态晶格响应测量方法,并成功实现了激光冲击加载下[111]晶向Fe单晶晶格压缩过程的原位观测,获取的晶格压缩度与宏观波剖面确定的比容值相符,很好地验证了该实验测量方法的有效性.

2 实验方法及技术

2.1 动态晶格响应测量方法

对于激光驱动瞬态X射线衍射技术,结合抽运-探测实现动态压缩晶格演化过程原位测量的核心物理问题是要消除实验装置空间几何布局及样品特性带来的测量不确定性.本工作的基本思路是在一发实验中实现静态和动态衍射图谱的同时获取,通过对比法进行消除.对此,需要从实验测量方法出发,进行一系列精细设计和物理关联,如图1所示.

1) 准确测定激光加载下冲击波到达样品前端面时刻点 t_1 和样品后端面时刻点 t_2 .由于基于激光烧蚀技术的冲击加载方式涉及强激光束与物质相互作用再形成粒子热膨胀产生压缩的复杂多物理耦合过程,即加载初始时刻并非激光束的到靶时

刻. 为了解决这一问题, 我们利用自主研发的全光波双源混频测速技术 (DLHV), 首先测量激光加载下百纳米厚度的 Al 膜烧蚀层/ LiF 单晶的速度剖面, 如图 2(a) 所示, 实测速度剖面的起跳时刻可视为冲击波到达样品前端面的时刻 t_1 . 在此基础上, 保持加载激光状态不变, 开展激光加载下 Al 膜烧蚀层 + 实际样品的自由面速度测量, 确定出冲击波到达样品后端面的时刻点 t_2 , 即可得到样品中的冲击波走时 Δt_{Shock} ($\Delta t_{\text{Shock}} = t_2 - t_1$), 见图 2(b). 所有实验的基准时刻点 t_0 均由激光装置的触发信号提供, 包括光束传输、与物质相互作用过程以及 DLHV 测试响应等总的延时.

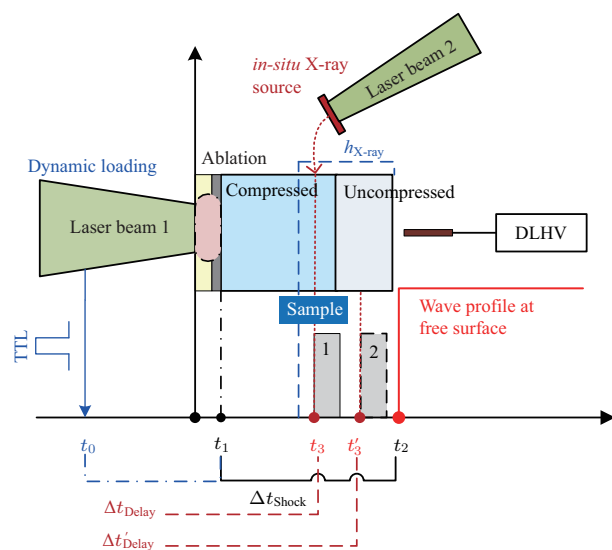


图 1 (网刊彩色) 动态压缩晶格演化测量方法示意图

Fig. 1. (color online) Schematic drawing of the *in-situ* lattice diffraction measurement at dynamic compression.

2) 通过设定加载与诊断激光束之间的延时 Δt_{Delay} 来确定 X 射线衍射的诊断时刻 t_3 , 以同时获取静态和动态衍射图谱. 在动态晶格响应测量中, 需要同时满足以下两个方面: 首先, 当 X 射线产生时冲击波阵面尚未到达样品自由面, 样品内部同时存在压缩区和未压缩区, 即 $\Delta t_{\text{Delay}} < t_2 - t_1$; 其次, 结合光源强度、探测器灵敏度及样品衍射效率, 计算瞬态 X 光源在样品中的有效衍射厚度 $h_{\text{X-ray}}$, 当进行原位 X 射线衍射诊断时冲击波要传播至 $h_{\text{X-ray}}$ 范围内, 即 $\Delta t_{\text{Delay}} > t_2 - t_1 - h_{\text{X-ray}}/D_s$, 其中 D_s 为样品中的平均冲击速度 ($D_s = h_{\text{sample}}/\Delta t_{\text{Shock}}$). 因此, 在上述时间范围内, 通过连续调控 Δt_{Delay} , $\Delta t'_{\text{Delay}}$..., 即可实现晶格演化过程的测量, 调控的时间间隔需

要大于 X 射线脉宽 (通常与激光脉宽相等).

需要特别指出的是, 上述方法测量的前提或基本假定是冲击加载状态不变, 即加载激光状态以及靶结构和样品参数尽可能保持一致.

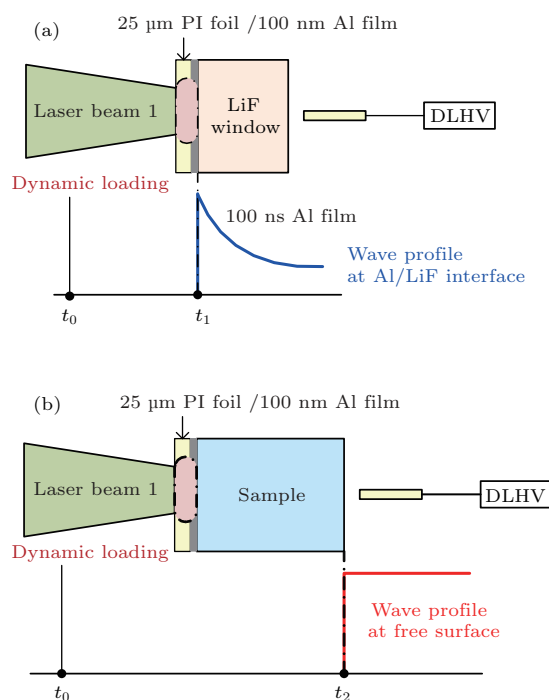


图 2 (网刊彩色) 激光加载下样品中冲击波走时测量示意图 (a) 到达样品前端面时刻; (b) 到达样品后端面时刻
Fig. 2. (color online) Schematic drawing of the shock-wave measurement in sample at laser-loading: (a) Arrival time at the front surface of sample; (b) arrival time at the free surface of sample.

2.2 原位 X 射线衍射诊断技术

激光加载下的原位 X 射线衍射诊断实验如图 3 所示. 在“神光-II”实验平台上, 利用第九路激光束进行冲击加载, 即激光直接驱动方式. 加载激光波长 351 nm, 脉冲宽度约 3 ns, 光斑为 (2 × 1.5) mm (长轴水平), 经束匀滑处理后照射至物理靶前端面, 物理靶前端压黏镀有 100 nm 铝膜的聚酰亚胺箔 (PI 箔, 厚度 25 μm) 以减少烧蚀热波对样品影响, 获取干净的冲击加载状态. 实验所需加载压力可通过调节加载激光能量大小实现, 样品的压缩状态则利用 DLHV 实测的自由面粒子速度, 结合样品已知的 Hugoniot 参数和一维流体动力学计算程序计算得出. 本文的动态实验选用 [111] 晶向 Fe 单晶作为物理靶, 由德国 MaTeck 公司提供, 采用分子束外延法生长, 纯度大于 99.98%, 初始密度 7.85 g/cm³. 样品尺寸 4 × 4 mm, 厚度

30—50 μm , 采用高功率激光束切割, 晶向角偏差小于 0.5° , 表面粗糙度小于 30 nm.

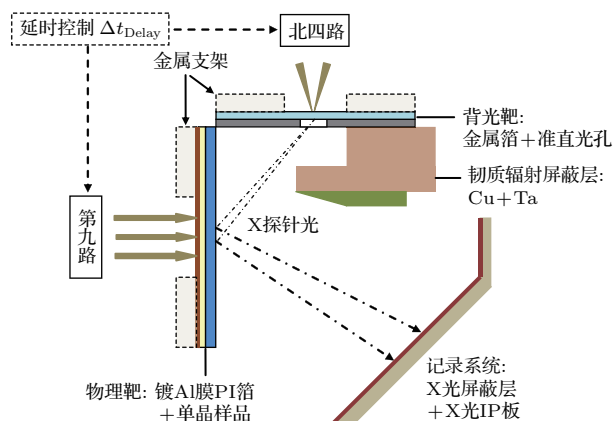


图3 (网刊彩色) 原位 X 射线衍射实验装置及诊断系统示意图

Fig. 3. (color online) Schematic drawing of experimental set-up for dynamic XRD technique.

瞬态 X 光源采用激光驱动产生的短脉冲 X 光探针技术来实现, 即神光-II 装置八路激光中的 4 束合束激光(激光波长 351 nm, 脉冲宽度 1 ns, 能量 (4×240) J, 聚焦光斑直径约 $50 \mu\text{m}$) 轰击金属箔背光靶(厚度约 $12 \mu\text{m}$, 准直孔直径 $80 \mu\text{m}$) 至等离子体状态, 并使原子内层电子激发, 进而利用由激发态跃迁到内层所发射的高强度、单色化特征 X 射线(如 K_α 或 K_β 谱线) 作为准单色短脉冲 X 射线诊断光源. 瞬态 X 射线衍射诊断采用高感光度 X 光 IP 板进行记录, 前端加 $190 \mu\text{m}$ 厚的塑料箱/ $100 \mu\text{m}$ 厚的铝箔/ $25 \mu\text{m}$ 厚的铁箔作为 X 光屏蔽层, 并在 X 光 IP 板与背光靶之间安装 Cu/Ta 金属块以屏蔽射流粒子、直穿 X 光和韧致辐射等. 为了获取衍射信号的空间信息(即相变前后不同晶向对应的衍射图谱), 实验中利用三片 PI 板组合实现大于 60° 的空间立体包围方式, 通过实测衍射图谱上不同衍射线的角度、位移关系, 结合物理靶装置的几何结构, 获取对应的晶格压缩和结构变化信息. 利用上述技术, 我们也曾开展过 LiF 单晶弹-塑性变形的演示性实验^[33].

3 结果与讨论

3.1 激光加载波剖面速度及冲击波走时测量

在神光-II 激光实验平台上, 我们开展了激光加载下 [111] 晶向 Fe 的晶格演化特性研究, 以检验

基于原位 X 射线衍射的动态晶格响应测量方法. 图 4 是实测 Al 膜烧蚀层和单晶铁速度剖面, 两发实验的时间零点均由第九路激光的触发信号提供, 加载激光波长 351 nm, 脉冲宽度为 2.98 ns, 光斑为 (2×1.5) mm (长轴水平), 单脉冲能量 150 J. 从图中不难看出, Al 膜烧蚀层/LiF 窗口的实测波剖面为单一波结构, 其随后粒子速度的下降与激光加载时间波形的衰减有关; 而 [111] 晶向 Fe 自由面速度剖面则是包含弹性前驱波 (EP) 和塑性波 (P_1) 的双波结构, 对应于样品中(厚度 $37 \mu\text{m}$) 的平均走时分别为 7.1 和 8.7 ns.

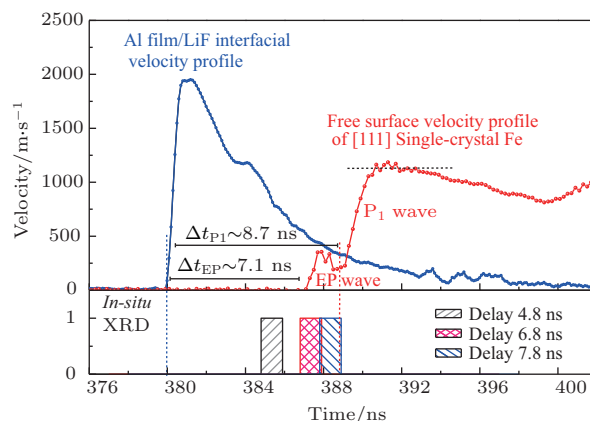


图4 (网刊彩色) [111] 晶向 Fe 冲击波走时及 X 射线衍射晶格演化测量时序关系

Fig. 4. (color online) Measured transit time for the shock wave in $37 \mu\text{m}$ -thick [111] single-crystal iron and the scheduling of dynamic XRD lattice measurement.

对激光加载 [111] 晶向 Fe 速度剖面的精细特征进行分析. 可见, [111] 晶向 Fe 首先表现为显著的弹性响应, EP 波对应的粒子速度峰值高达 340 m/s , 随后幅值的衰减则是由于弹-塑性转变过程的应力松弛所致. 结合 Kadua 报道的 [111] 晶向 Fe 冲击雨贡纽关系, 得出雨贡纽弹性极限 σ_{HEL} 约为 6.5 GPa, 对应沿冲击加载方向(即 (111)_{bcc} 晶面) 的单轴压缩度为 97.3%. 如此高屈服强度特性在 Smith 等^[34] 多晶铁的激光斜波压缩实验中曾有报道, 并揭示出 EP 波峰值压力与加载速率、样品厚度之间的强关联效应, 而我们实测的 σ_{HEL} 与其变化规律是符合的.

对于随后的塑性波, 虽然 P_1 波加载终态已明显高于火炮加载下 [111] 晶向 Fe 的冲击相变起始点(如图 5 所示), 但却未能从波剖面中观测到相变发生时的多波结构, 由 α 相冲击 Hugoniot 关系得出终态压力为 23.9 GPa, 对应的体积压缩比为 89.5%. 与之类似, Ashitkov 等^[35] 在飞秒激光驱动的超快

动力学实验中也观测到上述现象, 他们发现即便加载压力高达 48 GPa, 在多晶铁 (厚度为 480 nm) 速度剖面中却无 $\alpha \rightarrow \epsilon$ 相变发生的多波结构. 然而目前对其背后的物理机制的认识仍不清楚, 可能是由于激光实验样品厚度的限制使相变波无法在如此短时间内发生显著分裂 (即相变已经发生), 或由于激光加载的率效应引起的相变迟滞或相变起始压力偏离 (即相变尚未发生) 所致. 为此, 我们在瞬态 X 光衍射晶格测量实验中设定加载与诊断激光束之间的延时 Δt_{Delay} 为 4.8, 6.8 和 7.8 ns 三个时刻点 (见图 4), 从晶格层面观测 EP 波和 P_1 波的演化过程, 以辨别冲击相变是否发生.

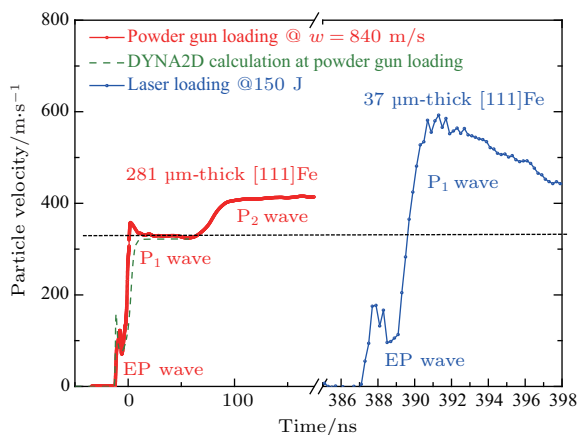


图 5 (网刊彩色) 火炮加载及激光加载下 [111] 晶向 Fe 粒子速度剖面的比较

Fig. 5. (color online) Measured particle velocity profiles of [111] single-crystal iron at the powder gun loading and the laser loading.

3.2 基于原位 XRD 的动态晶格响应测量

图 6 是利用平晶 X 光谱仪 (能谱响应范围 3—10 keV, 分辨率 1—2 eV) 记录的 Fe 背光靶 X 光发射谱, 特征谱的相对强度比如图 7 所示. 可见, 在一个较弱的连续谱本底下显现出五条清楚的线谱, 对应于 Fe- $K\alpha$ 线 (0.1936 nm), Fe-XXIV 线 (0.1874 nm), Fe-XXIV 线 (0.1862 nm), Fe-XXV 线 (0.1852 nm) 和 Fe-XXV 线 (0.159 nm), 其中 Fe-XXIV 线 (0.1862 nm) 和铁 XXV 线 (0.1852 nm) 强度最高. 考虑到 IP 板前端 X 光屏蔽层的吸收特性 (见图 7 上图), 参与衍射的应为强度最高的 Fe-XXIV 线和 Fe-XXV 线, 视为准单色 X 光谱.

图 8 是实测 [111] 晶向 Fe 的静态衍射图谱实验结果. 数据分析采用我们自行编写的原位 X 射线衍射处理 (DEF-XRD) 程序, 程序中设置的衍射空

间几何布局及 X 光波长与实验一致, 即设定 X 光波长为 0.1852 nm (Fe-XXV 特征线), 入射方向为 [111]_{bcc} 轴向, 衍射线的晶面标识为倒格矢空间坐标 (hjk). 从图 8 可见, 静态衍射实验的 IP 板记录了两条清晰的衍射谱线, 中间位置衍射线对应 Fe 单晶的 (121) 晶面, 边缘衍射线对应于 (112) 晶面, 基于最小二乘法拟合得出 [111] 晶向 Fe 单晶晶格常数为 2.87 Å. 这一结果与常态下 BCC 结构的晶格常数实测值 (0.2863 nm) 完全符合, 由此表明瞬态 X 射线衍射诊断技术是可靠、有效的.



图 6 Fe 背光靶 X 光发射光谱底片

Fig. 6. Photograph for X-ray emission spectrum of Fe foil.

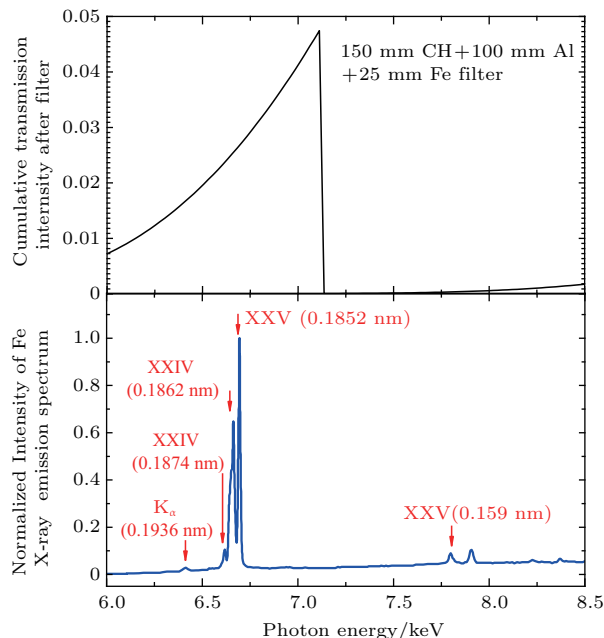


图 7 Fe 背光靶 X 光特征谱线

Fig. 7. Comparison for the intensity of Fe X-ray emission spectrum.

图 9 是北四路相对第九路延时 4.6 ns 的晶格衍射图谱, 成功观测到动态压缩下的多条衍射谱线. 利用 DEF-XRD 程序进行拟合 (见图 10 (a)), 得出对应的衍射晶面为 BCC 结构的 (112), (211) 和 (112) 晶面, 但其中仅有 (121) 晶面对应的衍射线可观测到压缩前后的位置移动. 通过对 (121) 晶面衍射线进行峰-峰值拟合 (见图 10 (b)), 可得冲击压缩前后的衍射角 θ 分别为 52.14° 和 53.05° , 对应的晶面间距缩短 1.21%, 计算出 BCC 结构的体积压

缩比为97.07%。上述结果与EP波的单轴压缩度(97.4%)符合,并非 P_1 波的体压缩,从晶格层面进一步证实了激光加载下[111]晶向Fe的高强度屈服行为。

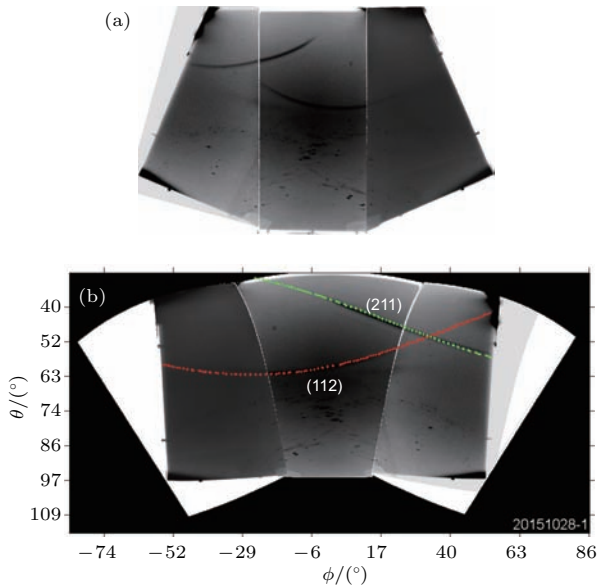


图8 (网刊彩色) [111]晶向Fe静态衍射图谱 (a)实验结果; (b)球面坐标衍射线拟合

Fig. 8. (color online) X-ray diffraction spectrum of [111] single crystal Fe at static condition: (a) XRD experimental result; (b) DEF-XRD fitting.

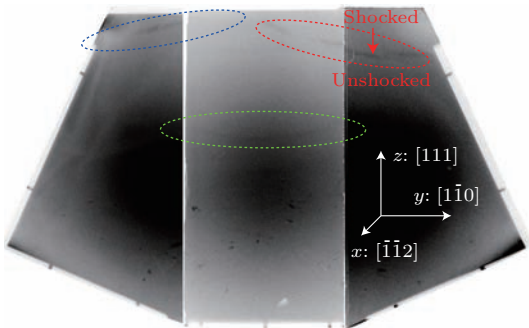


图9 (网刊彩色) 延时4.8 ns时[111]晶向Fe动态晶格压缩衍射图谱

Fig. 9. (color online) Dynamic lattice diffraction spectrum of [111] single crystal Fe with the pump-probe delay time of 4.8 ns.

图11是北四路相对第九路延时6.8 ns的晶格衍射图谱。相比于上一延迟时刻点,此时已能够清晰地分辨不同晶面在冲击压缩前后的衍射线。通过DEF-XRD程序进行拟合(见图12),得出衍射晶面为BCC结构的(112), (211)和(112)晶面,其中(112)晶面在冲击压缩前后的衍射角 θ 分别为

52.14°和54.49°,计算出晶面间距缩短约3%,相应的体积压缩比为91.9%。这一时刻的晶格压缩接近于实测波剖面中 P_1 波的体积压缩比(89.5%),对应于弹-塑性转变以及 P_1 波的传播过程。

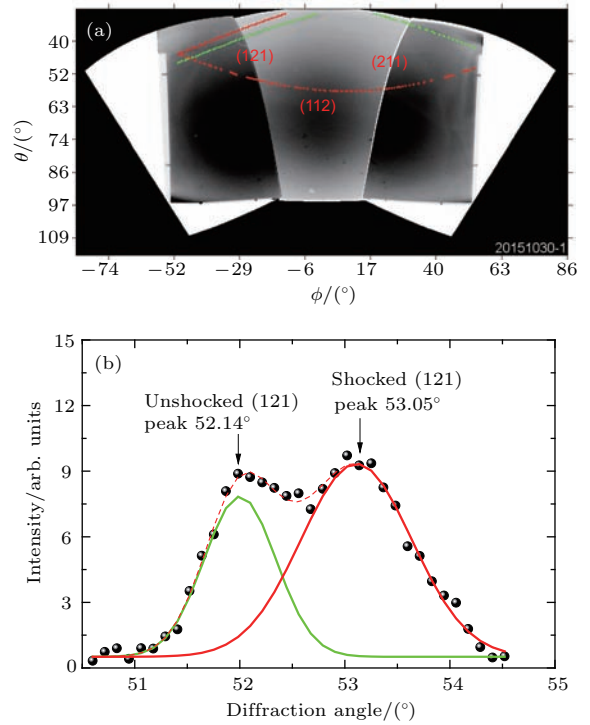


图10 (网刊彩色) 延时4.8 ns时[111]晶向Fe动态响应的晶格压缩度 (a)球面坐标衍射线拟合; (b)冲击压缩前后的衍射角变化

Fig. 10. (color online) DEF-XRD fitting of the measured *in-situ* XRD diffraction spectrum of [111] single crystal Fe with the pump-probe delay time of 4.8 ns: (a) DEF-XRD fitting at spherical coordinate; (b) unshocked and shocked diffraction angle.

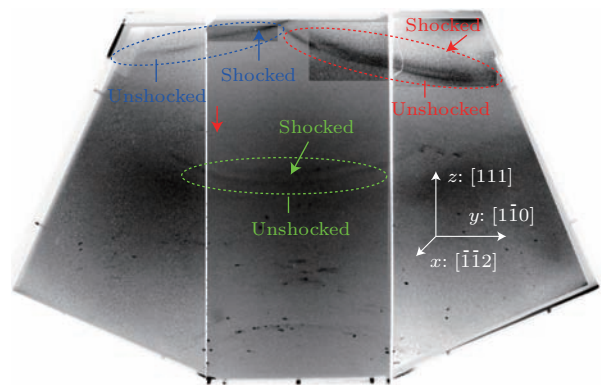


图11 (网刊彩色) 延时6.8 ns时[111]晶向Fe动态晶格压缩衍射图谱

Fig. 11. (color online) Dynamic lattice diffraction spectrum of [111] single crystal Fe with the pump-probe delay time of 6.8 ns.

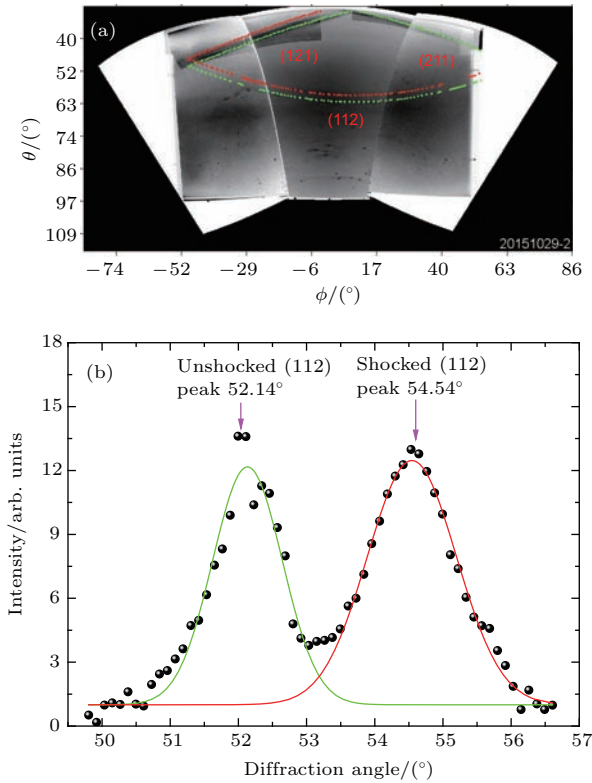


图 12 (网刊彩色) 延时 6.8 ns 时 [111] 晶向 Fe 动态响应的晶格压缩度 (a) 球面坐标衍射线拟合; (b) 冲击压缩前后的衍射角变化

Fig. 12. (color online) DEF-XRD fitting of the measured *in-situ* XRD diffraction spectrum of [111] single crystal Fe with the pump-probe delay time of 6.8 ns: (a) DEF-XRD fitting at spherical coordinate; (b) unshocked and shocked diffraction angle.

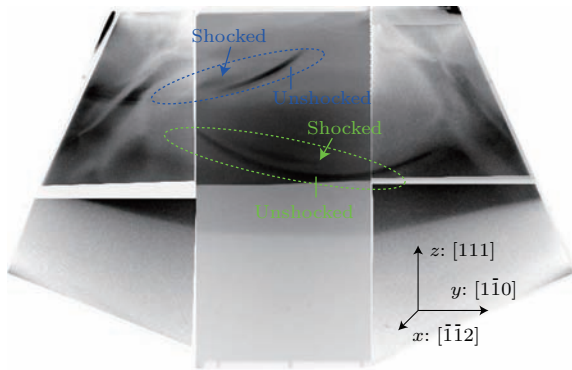


图 13 (网刊彩色) 延时 7.8 ns 时 [111] 晶向 Fe 动态晶格压缩衍射图谱

Fig. 13. (color online) Dynamic lattice diffraction spectrum of [111] single crystal Fe with the pump-probe delay time of 7.8 ns.

为此, 我们将北四路相对第九路延时调至 7.8 ns, 使 P_1 波基本传至样品自由面, 即样品内部被完全压缩. 图 13 是获取的动态晶格压缩衍射图谱, 可以清楚地看到冲击压缩前后晶面衍射线的移动. 拟合分析结果 (见图 14) 表明, 实测晶体相

仍为 BCC 结构, (112) 晶面在冲击压缩前后的衍射角 θ 分别为 52.14° 和 55.11° , 对应的体积压缩度为 89.7%, 与波剖面 P_1 波带来的体积变化是符合的, 仍未观测到冲击相变的发生.

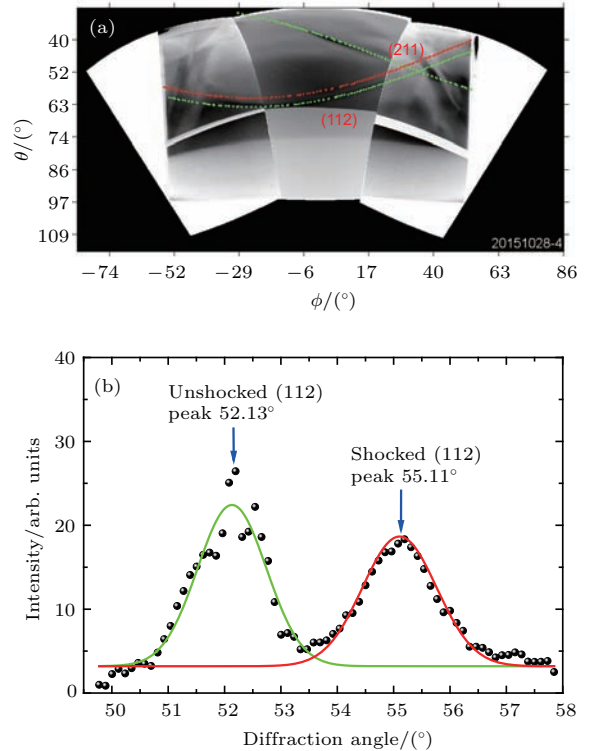


图 14 (网刊彩色) 延时 7.8 ns 时 [111] 晶向 Fe 动态响应的晶格压缩度 (a) 球面坐标衍射线拟合; (b) 冲击压缩前后的衍射角变化

Fig. 14. (color online) DEF-XRD fitting of the measured *in-situ* XRD diffraction spectrum of [111] single crystal Fe with the pump-probe delay time of 7.8 ns: (a) DEF-XRD fitting at spherical coordinate; (b) unshocked and shocked diffraction angle.

关联上述一系列时刻点的动态晶格衍射图谱和宏观波剖面数据, 表明强激光冲击加载下 [111] 晶向 Fe 的结构转变会存在动力学不稳定性, 终态压力至 23.9 GPa 的晶格结构仍为 BCC 结构. 从相变动力学机理来看, 会有以下几种可能: 1) 与单晶铁冲击相变的时间跨度及中间态有关, 在 Kadau 等 [36-38] 的非平衡分子动力学模拟中, 曾预测不同晶向的相转变路径及机理存在差异, 即 [100] 晶向为有序化的马氏体转变, 高压相为 HCP 结构, 对应渡越时间约为 50 ps, 而 [110], [111] 晶向的转变则存在大量 FCC 结构的亚稳态相且发生相变迟滞, 渡越时间更长; 此外, 在 Jensen 等 [4] 以及 Zaretsky 和 Kannel [39] 的波剖面测量实验中也观测到 $\alpha \rightarrow \epsilon$ 相转变的迟滞特征, 且渡越时间随碰撞压力呈现非

线性减少的趋势; 2) 与激光超快加载的超饱和和临界现象有关, 即激光高应变率加载导致相变起始压力的升高, Smith等^[40]曾在多晶铁(厚度约20 μm)的激光斜波加载实验中, 发现 $\alpha \rightarrow \epsilon$ 相变起始压力最高可达38 GPa, 已超过我们实验的加载压力(23.9 GPa); 3) 与HCP相转变的晶向相关, 即位移型相变是基于原子的统一行动, 往往存在母子群关系. 对于[001]晶向, Hawreliak等^[27]基于实测动态X光衍射图谱分析发现, 相变过程的原子迁移路径分为原子沿 $[100]_{\text{bcc}}$ 轴向压缩和交替 $(011)_{\text{bcc}}$ 晶面原子沿 $[01\bar{1}]_{\text{bcc}}$ 轴向发生滑移两个步骤. 然而对于[110]晶向相变过程而言, HPC相的晶体取向是未知的, 可能会超出实验衍射角观测范围.

4 结 论

本文提出了一种基于原位XRD技术的动态晶格响应测量方法, 通过系列实验的物理状态关联和抽运-探测时序控制, 在一发实验中解决了静态与动态衍射信号的同时获取, 消除了不同实验的装置结构和样品差异带来的测量误差, 实现冲击载荷下晶格演化过程的原位观测. 通过[111]晶向单晶铁的动态X光衍射实验发现, 终态压力为23.9 GPa时的晶格响应首先对应于弹性先驱波的传播和弹-塑性转变过程, 证实了与波剖面结构相符的高屈服强度行为($\delta_{\text{HEL}} > 6$ GPa). 随后, 塑性波波后的晶体结构仍为BBC结构, 而非期望的HCP结构, 获取的晶格压缩度(体压缩为89.7%)也与符合 α 相的冲击Hugoniot关系, 可能涉及与晶向效应或加载率效应有关的相变动力学机理问题, 有待开展深入的研究工作.

上述动态晶格响应测量方法的建立为后续开展相变动力学机理研究提供了一条可行的技术路线和有价值的实验参照.

参考文献

- [1] Barker L M, Hollenbach R E 1974 *J. Appl. Phys.* **45** 4872
- [2] Erskine D J, Nellis W J 1992 *J. Appl. Phys.* **71** 4882
- [3] Hicks D G, Boehly T R, Celliers P M, Bradley D K, Eggert J H, McWilliams R S, Jeanloz R, Collins G W 2008 *Phys. Rev. B* **78** 174102
- [4] Jensen B J, Gray III G T, Hixson R S 2009 *J. Appl. Phys.* **105** 103502
- [5] Li J, Zhou X M, Li J B, Li S N, Zhu W J, Wang X, Jing F Q 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 6557 (in Chinese) [李俊, 周显明, 李加波, 李赛男, 祝文军, 王翔, 经福谦 2007 物理学报 **56** 6557]
- [6] Chen Y T, Tang X J, Li Q Z 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 046401 (in Chinese) [陈永涛, 唐小军, 李庆忠 2011 物理学报 **60** 046401]
- [7] Song P, Cai L C, Li X Z, Tao T J, Zhao X W, Wang X J, Fang M L 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 106401 (in Chinese) [宋萍, 蔡灵仓, 李欣竹, 陶天炯, 赵信文, 王学军, 方茂林 2015 物理学报 **64** 106401]
- [8] Shen G Y, Sinogeikin S 2015 *Rev. Sci. Instrum.* **86** 071901
- [9] Tateno S, Hirose K, Ohishi Y, Tatsumi Y 2010 *Science* **330** 359
- [10] Anzellini S, Dewaele A, Mezouar M, Loubeyre P, Morard G 2013 *Science* **340** 464
- [11] Ding Y, Ahuja R, Shu J F, Chow P, Lou W, Mao H K 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 085502
- [12] Xu J A, Wang Y Y, Xu M H 1980 *Acta Phys. Sin.* **29** 1063 (in Chinese) [徐济安, 王彦云, 徐敏华 1980 物理学报 **29** 1063]
- [13] Wu X, Qin S, Wu Z Y, Dong Y H, Liu J, Li X D 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 1967 (in Chinese) [巫翔, 秦善, 吴自玉, 董宇辉, 刘景, 李晓东 2004 物理学报 **53** 1967]
- [14] Yaakobi B, Boehly T R, Meyerhofer D D, Collins T J B 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 075501
- [15] Kritcher A L, Neumayer P, Castor J, Döppner T, Falcone R W, Landen O L, Lee H J, Lee R W, Morse E C, Ng A, Pollaine S, Price D, Glenzer S H 2008 *Science* **322** 69
- [16] Kalantar D H, Belak J F, Collins G W, Colvin J D, Davis H M, Effert J H, Germann T C, Hawreliak J, Holian B L, Kadau K, Lomdahl P S, Lorenzana H E, Meyers M A, Rosolankova K, Schneider M S, Sheppard J, Stölken J S, Wark J S 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 075502
- [17] Swift D C 2008 *Rev. Sci. Instrum.* **79** 013906
- [18] Johnson Q, Mitchell A 1972 *Phys. Rev. Lett.* **29** 1369
- [19] Gupta Y M, Zimmerman K A, Rigg P A, Zaretsky E B, Savage D M, Bellamy P M 1999 *Rev. Sci. Instrum.* **70** 4008
- [20] Rigg P A, Gupta Y M 2001 *Phys. Rev. B* **63** 094112
- [21] Turneaure S J, Gupta Y M, Rigg P 2009 *J. Appl. Phys.* **105** 013544
- [22] Turneaure S J, Gupta Y M, Zimmerman K, Perkins K, Yoo C S, Shen G 2009 *J. Appl. Phys.* **105** 053520
- [23] Gupta Y M, Turneaure S J, Perkins K, Zimmerman K, Arganbright N, Shen G, Chow P 2012 *Rev. Sci. Instrum.* **83** 123905
- [24] Turneaure S J, Gupta Y M 2012 *J. Appl. Phys.* **111** 026101
- [25] Kalantar D H, Chandler E A, Colvin J D, Lee R, Remington B A, Weber S V, Wiley L G, Hauer A, Wark J S, Loveridge A, Failor B H, Meyers M A, Ravichandran G 1999 *Rev. Sci. Instrum.* **70** 629
- [26] Kalantar D H, Bringa H, Caturla M, Colvin J, Lorenz K T, Kumar M, Stölken J, Allen A M, Rosolankova K,

- Wark J S, Meyers M A, Schneider M, Boehly T R 2003 *Rev. Sci. Instrum.* **74** 1929
- [27] Hawreliak J A, Kalantar D H, Stölken J S, Remington B A, Lorenzana H E, Wark J S 2008 *Phys. Rev. B* **78** 220101
- [28] Hawreliak J A, El-Dasher B S, Lorenzana H E 2011 *Phys. Rev. B* **83** 144114
- [29] Milathianaki D, Swift D C, Hawreliak J A, El-Dasher B S, McNaney J M, Lorenzana H E, Ditmire T 2012 *Phys. Rev. B* **86** 014101
- [30] Denoeud A, Ozaki M, Benuzzi-Mounaix A, Uranishi M, Kondo Y, Kodama R, Brambrink E, Ravasio A, Bocoum M, Boudenne J M, Harmand M, Guyot F, Mazevet S, Riley D, Makita M, Sano T, Sakawa Y, Inubushi Y, Gregori G, Koenig M, Morard G 2016 *PNAS* **113** 7745
- [31] Gorman M G, Briggs R, McBride E E, Higginbotham A, Arnold B, Eggert J H, Fratandouno D E, Galtier E, Lazicki A E, Lee H J, Liermann H P, Nagler B, Rothkirch A, Smith R F, Swift D C, Collins G W, Wark J S, McMahon M I 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 095701
- [32] Kraus D, Ravasio A, Gauthier M, Gericke D O, Vorberger J, Frydrych S, Helfrich J, Fletcher L B, Schaubmann G, Nagler B, Barbrel B, Bachmann B, Gamboa E J, Göde S, Granados E, Gregori G, Lee H J, Neumayer P, Schumaker W, Döppner T, Falcone R W, Glenzer S H, Roth M 2016 *Nature Communications* **7** 10970
- [33] Wang H R, Xiao S L, Yang Q G, Ye Y, Li M, Li J, Peng Q X, Li Z R 2014 *High Power Laser and Particle Beams* **26** 024004 (in Chinese) [王海容, 肖沙里, 阳庆国, 叶雁, 李牧, 李俊, 彭其先, 李泽仁 2014 强激光与粒子束 **26** 024004]
- [34] Smith R F, Eggert J H, Rudd R E, Swift D C, Bolme C, Collins G W 2011 *J. Appl. Phys.* **110** 123515
- [35] Ashitkov S I, Zhakhovsky V V, Inogamov N A, Komarov P S, Agranat M B, Kanel G I 2017 *AIP Conf. Proc.* **1793** 100035
- [36] Kadau K, Germann T C, Lomdahl P S, Holian B L 2002 *Science* **296** 1681
- [37] Kadau K, Germann T C, Lomdahl P S, Holian B L 2005 *Phys. Rev. B* **72** 064210
- [38] Kadau K, Germann T C, Lomdahl P S, Albers R C, Wark J S, Higginbotham A, Holian B L 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 135701
- [39] Zaretsky E B, Kannel G I 2015 *J. Appl. Phys.* **117** 195901
- [40] Smith R F, Eggert J H, Swift D C, Wang J, Duffy T S, Braun D G, Rudd R E, Reisman D B, Davis J P, Knudson M D, Collins G W 2013 *J. Appl. Phys.* **114** 223507

Experimental investigation on dynamic lattice response by *in-situ* X-ray diffraction method*

Li Jun[†] Chen Xiao-Hui Wu Qiang Luo Bin-Qiang Li Mu Yang Qing-Guo
Tao Tian-Jiong Jin Ke Geng Hua-Yun Tan Ye Xue Tao

(National Key Laboratory of Shock Wave and Detonation Physics, Institute of Fluid Physics, CAEP, Mianyang 621900, China)

(Received 14 February 2017; revised manuscript received 24 April 2017)

Abstract

Structure evolution under dynamic compression condition (high temperature, high pressure and high strain rate) is one of the most important problems in engineering and applied physics, which is vital for understanding the kinetic mechanism of shock-induced phase transition. In this work, an *in-situ* dynamic X-ray diffraction (DXRD) diagnostic method is established to probe the lattice response driven by shock waves. The geometry is suitable for the study of laser-shocked crystals. In order to eliminate the measurement error arising from the difference in experimental setup, the static and dynamic lattice diffraction signals are measured simultaneously in one shot by using a nanosecond burst of X-ray emitted from a laser-produced plasma. Experimental details in our investigation are as follows. 1) The laser driven shock wave transit time Δt_{Shock} and the shock pressure in sample are accurately determined from the shock-wave profile measurement by dual laser heterodyne velocimetry. 2) A laser pump-and-probe technique for adjusting the time-delay of DXRD diagnosis during Δt_{Shock} , with a series of repeated shock loadings is then employed to generate and measure the dynamic structure evolution. Using this method, the dynamic lattice response of [111] single-crystal iron is studied on Shenguang-II facility. Single-shot diffraction patterns from both unshocked and shocked crystal are successfully obtained. An elastic-plastic transition process —elastic wave followed by a plastic wave— is observed in shocked [111] single-crystal iron on a lattice scale. The lattice compressibility values of the elastic wave and plastic wave are in agreement with those derived from the wave profiles. It is found that the Hugoniot elastic limit is measured to be about 6 GPa under nanosecond-pulsed laser shock compression. Such a high yield strength is consistent with recent laser ramp compression experimental results in polycrystalline Fe [Smith *et al.* 2011 *J. Appl. Phys.* **110** 123515], suggesting that the peak pressure of elastic wave is dependent on the loading rate and the thickness of sample. Based on the analysis of diffraction patterns, the BCC phase is determined to be stable till 23.9 GPa, the highest pressure explored in this work, which might indicate that the phase transition strongly couples with the crystal orientation and loading rate. Some possible physical mechanisms remain to be further studied: whether the transition time hysteresis occurs or the metastable FCC phase exists in shocked [111] single crystal Fe, or the phase transition onset pressure increases under high strain-rate compression. Our DXRD results provide a primary experimental reference for the follow-up study on the phase kinetics.

Keywords: *in-situ* X-ray diffraction, dynamic lattice response, single crystal iron

PACS: 61.05.cp, 62.50.Ef, 61.66.-f

DOI: [10.7498/aps.66.136101](https://doi.org/10.7498/aps.66.136101)

* Project supported by the Young Scientists Fund of the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11602251, 11302202) and the Science Challenge Project, China (Grant No. JCKY2016212A501).

[†] Corresponding author. E-mail: lijun102@caep.cn