



## 高压高应变率加载下多晶相变的原位X射线衍射

陈小辉 谭伯仲 薛桃 马云灿 靳赛 李志军 辛越峰 李晓亚 李俊

### *In situ* observation of phase transition in polycrystalline under high-pressure high-strain-rate shock compression by X-ray diffraction

Chen Xiao-Hui Tan Bo-Zhong Xue Tao Ma Yun-Can Jin Sai Li Zhi-Jun Xin Yue-Feng Li Xiao-Ya  
Li Jun

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 246201 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20200929

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200929>

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

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

基于原位X射线衍射技术的动态晶格响应测量方法研究

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

物理学报. 2017, 66(13): 136101 <https://doi.org/10.7498/aps.66.136101>

单晶Ce冲击相变的分子动力学模拟

Molecular dynamics simulation of shock-induced isostructural phase transition in single crystal Ce

物理学报. 2020, 69(11): 116202 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200323>

非一维应变冲击加载下高纯铜初始层裂行为

Incipient spallation of high purity copper under non-one-dimensional strain shock waves

物理学报. 2020, 69(3): 034601 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191104>

超高应变率载荷下铜材料层裂特性研究

Spall behavior of copper under ultra-high strain rate loading

物理学报. 2017, 66(4): 040202 <https://doi.org/10.7498/aps.66.040202>

高应变率下温度对单晶铁中孔洞成核与生长影响的分子动力学研究

Molecular dynamics simulation of effect of temperature on void nucleation and growth of single crystal iron at a high strain rate

物理学报. 2019, 68(24): 246102 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190920>

同步辐射高压单晶衍射实验技术

High pressure single-crystal synchrotron X-ray diffraction technique

物理学报. 2017, 66(3): 036203 <https://doi.org/10.7498/aps.66.036203>

# 高压高应变率加载下多晶相变的 原位 X 射线衍射\*

陈小辉<sup>1)†</sup> 谭伯仲<sup>1)</sup> 薛桃<sup>1)</sup> 马云灿<sup>1)</sup> 靳赛<sup>2)</sup>  
李志军<sup>2)</sup> 辛越峰<sup>1)</sup> 李晓亚<sup>1)</sup> 李俊<sup>1)‡</sup>

1) (中国工程物理研究院流体物理研究所, 冲击波物理与爆轰物理重点实验室, 绵阳 621900)

2) (中国工程物理研究院激光聚变研究中心, 绵阳 621900)

(2020 年 6 月 16 日收到; 2020 年 7 月 15 日收到修改稿)

高功率激光可通过直接烧蚀产生高温、高压、高应变率的物质状态, 同时也可驱动金属箔产生与之精密同步的超短超强 X 射线源, 成为利用原位 X 射线衍射技术研究材料在极端高温、高压、高应变率下相变动力学的重要实验平台. 本文基于原型高功率激光装置建立高压、高应变率加载下材料相变的原位 X 射线衍射诊断平台, 并以典型金属钒和铁为例开展冲击相变的原位观测. 实验表明, 在高应变率 ( $10^8$ — $10^9$  s<sup>-1</sup>) 冲击加载下, 金属钒在 69 GPa 时依然保持体心立方结构不变, 而金属铁在 159 GPa 时已经由体心立方结构转变为六角密排结构, 均与文献报道一致. 同时原位 X 射线衍射实验测量的材料压缩特性与宏观 Hugoniot 曲线符合得很好. 利用原位 X 射线衍射技术研究高应变率动态加载下材料的相变行为对理解材料相变的应变率效应和动力学过程具有重要的科学意义, 同时对提高材料工程服役的可靠性以及突破材料极端环境服役的发展瓶颈具有重要的工程价值.

**关键词:** 高应变率加载, 原位 X 射线衍射, 冲击相变, 高功率激光

**PACS:** 62.50.Ef, 64.60.A-, 52.38.Mf

**DOI:** 10.7498/aps.69.20200929

## 1 引言

固体材料在受到高速撞击、爆炸等强冲击载荷作用时可能发生相变, 即从一种晶体结构转变为另一种晶体结构. 由于晶体结构决定了材料的性质, 因此相变也会对材料力学特性产生显著影响, 如石墨在高温高压作用下转变为金刚石, 其中六角层状结构的石墨是最软的物质之一, 而立方晶体结构的金刚石却是自然界最坚硬的物质.

相变不仅会对材料力学性质产生影响, 而且还

具有应变率效应, 即在不同加载应变率 ( $\dot{\epsilon} = \frac{1}{V_0} \frac{dV}{dt}$ )

下材料往往表现出不同的相变行为. 一方面相变压力可能随应变率的变化而发生改变, 这主要源于动载下材料塑性变形机制 (位错滑移或孪晶)、相变进行方式 (原子重排路径) 以及二者的耦合均与应变率有关. 实验研究表明, 铋<sup>[1]</sup> 和铁<sup>[2,3]</sup> 相变的起始压力随加载应变率的增大而明显升高, 当应变率高于  $10^6$  s<sup>-1</sup> 时, 相变压力呈指数增长. 另一方面相变路径也可能随应变率的升高出现亚稳相而发生改变. 冲击加载本身就是一个快速“淬火”过程, 可使

\* 科学挑战专题 (批准号: JCKY2016212A501)、国家自然科学基金 (批准号: 11802290, 11704357) 和科工局稳定支持项目 (批准号: JCKYS2018212004, JCKYS2018212002) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: chenxh1988@126.com

‡ 通信作者. E-mail: lijun102@caep.cn

处于高温高压的亚稳相原子在扩散到其平衡态结构之前就将位置“固定”下来. 亚稳相的出现与冷速有强烈相关性, 加载应变率越高, 冷速就越大, 过冷度也越大, 就越容易形成亚稳相. 在高应变率激光加载下, 铋<sup>[4]</sup>和锆<sup>[5]</sup>相变路径中都出现了低应变率加载下不曾出现的亚稳相.

由于材料力学特性是进行工程结构安全、可靠性设计的基础, 而相变会对材料力学性质产生重要影响且表现出应变率效应, 因此建立实验平台从根本上研究材料在宽广应变率动态载荷下的相变行为, 揭示加载应变率对相变压力和相变路径的影响, 对描述相变动力学过程和构建材料应变率相关的多相状态方程具有重要的科学意义, 同时对提高材料工程服役的可靠性以及突破材料极端环境服役的发展瓶颈具有十分重要的工程意义.

早期对动态相变的实验研究主要采用霍普金森杆、轻气炮、化爆等加载手段, 研究的应变率一般不超过  $10^6 \text{ s}^{-1}$ . 激光加载是另外一种重要的高压驱动技术, 其通过在极短的时间(纳秒量级甚至更短)内向材料表面沉积巨大的能量并产生数百 GPa 甚至数 TPa 的压力, 加载应变率介于  $10^6$ — $10^9 \text{ s}^{-1}$  之间, 能够覆盖常规加载方式不能达到的更高压力和应变率范围, 成为研究极端高温、高压、高应变率下材料相变的重要手段. 另外, 冲击相变实验通常采用基于激光干涉测速的应力波剖面测量<sup>[6]</sup>, 通过细致的波剖面分析(如典型的三波结构)可以间接获取材料相变信息, 然而相变的本质是微观晶体结构的改变, 波剖面测量无法回答相变过程中微观结构转变过程, 形成新相是什么结构, 是否存在亚稳相等问题. 相反, X 射线衍射是材料晶格结构分析的重要方法, 因此原位 X 射线衍射可直接获取冲击压缩下材料微观晶体结构以及结构转变过程. 除了动态加载, 高功率激光还可驱动金属箔产生超短超强的 X 射线源<sup>[7]</sup>, 为原位 X 射线衍射技术开发提供能量可调的微焦点脉冲源. 根据原位 X 射线衍射得到的材料晶体结构随温度、压力的变化关系可以敏锐而直接地捕获到固-固和固-液(熔化)相变的发生, 并确定相变压力以及可能的亚稳相. 相变压力和亚稳相随加载应变率的变化关系还可揭示相变的应变率效应.

随同步辐射光源<sup>[8,9]</sup>、X 射线自由电子激光<sup>[10,11]</sup>和高功率激光<sup>[12-15]</sup>的快速发展, 越来越多动态实

验采用原位 X 射线衍射技术来观测材料在极端高温高压下的晶体结构. 基于同步辐射和自由电子激光的动态压缩平台虽然可受益于超短超强、高相干的 X 射线脉冲, 但其配套的加载装置(纳秒激光或轻气炮)驱动压力仅限于 100 GPa 量级<sup>[8-11]</sup>, 且实验机时申请极其困难. 基于高功率激光的动态压缩平台(如美国国家点火装置和 OMEGA 激光装置)冲击压力可达到 TPa 量级<sup>[13,16,17]</sup>, 且驱动金属箔产生的 X 射线脉冲强度足以产生可供结构分析的衍射图像<sup>[13,17]</sup>, 成为超高压、高应变率动态加载下材料相变原位观测并揭示高应变率对相变压力和相变路径影响的重要手段.

前期本团队已基于神光 II 激光装置建立了冲击压缩下单晶材料晶格响应测量方法<sup>[15,18]</sup>, 本文基于原型激光装置发展高应变率冲击加载下多晶材料相变的原位 X 射线衍射技术, 并应用于典型金属材料钒和铁在高压、高应变率加载下结构演化的直接观测. 实验表明金属钒在 69 GPa 时依然保持体心立方结构不变, 而金属铁在 159 GPa 已经由体心立方结构转变为六角密排结构, 且原位 X 射线衍射获取的材料压缩特性与宏观 Hugoniot 曲线符合得很好.

## 2 实验方法

基于原型高功率激光装置建立的高压、高应变率加载下材料相变的原位 X 射线衍射实验平台针对多晶薄膜样品, 采用透射式衍射技术结合激光冲击加载, 获取不同温度、压力状态下材料的晶体结构, 实验探测系统如图 1 所示. 实验利用第九路激光束经束匀滑后驱动样品产生高温高压的物质状态, 同时利用另外精密同步的四束激光驱动背光靶(金属箔)产生超短超强的 X 射线源, 为材料冲击相变的原位 X 射线衍射提供微焦点脉冲 X 射线源. 同时, 利用激光干涉测速仪测量样品压力演化历史, 并采用平面晶体谱仪获取脉冲 X 射线源的高分辨率能谱信息.

### 2.1 样品和高压高应变率加载

为获取高压、高应变率的压缩状态, 样品一般采用层状结构, 即样品前端粘贴有烧蚀层(图 1). 在超高压实验中烧蚀层和样品之间还需增加热屏蔽层(如金箔), 防止样品被激光等离子体产生的热

电子加热. 高功率激光 ( $> 10^{11} \text{ W/cm}^2$ ) 经聚焦后直接辐照到样品前端的烧蚀层 (通常选用聚酰亚胺, Polyimide (PI)), 被烧蚀的物质被迅速加热, 发生熔化、气化, 形成等离子体并向真空高速飞散, 由于动量守恒, 将在烧蚀面上产生指向样品内的强冲击波, 并使样品在极短时间 (纳米量级) 内达到高温高压的冲击压缩状态 [19]. 在利用直接烧蚀产生冲击波 (即直接驱动) 的过程中, 冲击波的平面性对激光能量空间波动非常敏感, 因此加载激光束在辐照样品之前需先采用连续相位板进行空间束匀滑.

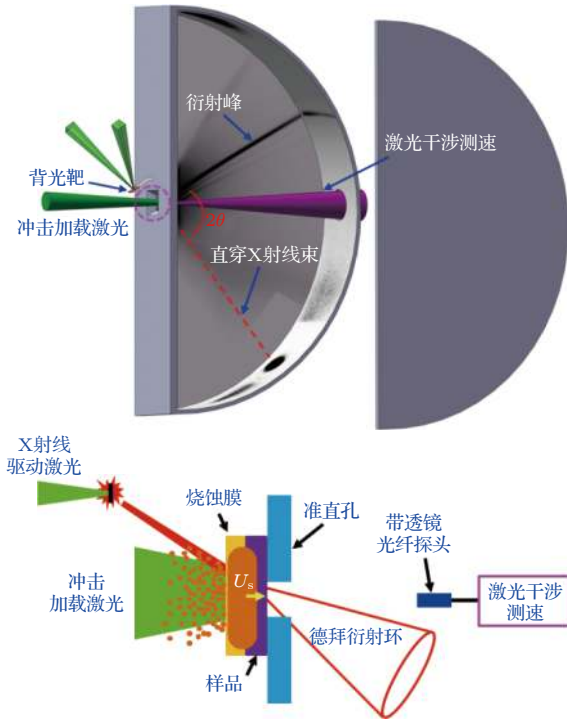


图 1 基于原型装置的材料冲击相变原位 X 射线衍射探测系统图以及样品区局部放大图

Fig. 1. Experimental setup for *in situ* X-ray diffraction of shock-compressed polycrystalline. A schematic of the target is shown below.

利用多普勒激光干涉测速仪 (displacement interferometer system for any reflector, DISAR) [20] 测量样品在冲击加载下的压力演化历史. 激光干涉测速仪是基于多普勒效应 (当光波入射在运动物体上时, 运动物体将改变反射光波的频率) 采集不同时刻运动物体界面反射光与参考光形成的干涉条纹, 通过对数据进行分析 and 计算获得运动物体的速度剖面. 由于样品后端面未添加窗口, 因此样品高压下的粒子速度  $U_p$  可近似为自由面粒子速度  $U_f$  的

一半, 即  $U_p = \frac{1}{2}U_f$ . 这是因为当冲击波传播到自由面时会反射一个中心稀疏波, 同时自由面压力降为零. 由于稀疏波区的熵保持不变, 因此卸载过程是等熵过程, 进而在冲击实验中通常利用冲击绝热线的镜像对称线作为等熵卸载线, 即镜像近似解. 样品内部的冲击压力  $P$  可通过

$$P = \rho_0 U_s U_p, \quad (1)$$

$$U_s = C_0 + \lambda U_p \quad (2)$$

计算, 其中  $U_s$  为冲击波速度,  $\rho_0$  为样品初始密度, 而  $C_0$  和  $\lambda$  为材料性质的常数, 表征粒子速度与冲击波速度的关系. 本文中两种金属材料相关的性质参数如表 1 所列.

表 1 金属钒 [21] 和铁 [22] 材料性质常数  
Table 1. Parameters for vanadium and iron.

Material	$\rho_0/\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$	$C_0/\text{km}\cdot\text{s}^{-1}$	$\lambda$
V	6.105	5.044	1.242
Fe	7.850	3.935	1.578

## 2.2 脉冲 X 射线源和衍射

当纳秒高功率激光聚焦到百微米尺度 (功率密度约为  $10^{14}—10^{16} \text{ W/cm}^2$ ) 并驱动金属箔 (即背光靶, 厚约  $10 \mu\text{m}$ ) 产生热等离子体, 高剥离态 (主要是类氦态) 的金属离子退激产生  $4\pi$  空间发散、高亮度、准单色的脉冲 X 射线源 [7]. X 射线源的源尺寸和脉冲宽度均与驱动激光焦斑 (约  $300 \mu\text{m}$ ) 和脉宽相当 (约  $1 \text{ ns}$ ), 二者共同决定了原位 X 射线衍射的时间、空间分辨能力. 而特征 X 射线能量是由背光靶材料决定的, 如钒、铁和铜箔对应的  $\text{He}_\alpha$  能量分别为 5.21, 6.70 和 8.39 keV. 当  $\text{He}_\alpha$  能量超过 10 keV 时, 激光-X 射线转化效率将显著降低 [23], 这是因为转换效率取决于激光等离子体的温度, 高原子序数材料 (对应更高的特征 X 射线能量) 需要更高的等离子体温度将金属原子电离到高电荷态 (类氦), 而纳秒高功率激光一般仅能将等离子体加热到数 keV. 脉冲 X 射线源的亮度与激光功率密度和激光-X 射线转化效率密切相关, 是影响原位 X 射线衍射图像信噪比的关键因素.

原位 X 射线衍射是采用 Debye-Scherrer 结构 [12–15,24], 背光靶距离样品约 28 mm, 且与样品法线呈  $45^\circ$ . X 射线透过烧蚀层、样品和准直孔, 当布拉格条件满足时发生 X 射线衍射, 并被大立体角

探测器阵列记录下来 (图 1). 准直孔 (厚度 100  $\mu\text{m}$ , 孔径 300  $\mu\text{m}$ ) 是由高原子序数钨箔制成, 用于获取高空间分辨的衍射峰. 为有效屏蔽激光等离子体产生的高亮度、宽能谱的本底辐射 (主要包含 X 射线和电子束), 衍射探测器主体结构同样由高原子序数材料 (如钨、钽、铅等) 加工而成, X 射线衍射探测器阵列由三片高灵敏度、宽动态范围的 IP 成像板 (image plate, 日本富士 BAS-SR) 组成并呈半圆形空间包络结构. 为进一步提升 X 射线衍射图像信噪比并有效防护激光物质相互作用产生溅射物对探测器的破坏, IP 成像板前粘贴有金属箔滤片和 CH 保护膜. 金属箔滤片主要利用 X 射线吸收边的原理抑制高亮的辐射本底, 同时尽可能减少对衍射 X 射线束的衰减. 实验打靶完成后, IP 成像板经扫描仪 (日本富士 FLA-7000 型, 扫描精度为 25  $\mu\text{m}$ ) 扫描得到 X 射线衍射图像. 根据系统结构将二维衍射图像转化为一维 X 射线衍射曲线, 即衍射强度随  $2\theta$  的变化曲线, 并通过 XRD 精修获取样品在实验达到的高温、高压、高应变率状态下的晶体结构, 以及对应的微观晶格压缩和结构变化信息.

另外实验利用平面晶体谱仪测量激光等离子体 X 射线源的高分辨率能谱, 不仅为 X 射线衍射分析提供精确的特征 X 射线波长, 而且能够为 IP 成像板本底屏蔽提供重要的能谱数据. 平面晶体谱仪的工作原理与 X 射线衍射分析正好相反, 即根据布拉格定律  $\lambda = 2d\sin\theta$ , 采用晶面间距  $d$  已知的单晶材料 (通常为氟化锂或石英), 通过测量强度随衍射角  $\theta$  的变化获取 X 射线能谱  $\lambda$  信息. 实验谱仪采用石英晶体, 晶面间距  $2d = 0.6687$  nm, 入口狭缝长 25 mm, 宽 5 mm. 激光驱动金属箔产生的 X 射线通过前端狭缝照射到晶体上, 当布拉格条件满足时, X 射线经晶体衍射后按照波长由小到大顺序记录在经严格本底屏蔽的 IP 成像板上. 通过扫描仪可得到 X 射线能谱原始图像, 再对原始图像沿空间分辨方向积分得到激光等离子体 X 射线能谱.

### 3 结果及分析

#### 3.1 钒的冲击相变

实验采用第九束激光驱动钒样品产生冲击波, 当冲击波传播到样品中间位置 (厚度方向) 但未抵

达后界面时, 再利用另外四束激光辐照钒背光靶产生 1 ns, 5.21 keV 超强 X 射线脉冲, X 射线衍射将此刻高温、高压、高应变率下钒的瞬时微观结构“冻结”在 IP 成像板上. 由于 X 射线衍射探测时刻, 冲击波波阵面还未传播到钒样品后界面, 样品中波后的区域处于高温高压状态, 而波前区域仍处于常温常压态, 因此透射式 X 射线衍射图像同时记录到钒样品冲击载荷下和常温常压下的原位晶体结构. 实验中钒样品和钒背光靶均采用厚度为 25  $\mu\text{m}$  的多晶材料 (Goodfellow), 探测器阵列中三块 IP 板采集到的 X 射线衍射图像经扫描后展开如图 2(a) 所示. 经轧制的钒样品, 晶粒取向主要是 [001] 方向, 垂直于样品表面, 且晶粒尺寸约 10  $\mu\text{m}$ . 平面晶体谱仪测量的 X 射线能谱如图 2(b) 所示, 能谱中除高强度的  $\text{He}_\alpha$  外, 还有较弱的  $\text{Ly}_\alpha$  线谱.

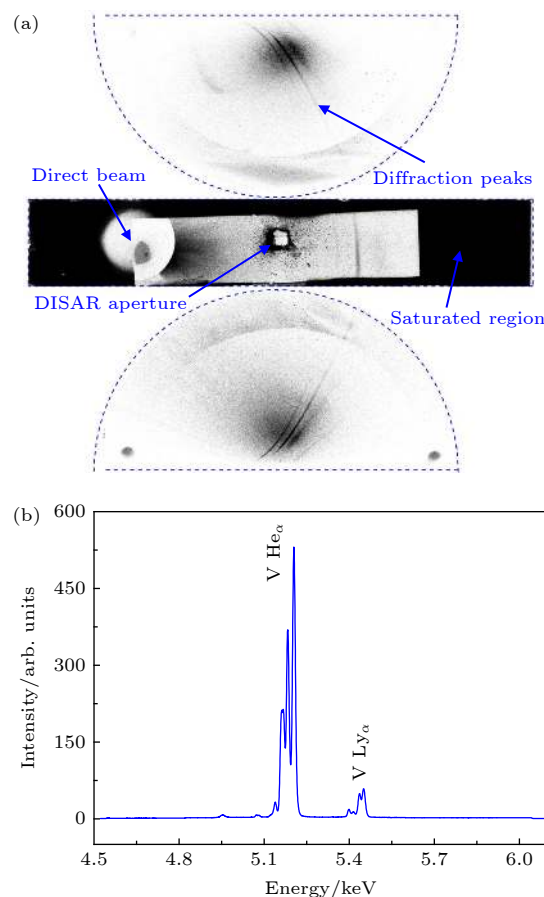


图 2 (a) 冲击压力为  $(69.36 \pm 9.31)$  GPa 时多晶钒原位 X 射线衍射图像; (b) 平面晶体谱仪测量的高功率激光驱动钒箔产生的 X 射线源能谱, 能谱中主要是  $\text{He}_\alpha$  线

Fig. 2. (a) *In situ* X-ray diffraction image recorded for vanadium under pressure of  $(69.36 \pm 9.31)$  GPa; (b) the X-ray spectrum emitted by the resulting vanadium foil is measured with crystal spectrometer and shows the dominant  $\text{He}_\alpha$  line.

根据原位 X 射线衍射探测系统结构, 通过坐标变换将衍射图像转换到常用于 X 射线衍射分析的  $2\theta$ - $\phi$  空间, 如图 3(a) 所示, 在  $2\theta$ - $\phi$  空间全部衍射峰变成一系列平行直线, 进一步沿  $\phi$  方向积分得到常规的 X 射线衍射曲线, 即衍射强度随衍射角  $2\theta$  的变化, 如图 3(b) 所示. 透射式 X 射线衍射不仅记录到钒样品冲击压缩和常温常压下的衍射峰, 还捕获到准直孔钽的衍射峰. 常温常压下钒和钽的衍射峰可用于衍射系统角度的精密校准. 另外, 常温常压下钒的衍射信号还可以为精密衍射分析中消除因初始样品差异引入的误差提供参考. 根据激光干涉测速仪中示波器记录到的条纹数据分析得到的样品自由面粒子速度演化历史如图 3(c) 所示. 若冲击波后粒子速度近似为样品自由面粒子速度的一半, 利用 (1) 式和 (2) 式可计算得到样品的冲击压力为  $(69.36 \pm 9.31)$  GPa, 压力不确定度主要来自自由面速度剖面测量的不确定度.

除常温常压下钒和钽的衍射峰外, 衍射曲线在  $2\theta = 74.64^\circ$  处出现新衍射峰, 且展宽明显比其他静态峰宽. 因衍射峰数量太少, 不能通过 X 射线衍射精修技术直接获取钒高压下的晶体结构. 假设钒在当前高温高压条件下依然保持体心立方 (BCC) 结构不变, 那么新衍射峰就对应着  $(69.36 \pm 9.31)$  GPa 下钒 (110) 峰, 进一步可依据  $\rho/\rho_0 = (\sin\theta/\sin\theta_0)^3$  计算钒高压下的密度, 其中  $\theta$ ,  $\theta_0$  分别对应着钒高温高压和常温常压下  $(110)_{\text{BCC}}$  晶面布拉格衍射角. 结合激光干涉测速仪得到的样品压力, 原位 X 射线衍射实验获取的材料压缩特性状态 ( $\rho/\rho_0$ ,  $P$ ) 与钒 Hugoniot 曲线<sup>[2]</sup> 符合得非常好 (图 3(d)), 进而证实钒在当前压力下依然保持体心立方结构的假设是合理的. 实验中钒在 0.7 ns 时间内压力由常压升高至 69.36 GPa, 高压导致微观晶格体积塌缩了 21.6%, 对应的加载应变率约为  $3.09 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$ . 另外, 冲击压缩过程中材料压力上升越高, 熵增加越

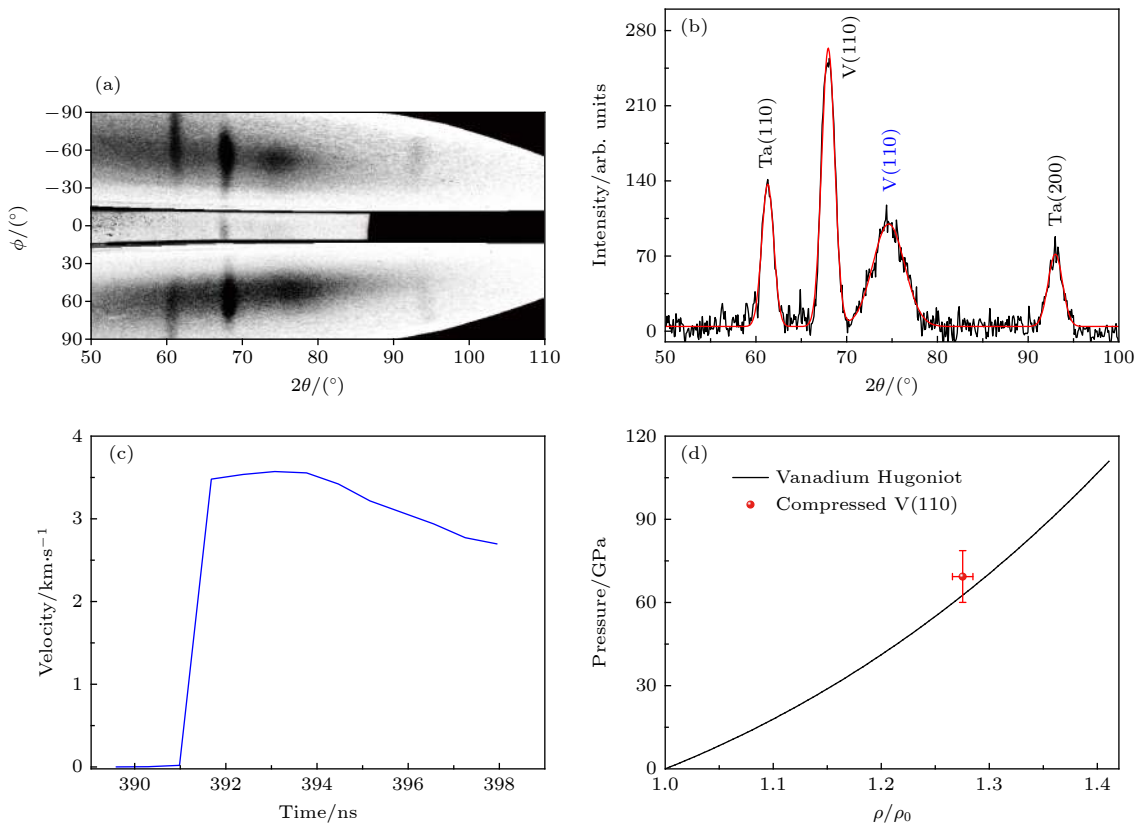


图 3 (a) 通过坐标变换将钒原位 X 射线衍射图像转换到  $2\theta$ - $\phi$  空间; (b) 沿  $\phi$  方向积分并扣除本底后得到一维 X 射线衍射曲线; (c) 激光干涉测速仪 (DISAR) 测量的钒样品自由面粒子速度演化历史, 据此可计算样品压力; (d) 原位 X 射线衍射实验测量的压力与压缩比 ( $\rho/\rho_0$ ) 的关系, 实线代表轻气炮测量得到的钒 Hugoniot 曲线

Fig. 3. (a) X-ray diffraction data for shock-compressed vanadium projected into  $2\theta$ - $\phi$  space; (b) the corresponding background-subtracted one-dimensional X-ray diffraction pattern; (c) the free surface velocity of vanadium recorded by the DISAR system; (d) pressure vs. compression ratio ( $\rho/\rho_0$ ) for vanadium, where Hugoniot measurements from gas gun experiments are shown as solid line.

大, 温度上升也越高. 温度是表征物质热力学状态的一个重要参量. 冲击波引起的温升对于冲击相变有十分重要的意义, 因为相变受温度和压力的双重控制. 根据大量 Hugoniot 实验数据可知, 当冲击压力达到 69 GPa, 钒样品温度约为 1000 K.

国内外已对金属钒的高压相图开展了大量实验和理论研究. 早期的研究认为金属钒在极高的压力下保持体心立方晶格结构不变<sup>[25]</sup>, 但在 2007 年, Ding 等<sup>[26]</sup>结合同步辐射 X 射线衍射技术以及金刚石对顶砧静高压技术, 发现金属钒在 63—69 GPa 时晶体结构由体心立方结构转变至菱方结构, 即体心立方结构的钒 (110) 峰劈裂成菱方结构钒 ( $10\bar{1}$ ) 和 ( $00\bar{1}$ ) 峰. 随后的第一性原理计算<sup>[27]</sup>证实了该相变的存在. 在动高压实验中俞宇颖等<sup>[28]</sup>利用轻气炮开展了冲击压缩下钒的高压声速测量, 发现钒的欧拉声速在约 60.5 GPa 处发生拐折, 并推测是发生了体心立方结构向菱方结构的转变, 但是 2017 年高应变率激光加载原位 X 射线衍射实验并未观测到钒在 63—69 GPa 时由体心立方结构转变到菱方结构<sup>[29]</sup>.

本文的实验冲击压力正好处于 63—69 GPa 区间, 同样没有观测到该相变的发生, 可能有两方面的原因: 一方面, 原位 X 射线衍射实验的空间分辨能力有限, 暂无法判断 (110) 峰是否发生劈裂以及背后的晶体结构转变; 另一方面, 随着加载应变率的升高, 金属钒相变压力可能也会增大, 实验冲击压力也许未达到相变起始压力.

### 3.2 铁的冲击相变

实验采用第九束激光驱动铁样品产生冲击波, 当冲击波传播到样品中间位置 (厚度方向) 但未抵达后界面时, 再利用四束激光辐照铁背光靶产生 1 ns, 6.70 keV 超强 X 射线脉冲, X 射线衍射将此刻高压、高应变率下铁的瞬时微观结构“冻结”在 IP 成像板上. 同样由于 X 射线衍射探测时刻, 冲击波阵面还未传到样品后界面, 样品中波后的区域处于高温高压状态, 而波前区域仍处于常温常压状态, 因此透射式 X 射线衍射图像同时记录了铁样品冲击载荷下和常温常压下的晶体结构. 实验中铁样品和铁背光靶均采用 15  $\mu\text{m}$  的多晶材料 (Goodfellow), 衍射探测器阵列中三块 IP 板记录到的 X 射线衍射图像经扫描展开, 如图 4(a) 所示. 经轧制的铁样品, 晶粒取向主要是 [110] 方向垂直于样

品表面, 且晶粒尺寸介于 3—5  $\mu\text{m}$ . 平面晶体谱仪采集到的 X 射线源积分能谱如图 4(b) 所示, 能谱中除高强度的  $\text{He}_\alpha$  外, 还有弱  $\text{Ly}_\alpha$  和  $\text{K}_\alpha$  线谱.

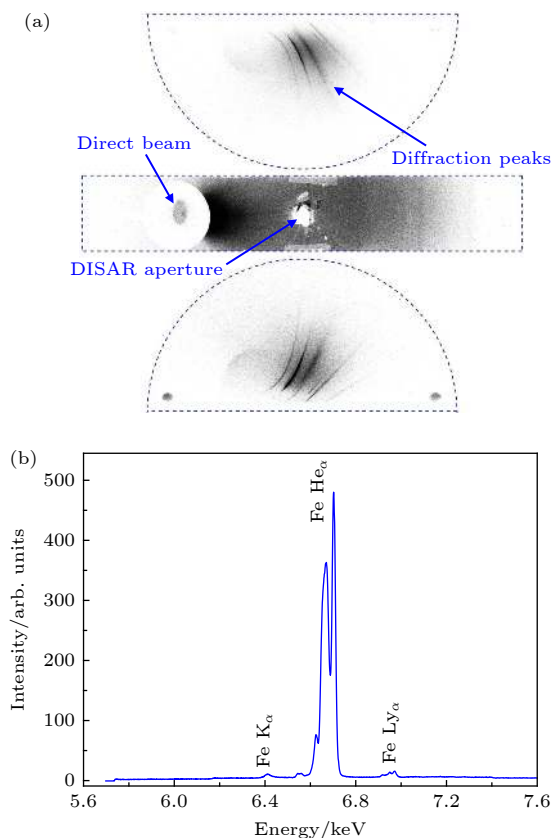


图 4 (a) 冲击压力为  $(159.30 \pm 6.11)$  GPa 时多晶铁原位 X 射线衍射图像; (b) 平面晶体谱仪测量的高功率激光驱动铁箔产生的 X 射线源能谱, 能谱中主要是  $\text{He}_\alpha$  线

Fig. 4. (a) *In situ* X-ray diffraction image recorded for iron under pressure of  $(159.30 \pm 6.11)$  GPa; (b) the X-ray spectrum emitted by the resulting iron foil is measured with crystal spectrometer and shows the dominant  $\text{He}_\alpha$  line.

经坐标变换, 衍射图像转换到常用于 X 射线衍射分析的  $2\theta$ - $\phi$  空间, 如图 5(a) 所示. 进一步沿  $\phi$  方向积分得到常规的 X 射线衍射曲线, 如图 5(b) 所示. 透射式 X 射线衍射既记录到铁样品冲击压缩和常温常压下的衍射峰, 又捕获到准直孔钽的衍射峰. 常温常压下铁和钽的衍射峰可用于衍射系统角度的精密校准, 另外常温常压下铁的衍射信号还可以为精密衍射分析中消除因初始样品差异引入的误差提供参考. 根据激光干涉测速仪中示波器记录的条纹数据分析得到的样品自由面粒子速度演化历史见图 5(c). 若冲击波后粒子速度可近似为样品自由面粒子速度的一半, 利用 (1) 式和 (2) 式可计算得到样品的冲击压力为  $(159.30 \pm 6.11)$  GPa.

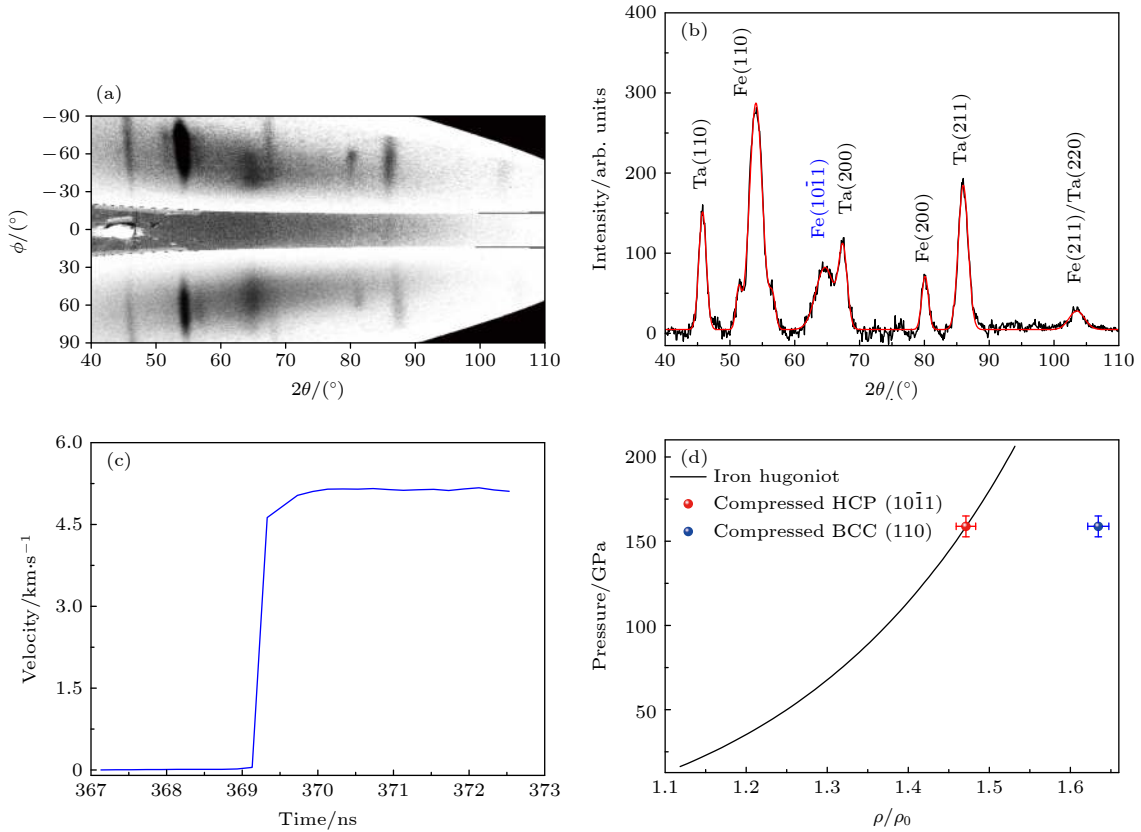


图 5 (a) 通过坐标变换将铁原位 X 射线衍射图像转换到  $2\theta$ - $\phi$  空间; (b) 沿  $\phi$  方向积分并扣除本底后得到一维 X 射线衍射曲线; (c) 激光干涉测速仪 (DISAR) 测量的铁样品自由面粒子速度演化历史, 据此可计算样品压力; (d) 原位 X 射线衍射实验测量的压力与压缩比 ( $\rho/\rho_0$ ) 的关系, 实线代表轻气炮测量得到的铁 Hugoniot 曲线

Fig. 5. (a) X-ray diffraction data for shock-compressed iron projected into  $2\theta$ - $\phi$  space; (b) the corresponding background-subtracted one-dimensional X-ray diffraction pattern; (c) the free surface velocity of iron recorded by the DISAR system; (d) pressure vs. compression ratio ( $\rho/\rho_0$ ) for iron, where Hugoniot measurements from gas gun experiments are shown as solid line.

除常温常压下铁和钽的衍射峰外, 衍射曲线在  $2\theta = 64.68^\circ$  处出现新衍射峰, 同样展宽明显高于其他静态衍射峰. 由于衍射峰的数量太少, 不能通过 X 射线衍射精修技术直接获取铁高压下的晶体结构. 首先假设冲击压缩下铁依然保持体心立方 (BCC) 结构不变, 那么新衍射峰就对应着高压下铁的  $(110)_{\text{BCC}}$  峰, 进一步可计算铁高压下的密度. 结合激光干涉测速仪得到的样品压力, 衍射实验测量的冲击压缩特性状态 ( $\rho/\rho_0, P$ ) 显著偏离铁 Hugoniot 曲线<sup>[22]</sup>(图 5(d)), 表明上述假设不合理. 其次若假设新衍射峰源于面心立方结构 (FCC), 其最可能对应着峰幅度最大的  $(111)_{\text{FCC}}$ , 此时计算得到的铁高压下密度 ( $0.89\rho_0$ ) 小于常压密度, 与物理事实不符; 若新衍射峰对应幅度次强的  $(200)_{\text{FCC}}$ , 计算得到的高压下的密度 ( $0.58\rho_0$ ) 同样比常压密度小, 违反物理事实. 最后假设铁在该压力下发生  $\alpha \rightarrow \epsilon$  相变, 此时新衍射峰最可能对应着幅度最强

的铁  $(10\bar{1}1)_{\text{HCP}}$ . 激光加热金刚石对顶砧实验<sup>[30]</sup>表明在 160 GPa, 2000—4000 K 条件下, 铁的  $c/a \approx 1.61$ . 若铁在实验获得的高温高压条件下  $c/a$  比取 1.61, 此时原位 X 射线衍射实验得到的冲击压缩特性状态 ( $\rho/\rho_0, P$ ) 与多晶铁 Hugoniot 曲线符合得非常好 (如图 5(d) 所示), 即实验直接观测到多晶铁在  $(159.30 \pm 6.11)$  GPa 冲击加载下发生 BCC-HCP 结构转变. 实验中铁在 0.2 ns 时间内压力由常压升高至 159.30 GPa, 高压导致铁晶格由体心立方转换为六角密排结构, 微观晶格体积塌缩了 33.14%, 对应的加载应变率约为  $3.3 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$ . 根据大量铁 Hugoniot 实验数据可知, 当冲击压力达到 159 GPa, 铁样品温度约为 3300 K.

铁在 13 GPa 下发生的  $\alpha \rightarrow \epsilon$  相变是冲击相变研究最早也是最广泛的实验. 原位 X 射线衍射实验表明铁在  $(159.30 \pm 6.11)$  GPa 下以 HCP 结构存在, 与法国 LULI 激光装置上开展的衍射实验结



果<sup>[31]</sup>一致, 其原位 X 射线衍射实验同样发现铁在 170 GPa 下是 HCP 结构, 但本文衍射图像的信噪比要优于对方。

## 4 结 论

由于固有的织构和晶界属性, 多晶材料比单晶的 X 射线衍射效率低. 同时, 在高压高应变率冲击加载下, 多晶 X 射线衍射效率随着微结构无序化程度的增高而显著降低, 这就导致高压高应变率下材料原位 X 射线衍射图像往往仅能记录到少量甚至只有一条衍射峰, 这给晶体结构的精确解析带来了很大的不确定性. 可通过增加 X 射线驱动激光能量来增加 X 射线脉冲产额, 进而提升原位 X 射线衍射图像信噪比, 获取多条衍射峰, 保障极端条件下晶体结构的精密分析.

激光动态加载能够覆盖常规加载方式不能达到的压力和应变率范围, 成为研究极端高温、高压、高应变率下材料相变的有力手段, 而原位 X 射线衍射可直接获取动态加载下材料微观晶体结构以及结构转变过程, 基于原型高功率激光装置建立的结合高应变率激光加载和原位 X 射线衍射诊断平台成为研究材料高应变率动态相变的重要实验平台. 利用原位 X 射线衍射技术研究高应变率 ( $> 10^6 \text{ s}^{-1}$ ) 冲击加载下材料的相变行为对理解材料相变的应变率效应和描述相变动力学过程具有重要的科学意义, 同时对提高材料工程服役的可靠性以及突破材料极端环境服役的发展瓶颈具有十分重要的意义.

感谢原型装置运行团队在实验中的帮助.

## 参 考 文 献

- [1] Smith R F, Eggert J H, Saculla M D, Jankowski A F, Bastea M, Hicks D G, Collins G W 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 065701
- [2] 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
- [3] Amadou N, Resseguier T, Brambrink E, Vinci T, Benuzzi-Mounaix A, Huser G, Morard G, Guyot F, Miyashishi K, Ozaki N, Kodama R, Koenig M 2016 *Phys. Rev. B* **93** 214108
- [4] Gorman M G, Coleman A L, Briggs R, McWilliams R S, McGonagle D, Bolme C A, Gleason A E, Galtier E, Lee H J, Granados E, Sliwa M, Sanloup C, Rothman S, Fratanduono D E, Smith R F, Collins G W, Eggert J H, Wark J S, McMahon M I 2018 *Sci. Rep.* **8** 16927
- [5] Armstrong M R, Radousky H B, Austin R A, Stavrou E,

- Zong H, Ackland G J, Brown S, Crowhurst J C, Gleason A E, Granados E, Grivickas P, Holtgrewe N, Lee H J, Li T T, Lobanov S, McKeown J T, Nagler R, Nam I, Nelson A J, Prakapenka V, Prescher C, Roehling J D, Teslich N E, Walter P, Goncharov A F, Belof J L 2018 [arXiv:1808.02181v1](https://arxiv.org/abs/1808.02181v1)
- [6] Barker L M, Hollenbach R E 1974 *J. Appl. Phys.* **45** 4872
- [7] Maddox B R, Park H S, Remington B A, Chen C, Chen S, Prsbrey S T, Comley A, Back C A, Szabo C, Seely J F, Feldman U, Hudson L T, Seltzer S, Haugh M J, Ali Z 2011 *Phys. Plasmas* **18** 056709
- [8] Turneaure S J, Sinclair N, Gupta Y M 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 045502
- [9] Sharma S M, Turneaure S J, Winey J M, Li Y, Rigg P, Schuman A, Sinclair N, Toyoda Y, Wang X, Weir N, Zhang J, Gupta Y M 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 045702
- [10] Milathianaki D, Boutet S, Williams G J, Higginbotham A, Ratner D, Gleason A E, Messerschmidt M, Seibert M M, Swift D C, Hering P, Robinson J, White W E, Wark J S 2013 *Science* **342** 220
- [11] Coleman A L, Gorman M G, Briggs R, McWilliams R S, McGonagle D, Bolme C A, Gleason A E, Fratanduono D E, Smith R F, Galtier E, Lee H J, Nagler B, Granados E, Collins G W, Eggert J H, Wark J S, McMahon M I 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 255704
- [12] Coppari F, Smith R F, Eggert J H, Wang J, Rygg J R, Lazicki A, Hawreliak J A, Collins G W, Duffy T S 2013 *Nat. Geosci.* **6** 926
- [13] Wang J, Coppari F, Smith R F, Eggert J H, Lazicki A E, Fratanduono D E, Rygg J R, Boehly T R, Collins G W, Duffy T S 2016 *Phys. Rev. B* **94** 104102
- [14] Wicks J K, Smith R F, Fratanduono D E, Coppari F, Kraus R G, Newman M G, Rygg J R, Eggert J H, Duffy T S 2018 *Sci. Adv.* **4** eaao5864
- [15] Chen X, Xue T, Liu D, Yang Q, Luo B, Mu Li, Li X, Li J 2018 *Rev. Sci. Instrum.* **89** 013904
- [16] McCoy C A, Marshall M C, Polsin D N, Fratanduono D E, Celliers P M, Meyerhofer D D, Boehly T R 2019 *Phys. Rev. B* **100** 014106
- [17] Lazicki A, Rygg J R, Coppari F, Smith R, Fratanduono D, Kraus R G, Collins G W, Briggs R, Braun D G, Swift D C, Eggert J H 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 075502
- [18] Li J, Chen X H, Wu Q, Luo B Q, Li M, Yang Q G, Tao T J, Jin K, Geng H Y, Tan Y, Xue T 2017 *Acta Phys. Sin.* **66** 136101 (in Chinese) [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 2017 *物理学报* **66** 136101]
- [19] Swift D C, Tierney T E, Kopp R A, Gammel J T 2004 *Phys. Rev. E* **69** 036406
- [20] Weng J D, Tan H, Wang X, Ma Y, Hu S L, Wang X S 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 111101
- [21] Gathers G R 1986 *J. Appl. Phys.* **59** 3291
- [22] Brown J M, Fritz J N, Hixson R S 2000 *J. Appl. Phys.* **88** 5496
- [23] Schollmeier M, Ao T, Field E S, Galloway B R, Kalita P, Kimmel M W, Morgan D V, Rambo P K, Schwarz J, Shores J E, Smith I C, Speas C S, Benage J F, Porter J L 2018 *Rev. Sci. Instrum.* **89** 10F102
- [24] Vignes R M, Ahmed M F, Eggert J H, Fisher A C, Kalantar D H, Masters N D, Smith C A, Smith R F 2016 *J. Phys. Conf. Ser.* **717** 012115
- [25] Moriarty J A 1992 *Phys. Rev. B* **45** 2004
- [26] Ding Y, Ahuja R, Shu J, Chow P, Luo W, Mao H K 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 085502

- [27] Qiu S L, Marcus P M 2008 *J. Phys. Condens. Matter* **20** 275218  
 [28] Yu Y Y, Tan Y, Dai C D, Li X M, Li Y H, Tan H 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 026202 (in Chinese) [俞宇颖, 谭叶, 戴诚达, 李雪梅, 李英华, 谭华 2014 物理学报 **63** 026202]  
 [29] Foster J M, Comley A J, Case G S, Avraam P, Rothman S D, Higginbotham A, Floyd E K, Gumbrell E T, Luis J J, McGonegle D, Park N T, Peacock L J, Poulter C P, Suggit M J, Wark J S 2017 *J. Appl. Phys.* **122** 025117  
 [30] Tateno S, Hirose K, Ohishi Y, Tatsumi Y 2010 *Science* **330** 359  
 [31] Denoed A, Ozaki N, Benuzzi-Mounaix A, et al. 2016 *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **113** 7745

## *In situ* observation of phase transition in polycrystalline under high-pressure high-strain-rate shock compression by X-ray diffraction\*

Chen Xiao-Hui<sup>1)†</sup> Tan Bo-Zhong<sup>1)</sup> Xue Tao<sup>1)</sup> Ma Yun-Can<sup>1)</sup> Jin Sai<sup>2)</sup>  
 Li Zhi-Jun<sup>2)</sup> Xin Yue-Feng<sup>1)</sup> Li Xiao-Ya<sup>1)</sup> Li Jun<sup>1)‡</sup>

1) (National Key Laboratory of Shock Wave and Detonation Physics, Institute of Fluid Physics,

China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China)

2) (Research Center of Laser Fusion, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China)

( Received 16 June 2020; revised manuscript received 15 July 2020 )

### Abstract

The knowledge of phase transition of material under dynamic loading is an important area of research in inertial confinement fusion and material science. Though the shock-induced phase transitions of various materials over a broad pressure range have become a field of study for decades, the loading strain rates in most of these experiments is not more than  $10^6 \text{ s}^{-1}$ . However, in contrast with the strain rate range where the phase diagram is a good predictor of the crystal structure of a material, at higher strain rate ( $> 10^6 \text{ s}^{-1}$ ) the phase diagram measured can be quite different not only in shifting the boundary line between various phases, but also in giving a different sequence of crystal structure. High-power laser facility can drive shock wave and simultaneously provide a precisely synchronized ultra-short and ultra-intense X-ray source. Here, based on the Prototype laser facility, an *in situ* X-ray diffraction platform for diagnosing shock-induced phase transition of polycrystalline material is established. The *in situ* observation of material phase transition under high-strain-rate shock loading is carried out with typical metals of vanadium and iron. Diffraction results are consistent with vanadium remaining in the body-centered-cubic structure up to 69 GPa, while iron transforms from the body-centered-cubic structure into hexagonal-close-packed structure at 159 GPa. The compressive properties of vanadium and iron obtained in *in situ* X-ray diffraction experiment are in good agreement with their macroscopic Hugoniot curves. The decrease in the lattice volume over the pressure step period yields a strain rate on the order of  $10^8 - 10^9 \text{ s}^{-1}$ . The available of the presented *in situ* X-ray diffraction platform offers the potential to extend our understanding of the kinetics of phase transition in polycrystalline under high-pressure high-strain-rate shock compression.

**Keywords:** high-strain-rate loading, *in situ* X-ray diffraction, shock-induced phase transition, high power laser facility

**PACS:** 62.50.Ef, 64.60.A-, 52.38.Mf

**DOI:** 10.7498/aps.69.20200929

\* Project supported by the Science Challenge Project, China (Grant No. JCKY2016212A501), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11802290, 11704357), and the National Key Laboratory of Shock Wave and Detonation Physics (Grant Nos. JCKYS2018212004, JCKYS2018212002), China.

† Corresponding author. E-mail: [chenxh1988@126.com](mailto:chenxh1988@126.com)

‡ Corresponding author. E-mail: [lijun102@caep.cn](mailto:lijun102@caep.cn)