

X射线衍射层析术图像重构的若干影响因素研究

杨一鸣^{1,2} 杜国浩¹ 谭海^{1,2} 杨玉双³ 肖体乔^{1,2}

¹中国科学院上海应用物理研究所, 上海 201404

²中国科学院大学, 北京 100049

³澳大利亚联邦科学与工业研究组织, 墨尔本 VIC 3168

摘要 三维X射线衍射层析术(3DXRD)是一种快速的、无损的结构表征技术,用于研究毫米尺度的多晶样品中晶粒(亚晶粒)的空间分布。基于上海光源成像线站BL13W1建立三维X射线衍射层析术实验方法,并对图像重构中的若干影响因素进行了研究。通过椒盐噪声消除、对比度增强,有效提高了寻峰精度;利用德拜-谢勒环粗校与优值方程循环迭代细校相结合的方法,实现了衍射数据的精确校准,进一步采用并行运算,校准效率提高了4.5倍。实验结果表明,该方法可同时实现近场和远场衍射信息探测,从而获取样品中晶粒的尺寸、质心位置、晶体学取向等信息,并能够给出晶粒形变程度的定量信息。

关键词 衍射; X射线衍射; 晶粒重构; 三维X射线衍射层析术; 同步辐射

中图分类号 0722

中图分类号 A

doi: 10.3788/AOS201535.1205001

Research of Several Influential Factors on Reconstruction of Three-Dimensional X-Ray Diffraction

Yang Yiming^{1,2} Du Guohao¹ Tan Hai^{1,2} Yang Yushuang³ Xiao Tiqiao^{1,2}

¹Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China

²University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

³Commonwealth Scientific and Industrial Research Organization, Melbourne VIC 3168, Australia

Abstract Three-dimensional X-ray diffraction (3DXRD) microscopy is a fast and nondestructive structural characterization technique aimed at studies of the spatial distribution of grains (subgrains) within millimetre-sized polycrystalline specimens. The 3DXRD method is successfully established on BL13W1 imaging beam line at Shanghai Synchrotron Radiation Facility. Several influential factors are studied during the process of data analysis. The accuracy of peak searching is improved effectively by using median filter and image enhancement. More accurate alignment can be achieved by the combination of Debye-Scherrer coarse alignment and the iteration of figure-of-merit fine alignment. Further operation of parallel computation increases the efficiency of alignment by 4.5 times. The results show that 3DXRD can obtain both far-field and near-field diffraction information simultaneously, deriving grain information such as grain size, center-of-mass position, crystallographic orientation and the degree of grain deformation.

Key words diffraction; X-ray diffraction; image reconstruction technique; three-dimensional X-ray diffraction; synchrotron radiation

OCIS codes 050.1940; 100.3010; 340.6720

收稿日期: 2015-06-24; 收到修改稿日期: 2015-07-27

基金项目: 国家自然科学基金重点项目(81430087)、国家自然科学基金联合重点项目(U1232205)、国家973计划(2010CB834301)、CAS-CSIRO 国际合作项目(GJHZ1303)

作者简介: 杨一鸣(1988—),男,博士研究生,主要从事晶体的三维X射线衍射层析术方面的研究。

E-mail: yangyiming1988@outlook.com

导师简介: 肖体乔(1966—),男,博士,研究员,博士生导师,主要从事成像光学和X射线光学方面的研究。

E-mail: tqxiao@sinap.ac.cn(通信联系人)

1 引 言

硬多晶材料,例如金属、合金和陶瓷,构成了多数现代工业的基础。这些材料的物理、化学和机械性能在很大程度上取决于它们在晶粒尺度的微结构。因此,全面描述加工过程中的微结构演变成为了研究材料科学的核心问题。

一个多世纪以来,出现了多种应用于材料科学的研究方法,例如光学显微镜,扫描电子显微镜(SEM),透射电子显微镜(TEM),电子背向散射方法(EBSD)等。但若获得样品整体的信息,这些方法存在一个共同的缺陷,即样品必须切片。然而,切片的过程必然会导致样品结构的破坏。并且,通过切片获得的样品信息都是静态的和统计性的,样品的动态信息无法通过上述方法获得。因此,需要一种无损的方法去获得材料完整的结构信息,同时,这种方法应该具备足够的时间分辨能力,以满足对材料动态研究的需求。

三维X射线衍射层析术^[1](3DXRD)满足了这些要求。三维X射线衍射层析术是一种快速的、无损的结构表征技术,用于研究毫米尺度的多晶样品中晶粒(亚晶粒)的空间分布。三维X射线衍射层析术有两种主要的模式:1)模式一仅使用高灵敏度的远场探测器快速获得晶粒的晶体学信息,包括尺寸、相、质心位置、晶体学取向和平均应变张量等。可用于研究材料的应变特性^[2]、成核机制^[3]或生长现象^[4]等。结合Laguerre棋盘算法^[5]可以对远场数据进行近似的三维重构;2)模式二同时使用远场探测器和高分辨近场探测器进行数据采集,可以额外获得样品精确的三维体积重构^[6]。

三维X射线衍射层析术作为一种新的结构表征技术,近十年来发展迅速,相继在欧洲同步辐射光源(ESRF, Grenoble)、德国汉堡同步辐射实验室(HASYLAB, Hamburg)、美国先进光子光源(APS, Chicago)等第三代同步辐射装置上开展专门的研究,而国内在这一方面的研究还处于基础阶段。本文在上海同步辐射光源(SSRF)上开展三维X射线衍射层析术的研究,利用商业纯钛样品进行了模式二的实验验证,对数据处理过程中出现的问题进行了分析及优化,并对模式一进行了初步探讨。

2 原 理

三维X射线衍射层析术的原理示意图如图1所示,入射光经狭缝约束,照射样品的一个层面。样品被固定在转台上,其转轴垂直于入射光。受照射的微结构的任意部分满足布拉格条件时就会产生衍射,这些衍射光被二维探测器所记录。为了采集到完整的结构信息,而非碰巧满足布拉格条件的某一部分,样品需要在一定的角度范围 ω 内旋转,步长为 $\Delta\omega$ 。为了获得均匀的采样,样品将在每次曝光的过程中旋转 $\Delta\omega$ 。

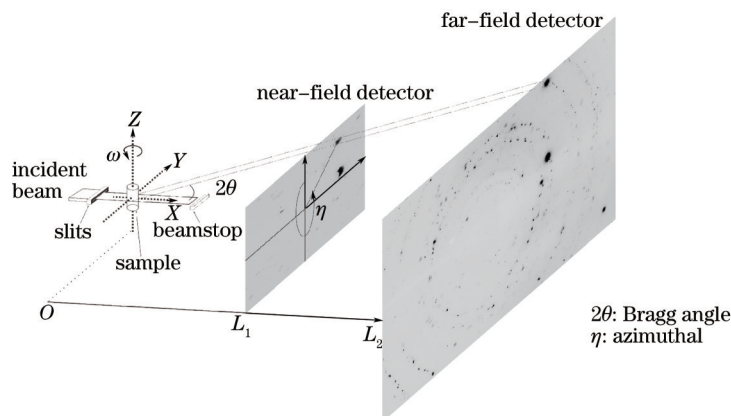


图1 三维X射线衍射层析术原理示意图。分别使用了高分辨的近场探测器和高灵敏度的远场探测器。

Fig.1 Sketch of the 3DXRD. High-resolution near-field detector and low-resolution far-field detector are used.

寻峰^[7]是采用阈值分割的方法,对经过预处理的二维衍射图进行分割,并结合前后数张不同旋转角度的衍射图,来判断衍射峰的位置。对采集的衍射图进行寻峰可以获得衍射斑点的位置坐标、积分强度和形状等信息,分析这些信息可以获得反射线的散射矢量 G_i 。通过指标化操作将散射矢量 G_i 分配给各个晶粒,同时结合倒易空间的散射矢量 G_{hkl} 可以求得晶粒的取向矩阵 U 。其矩阵变换^[8]如下:

$$G_l = \Omega SUBG_{hkl}, \quad (1)$$

式中 Ω 、 S 、 U 分别为实验坐标系、转动坐标系、样品坐标系、笛卡尔晶粒坐标系之间的旋转矩阵变换,各坐标系的关系如图 2 所示。旋转矩阵 Ω 为

$$\Omega = \begin{bmatrix} \cos \omega & -\sin \omega & 0 \\ \sin \omega & \cos \omega & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}. \quad (2)$$

而实验对样品系统的定义不考虑轧制方向的影响,因此样品系统即为旋转系统,即 $S = I$ 。倒易空间的散射矢量 $G_{hkl} = (h \ k \ l)^T$ 包含了晶面的密勒指数,其变换矩阵为

$$B = [a^* \ b^* \ c^*] = \begin{bmatrix} a^* & b^* \cos \gamma^* & c^* \cos \beta^* \\ 0 & b^* \sin \gamma^* & -c^* \sin \beta^* \cos \alpha \\ 0 & 0 & c^* \sin \beta^* \sin \alpha \end{bmatrix}, \quad (3)$$

$$A = [a \ b \ c] = \begin{bmatrix} a \sin \beta \sin \gamma^* & 0 & 0 \\ -a \sin \beta \cos \gamma^* & b \sin \alpha & 0 \\ a \cos \beta & b \cos \alpha & c \end{bmatrix}. \quad (4)$$

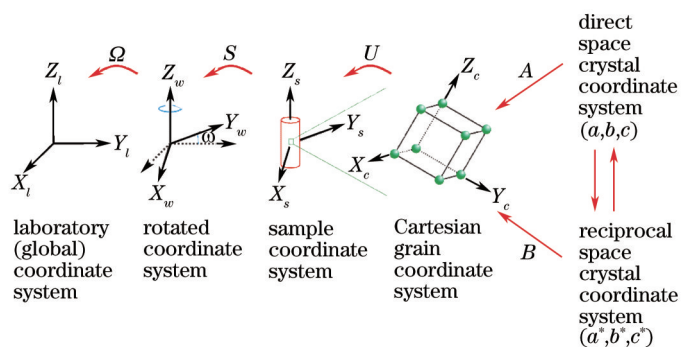


图 2 三维 X 射线衍射层析术相关坐标系

Fig.2 Coordinate systems associated with 3DXRD

对于模式一,由于仅使用高灵敏度的远场探测器获得实验数据,其指标化操作由 GrainSpotter 算法实现^[9],该算法是将取向空间分割成很多个亚空间结构,叫做局部罗德里格斯空间。遍历每个亚空间结构识别可能的取向,并尝试匹配理论的散射矢量与实验测得的散射矢量,当两者的比率满足一定的约束规则时,晶粒得到确定。之后的细化过程由 FitAllB 模块^[10]完成,该模块基于最小二乘法拟合,可以实现对每个晶粒 12 个参数的优化,包括晶粒位置、取向、应变张量等。

对于模式二,由于远场探测器距离样品较远,因此有较高的角度分辨能力,通过远场的指标化操作可以得到较精确的晶粒取向信息;而其粗略的位置分布信息,可以通过衍射光光束追迹的方法,结合高分辨近场探测器得到的数据进行细化。在确定了晶粒的晶体学信息后,通过 GrainSweeper 算法^[7]可以对样品进行完整的三维重构。

3 实 验

所采用的样品为商业纯钛(Ti)样品,由 EBSD 方法测得样品的平均晶粒尺寸约为 30 μm 。为了得到较低的晶粒间取向展度,样品被放置在 750 $^\circ\text{C}$ 的氩气环境中经 16 h 热机械处理和再结晶,然后以 1 K/min 的速率充分冷却。最后,通过放电加工方法将样品切割成直径约为 600 μm 的圆柱体。

实验完成于上海同步辐射光源 X 射线成像及生物医学应用光束线站(BL13W1)^[11-14],该光束线站可以提供能量范围 8~70 keV,能量分辨率 $\Delta\lambda/\lambda \cong 10^{-3}$ 的单色 X 射线。选取的能量经由铈(Sb)吸收边定标, $E = 30.49 \text{ keV}$,对应的波长 $\lambda = 0.04067 \text{ nm}$,光通量密度为 $3.53 \times 10^9 \text{ phs}/(\text{s} \cdot \text{mm}^2)$ 。为避免衍射斑的重叠现象过于严重,使用尺寸为 700 $\mu\text{m} \times 26 \mu\text{m}$ 的狭缝产生照射样品的片形光束。样品被固定在转台上,每次曝光的过程中旋转 0.5 $^\circ$,直至完整地旋转 360 $^\circ$,共采集 720 张图像。实验采用两个距样品不同距离的二维探测器,并结合光束追迹的思路来模拟三维探测器。

实验所采用的远场探测器的有效像素尺寸为 $13\ \mu\text{m}$, 视场范围为 $52\ \text{mm} \times 35\ \text{mm}$, 拥有 12 位的动态范围。近场探测器的有效像素尺寸为 $3.25\ \mu\text{m}$, 视场范围为 $6.65\ \text{mm} \times 6.65\ \text{mm}$, 拥有 16 位的动态范围。为了采集到 Ti 样品前 5 个晶面簇(100)、(002)、(101)、(102)、(110)的衍射信息, 根据所使用能量及探测器视场范围计算得出, 近场探测器放置于距样品 $L_1 \approx 9\ \text{mm}$ 处, 远场探测器放置于距样品 $L_2 \approx 75\ \text{mm}$ 处。关于曝光时间的选取, 在保证衍射斑不产生过曝现象的前提下, 尽量延长曝光时间以获得最佳的信噪比。对于远场探测器, 由于入射光束没有经过聚焦, 光通量较低, 且 Ti 样品内晶粒普遍较小, 曝光时间选定为 5 s; 而对于近场探测器, 由于光学放大组件的限制, 最长的曝光时间为 10 s。

4 数据处理

数据处理使用的是 FABLE 软件包, 它集成了数据处理各个步骤中所需要的软件, 并且, 对于简单的预处理过程支持图形界面操作。

4.1 中值滤波对远场图像的影响

对于图像分割方法, 原始图像的预处理是非常重要的。一般常用的方法有背景减除和平场校正等, 但这些往往无法消除原始图像中的椒盐噪声。对于一般的数据处理过程, 如电子计算机断层扫描(CT)重构, 个别的椒盐噪声对最终的结果影响甚微。但对于晶体的衍射实验, 椒盐噪声很可能被认定为微小晶粒产生的衍射斑点。尤其是在远场低阈值分割的情况下, 椒盐噪声的影响尤为明显。然而在衍射实验中, 较低的阈值分割意味着可以获得更多的衍射信息, 因此, 去除原始图像中的椒盐噪声非常重要。

消除椒盐噪声最简单的方法是中值滤波。图 3 所示为远场图像在中值滤波前、后的图像对比, 所展示的图像皆经过相同的预处理过程, 选取的阈值范围为 0~18, 图中黄圈为寻峰操作获得的衍射峰。其中, 图 3(a)和(b)分别为滤波前、后在 $\omega = 180^\circ$ 时的寻峰结果。图 3(c)和(d)分别为图 3(a)和(b)中红框内的放大图像, 并展示了连续的 4 个角度。由于实验所使用的样品是在高温下充分退火的样品, 因此样品内晶粒衍射的摇摆曲线的半峰全宽很窄, 一般在 1° 以内。而在图 3(c)中, 点 A 和点 B 连续出现在了 4 个角度(甚至更多)的同一位置, 并且衍射斑点的强度几乎没有变化, 衍射斑点的尺寸也始终是一个像素, 由此可以认定这些点是由噪声引起的错误寻峰。在经过中值滤波后, 图 3(d)中已经消除了噪声的影响。

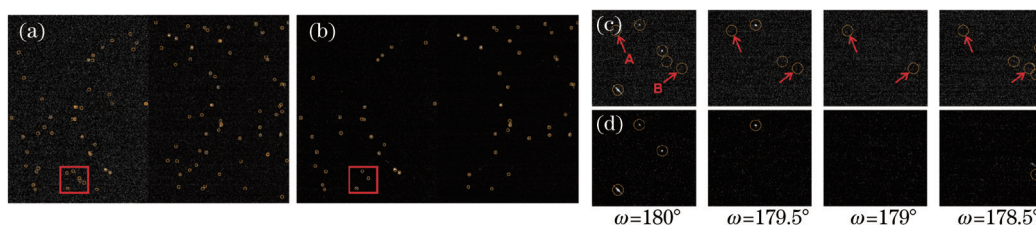


图 3 中值滤波对远场数据寻峰结果的影响。(a)和(b)分别为滤波前、后在 $\omega=180^\circ$ 时的寻峰结果;
(c)和(d)分别为(a)和(b)红框内在连续的 4 个角度的放大图像。

Fig.3 Effect of median filter on peak searching in far-field. (a) and (b) are results of peak searching before and after filtering at $\omega=180^\circ$;
(c) and (d) are the magnified images of the red box in (a) and (b), respectively, which show successive 4 images in angle

并且, 从图 3(a)和(b)的对比可以看出, 中值滤波不仅消除了噪声的影响, 而且在很大程度上提高了图像的信噪比, 使得在低阈值(小于 40)的图像分割下, 依然保持了寻峰的准确性, 其影响直接反映在了指标化的结果中。衡量指标化优劣的两个重要的标准为: 1) 分配的散射矢量占理论预期散射矢量的百分比。对于一次指标化的结果, 所分配的散射矢量的百分比应该达到 70% 以上; 2) 对于一个特定的晶粒, 分配的晶格矢量与理论预期晶格矢量间的平均角度差异(mean_IA)。一般来说, 角度差异在 0.1° 以下表明晶粒几乎没有发生形变。

图 4 所示是中值滤波对指标化结果的影响。图中黑线代表使用原始图像的指标化结果, 红线代表中值滤波后的指标化结果。其中图 4(a)和(b)展示了中值滤波对整体指标化结果的影响, 图 4(a)为散射矢量的分配百分比, 图 4(b)为所有晶粒的平均 mean_IA 值; 而图 4(c)和(d)为同一个晶粒在不同阈值时的指标化结果, 图 4(c)为分配给该晶粒的衍射峰的数量, 图 4(d)为该晶粒的 mean_IA 值。从图 4(a)中可以看出, 在较低的阈值范围内, 经过中值滤波的图像保持了较高的分配百分比, 尤其在阈值为 25 时, 分配了 80% 的散射矢量; 而随着

阈值的升高(对于本次实验,其临界值大约为 30),噪声的影响逐渐被阈值分割淡化,此时中值滤波可能造成图像的细节丢失,其结果不如使用原始图像。图 4(b)~(d)同时说明,在低于临界值时,原始图像的指标化结果与正常情况相比出现了明显的差异,而滤波后的图像仍能保持很高的稳定性。由图 4(c)可以看出,大量的衍射峰被分配给该晶粒,这主要是因为噪声产生的衍射峰参与了指标化的运算。

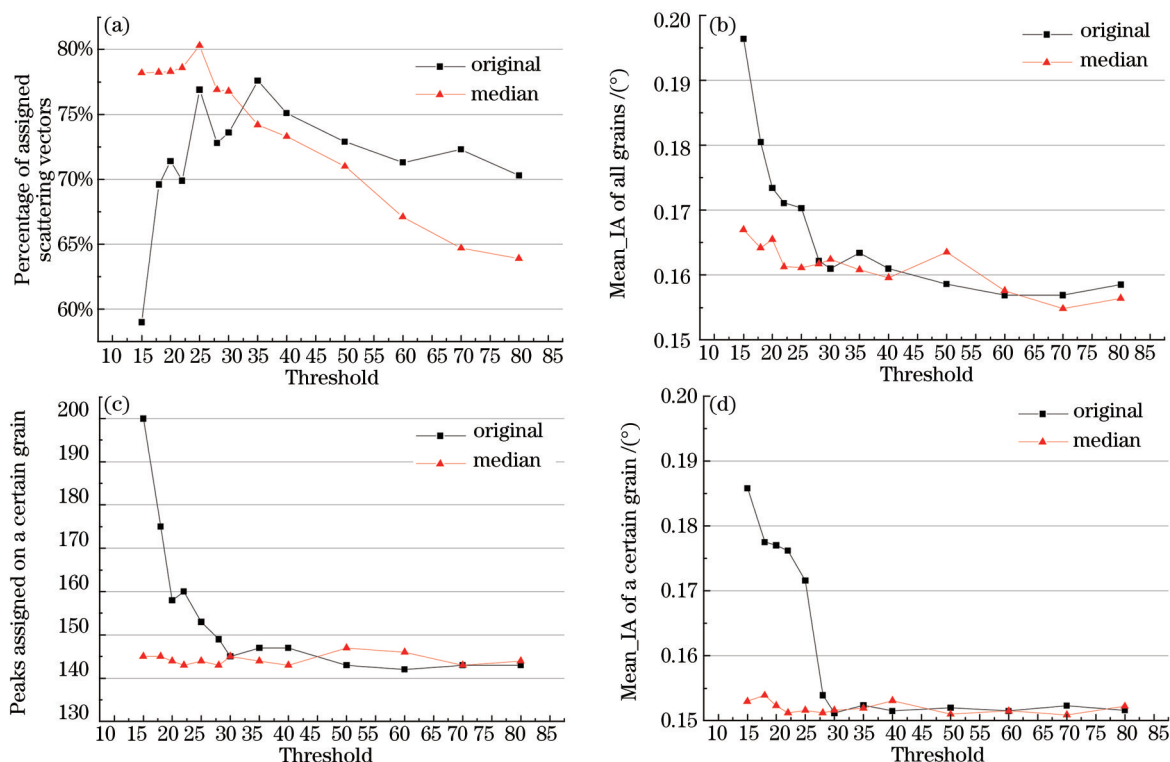


图 4 中值滤波对指标化结果的影响。(a)和(b)展示了中值滤波对整体指标化结果的影响;

(c)和(d)为同一个晶粒在不同阈值时的指标化结果

Fig.4 Effect of median filter on indexing. (a) and (b) are effects of median filter on the integral indexing;

(c) and (d) are the indexing results of the same grain at different threshold

4.2 对比度增强对近场图像的影响

由于近场探测器曝光时间的限制,本次实验中近场图像的信噪比较低,一些较弱的衍射斑的强度跟背景噪声的强度非常接近,为了最大限度地提取衍射信息,必须进行额外的图像增强来提高衍射斑的对比度。

如图 5(a)所示,在低阈值(0~8)状态下,背景的噪声非常严重,已经无法得到合理的寻峰结果,而且,单纯的中值滤波无法消除背景噪声的影响。本文结合了最小值法背景模型和区域生长的方法,显著地增强了近场图像的对比度。首先,最小值法背景模型是指,以某一张图像为中心,分别选取其前后连续的共 11 张图像,选择这 11 张图像中同一位置像素点的灰度值的最小值作为背景。在减除背景后,图像中依然存在少量的噪声,此时再通过区域生长的方法,将连通值小于 10 个像素的点全部剔除。最终得到的图像如图 5(b)所示,可以看出,经过图像增强后寻峰的结果也是令人满意的。

近场图像增强不仅有助于寻峰,其对重构时的影响也非常明显。由于近场图像采集的衍射斑能够更好地反映晶粒的形状信息,因此重构时仅使用近场图像。图 6 分别为使用原始图像与使用增强后的图像在同一层截面的绘图结果对照。可以看出经过增强后的图像不仅正确地填充了整个样品空间,而且有更多的晶粒得到重构(如红圈中所示)。

4.3 优值方法对校准精度的影响

对于所有的衍射实验,将探测器系统与整个实验系统相互校准是至关重要的,三维 X 射线衍射层析术对校准的要求尤为苛刻,所需校正的参数主要包括:样品离探测器的距离、光斑中心的位置以及探测器平面相对入射平面的倾角。

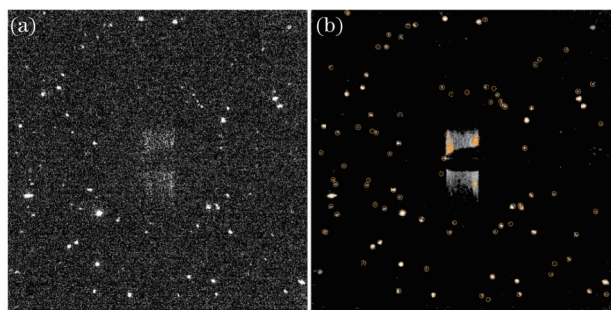


图5 图像增强对近场图像寻峰结果的影响。(a) 原始图像;
(b) 经过增强后的图像

Fig.5 Effect of image enhancement on peak searching in near-field. (a) Raw image; (b) enhanced image

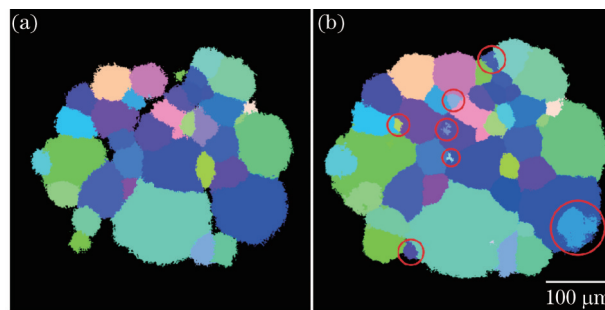


图6 图像增强对重构结果的影响。(a)原始图像的截面绘图;
(b)增强后的图像的截面绘图

Fig.6 Effect of image enhancement on reconstruction. (a) Reconstructed slice by using raw images; (b) reconstructed slice by using enhanced images

对于粗校,先将所有角度的衍射图的寻峰结果叠加在一张图上显示出来,即得到类似粉末衍射的德拜-谢勒环,如图7(a)所示。再将德拜-谢勒环沿方位角展开可得到图7(b)和(c)。理论上,如果预设的参数足够准确,所展开的每一环应该是一条竖线,并且该竖线应该与通过已知晶格参数求得的衍射角 2θ (图中红色短线)相对应,如图7(c)所示。但实际中,预设参数得到的结果往往如图7(b)所示,需要经过 FitAllB 模块作进一步的校准。

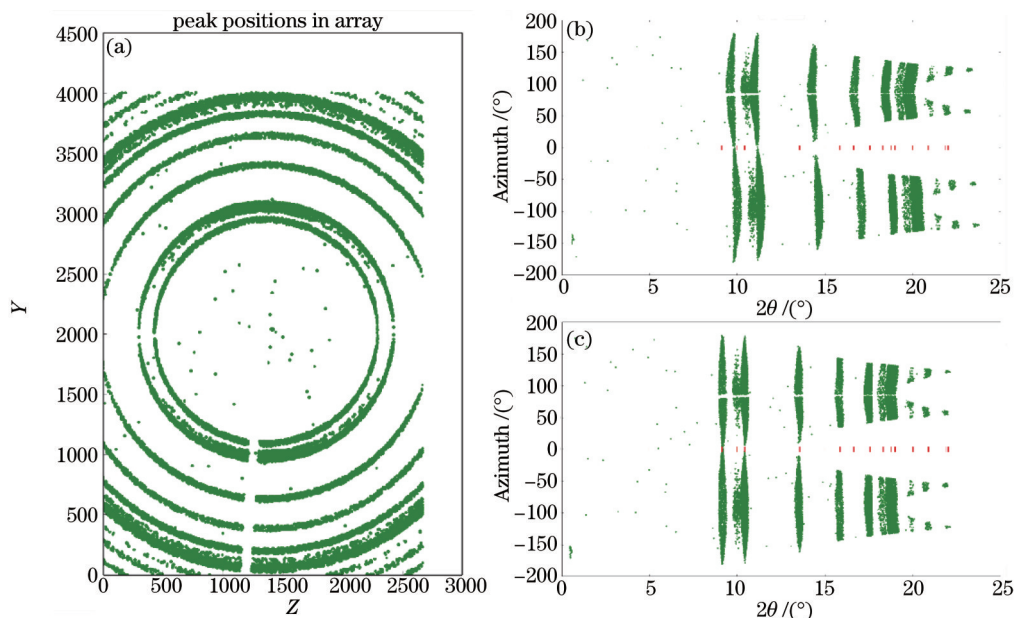


图7 粗校。(a) 所有角度的投影图的衍射峰相叠加的结果;(b) 预设参数的显示结果;(c) 校准后的显示结果
Fig.7 Coarse calibration. (a) Peak superposition of projections of all angles; (b) demonstration of preset parameters;
(c) demonstration of fitted parameters

但鉴于对精度的苛刻要求,仍需要对上述的校准进行优化方法的细校:1) 使用粗校的结果进行指标化运算,得到初步的晶粒信息;2) 对晶粒进行前向模型方法^[15]模拟并与寻峰结果进行比对,计数匹配的衍射峰数量;3) 通过每次调整一个参数获得最高完成度(匹配度)的值,即为该参数的最优值;4) 对上述过程进行循环迭代作进一步的优化。

实验的3次迭代结果如图8所示,从上到下的参数分别为:样品到探测器的距离(distance),探测器平面相对于实验坐标系的倾斜(tilt x,y,z),转轴与入射平面的夹角(wedge),光斑中心在探测器上的位置(y,z center)。通过对比每一行参数可以看出,多次迭代后最优值出现的位置已经较为稳定,并且在最优值处可以匹配更多的衍射峰,说明校准的结果更为理想。

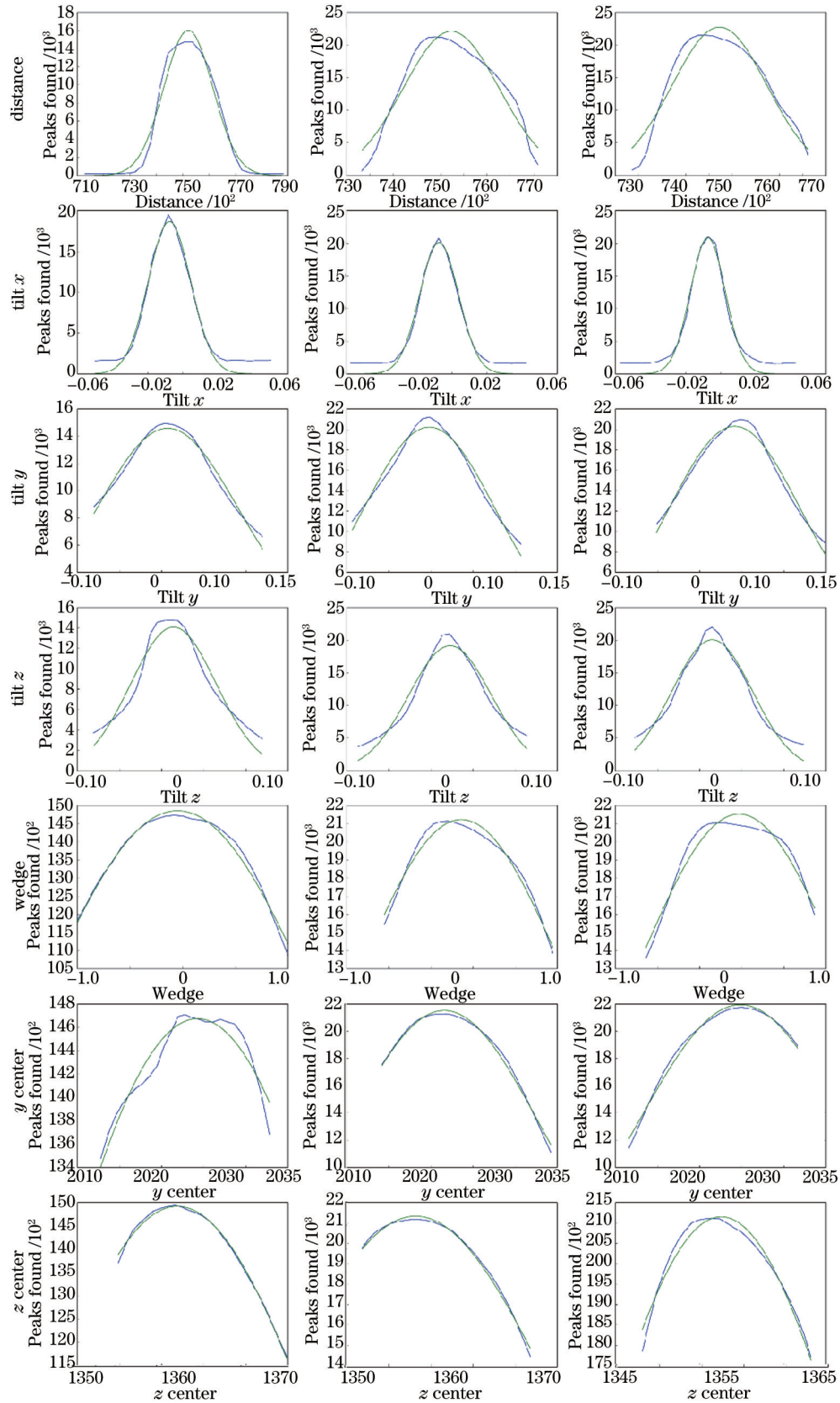


图 8 3 次迭代细校。

Fig.8 Fine calibration of three iterations.

4.4 并行化对校准效率的影响

优值方程的循环迭代方法虽然可以得到很好的校准结果,但是整个计算过程耗时较长,是重构过程中

最耗时的部分。实现程序的并行化可以大大缩短运算的时间。

表 1 列出了不同晶粒数量的样品在程序并行化前、后的效率对照表,运行时所使用的迭代次数统一限定为 3 次,运行环境为工作站(CPU: Intel Core i7-2600@3.4GHz × 8, 内存: 32 GB, 系统: Ubuntu 14.04)。可以看出,并行化的加速比约为 4.5 倍。但在实际操作中,晶粒数量往往在 500 个以上,因此 4.5 倍的加速比可以保证一套数据处理在一天内完成。

表 1 并行化对数据处理速度的影响

Table 1 Effect of parallel computation on data processing

	Si	Al	Ti	Ti
Number of grains	5	26	185	550
Sequential	18 s	430 s	90 m 11 s	10 h 18 m
Parallel	4 s	91 s	23 m 31 s	2 h 15 m
Speedup	4.5	4.725	3.834	4.578

并行化前、后运算结果的对照如表 2 所示。通过校正的参数对比可以发现,并行化前、后的运算结果符合得非常好。

表 2 串行运算结果与并行化结果的对比

Table 2 Comparison between sequential and parallel computation

Parameter	Distance / μm	Tilt $x / (^\circ)$	Tilt $y / (^\circ)$	Tilt $z / (^\circ)$	y center /pixel	z center /pixel
Sequential	75204.186	-0.00709	-0.01282	0.02708	2025.639	1356.182
Parallel	75220.213	-0.00746	-0.00871	0.01468	2024.812	1357.532

5 晶粒像结果分析

实验结果如图 9 所示,图 9(a)~(c)为仅使用远场数据的结果,可以视为模式一,分别为沿 z 轴观察的质心

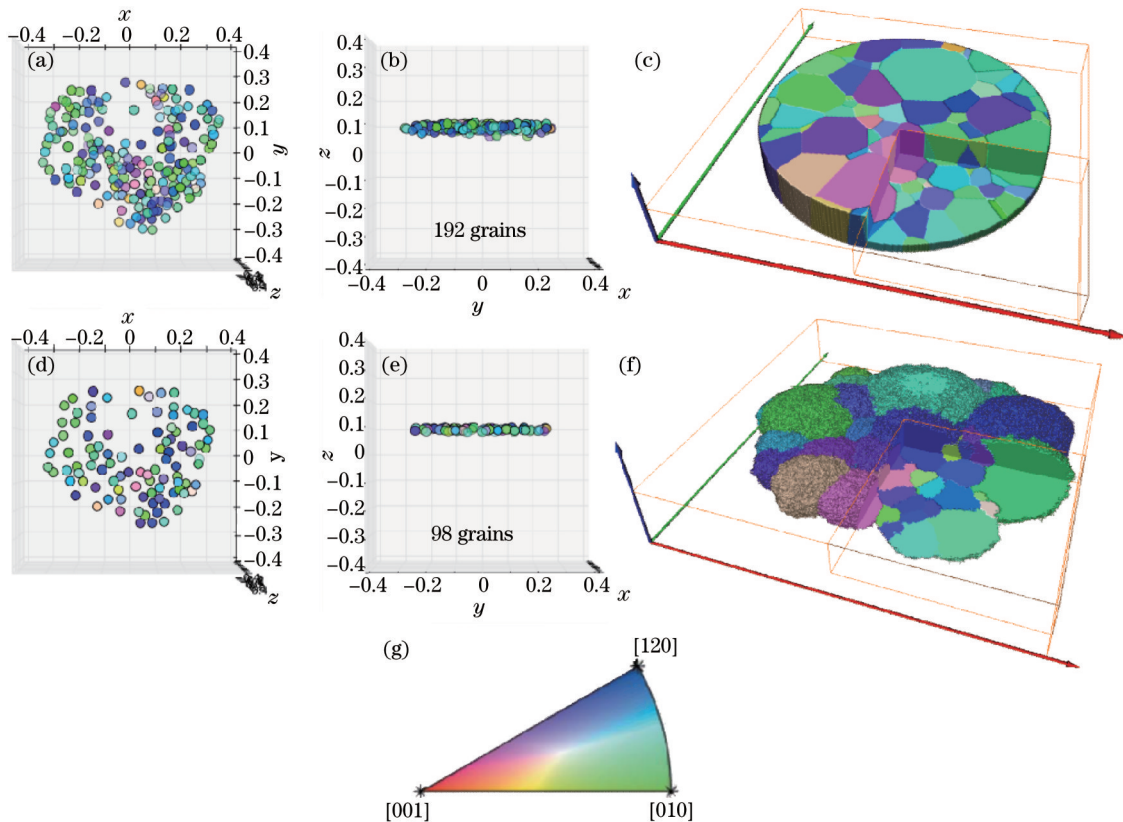


图 9 三维 X 射线衍射层析术数据处理结果。(a)和(b)分别为沿 z 轴和 x 轴观察的模式一的质心坐标分布;(c)Laguerre 棋盘算法的重构结果;(d)和(e)分别为沿 z 轴和 x 轴观察的模式二的质心坐标分布;(f) GrainSweeper 算法的重构结果;(g)不同颜色对应的反极图坐标

Fig.9 Result of 3DXRD. (a) and (b) are center-of-mass positions of Mode I along the z and x axes; (c) Reconstruction by Laguerre Tessellation algorithm; (d) and (e) are center-of-mass positions of Mode II along the z and x axes; (f) Reconstruction by GrainSweeper algorithm; (g) Orientation colourcoding given by the inverse pole figure

坐标分布、沿 x 轴观察的质心坐标分布、Laguerre 棋盘算法的重构结果；图 9(d)~(f) 为模式二的结果，分别为沿 z 轴观察的质心坐标分布、沿 x 轴观察的质心坐标分布、GrainSweeper 算法的重构结果；图中不同的颜色代表不同的晶粒取向，其对应法则如反极图图 9(g) 所示。

5.1 晶粒数量

从图 9 结果的对比可知，最明显的差异在于模式二经过细化后，得到匹配的晶粒数量减少很多。图 10 显示了同一层样品位置 Laguerre 棋盘算法与 GrainSweeper 算法的绘图，图 10(a) 中非彩色的色块代表没有在图 10(b) 中重构出来的晶粒。可以看出，绝大多数没有在模式二中重构出来的晶粒的尺寸都较小，而且主要分布在样品的表面。

究其原因，主要有两个方面：1) 入射光通量太低，以及近场探测器曝光时间的限制，导致较小的晶粒的衍射无法被采集到。在远场中，可以被寻峰的较强衍射峰的平均强度 $I_{\max} \approx 3200$ ，较弱衍射峰的平均强度 $I_{\min} \approx 109$ ，其比率约为 30 倍；而在近场中，由于受到曝光时间的限制，即便最强的衍射峰的平均强度也只有 $I_{\max} \approx 750$ ，而可分辨的最弱的衍射斑的平均强度 $I_{\min} \approx 105$ （背景噪声约为 100），比率只有 7.5 倍。很多在远场中可以被采集到的晶粒衍射无法在近场中观察到，因而损失了大量的衍射信息，使得细化过程保留的晶粒较少。这一问题可以通过提高入射光的光通量解决，比较有效的途径是使用一维聚焦的线光源作为入射光源；2) 样品表面的晶粒受到加工和打磨的影响发生了形变，在细化过程中，由于约束条件的限制，晶粒没有得到重构。

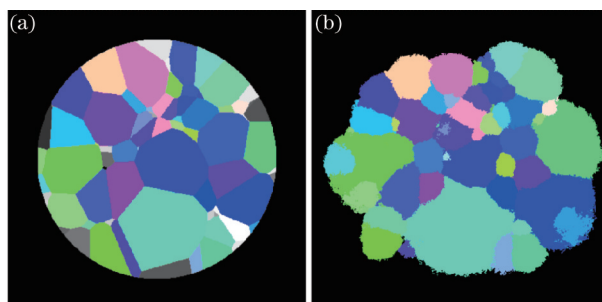


图 10 (a) Laguerre 棋盘算法与 (b) 三维 X 射线衍射层析术的对比
Fig.10 Comparison between (a) Laguerre Tessellation algorithm and (b) 3DXRD

5.2 晶粒尺寸

假设晶粒的体积 (V_{grain}) 与所有分配给该晶粒的衍射斑的平均积分强度 (Int) 成正比，则每个晶粒的体积为

$$V_{\text{grain}} = \frac{\text{Int}}{\sum \text{Int}} V_{\text{sample}}, \quad (5)$$

其中 $\sum \text{Int}$ 代表所有晶粒的总平均积分强度； V_{sample} 代表样品的体积，可以由普通 CT 采集的数据定量计算得出。由于实验使用的样品 Ti 为六方晶系，因此每个晶粒的体积近似为六方柱的体积：

$$V_{\text{grain}} = \frac{3}{2} \sqrt{3} \left(\frac{h}{r} \right) r^3, \quad (6)$$

式中 h 为晶粒高度； r 为晶粒半径； h/r 的比率与晶格常数 cl_a 的比率相等 (Ti 为 1.5857)。综上，由于每个晶粒的衍射斑的相对积分强度 $\left(\text{Int} / \sum \text{Int} \right)$ 在数据处理过程中是已知的，因此，可以估算晶粒的尺寸 $S = 2r$ 。

对晶粒尺寸的估算结果如图 11 所示。图 11(a) 为模式一下晶粒尺寸分布的直方图，对其进行正态拟合：

$$y = y_0 + \frac{A}{\sqrt{2\pi} wx} \exp - \frac{\left(\ln \frac{x}{x_c} \right)^2}{2w^2}, \quad (7)$$

式中 y_0 为初始值； x 为晶粒的尺寸； x_c 为平均值； w 为标准偏差。从拟合的结果中得知，所有晶粒的平均尺寸为 $31.84 \mu\text{m}$ ，这与 EBSD 方法得出的平均尺寸一致。

通过对晶粒朝向的比对,从中筛选出经过细化后仍被保留的98个晶粒,其尺寸分布如图11(b)中黑色柱状条所示,而剩余未匹配的晶粒如红色柱状条所示。可以看出绝大多数未匹配的晶粒的尺寸都较小,这与图10的结果一致。图11(c)为匹配的晶粒在两种模式下的尺寸对照图,可以看出,其分布趋势基本在 $y=x$ 附近。但在晶粒尺寸较小时,两种模式的结果吻合得较好;但模式二中较大的晶粒,在模式一中反而较小,这主要是因为估算样品尺寸时,两种模式使用了相同的样品总体积,而在模式一中存在有大量没有匹配的晶粒依然占据着样品空间。

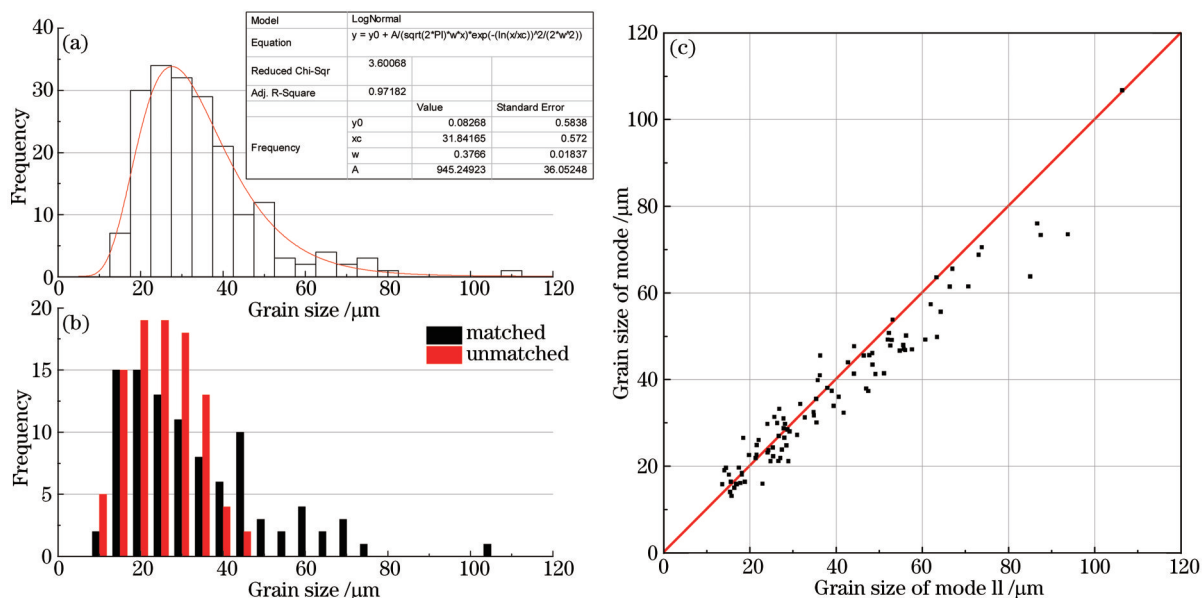


图11 远场晶粒尺寸分布。(a) 晶粒尺寸分布直方图;(b) 匹配的晶粒与未匹配晶粒的分布直方图;
(c) 匹配的晶粒在近场与远场中的对照

Fig.11 Distribution of grain size in far-field. (a) Histogram of grain size; (b) histogram of matched and unmatched grain size;
(c) matched grain comparison between near-field and far-field

5.3 晶粒形变

通过 mean_IA 值的分布,可以对样品形变的程度做出初步的判断。图12所示是指标化后,所有晶粒的 mean_IA 直方图。其 mean_IA 值符合对数正态分布,平均 mean_IA 值为 0.157° ,略大于 0.1° ,表明样品有轻微的形变。图中红线为对数正态拟合曲线,拟合的结果如表中所示。

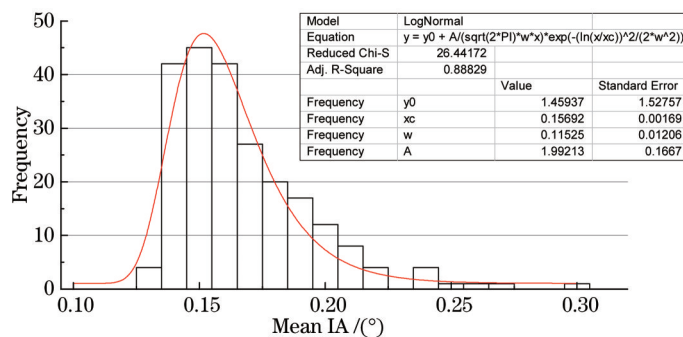


图12 远场晶粒的 mean_IA 直方图

Fig.12 Histogram of mean_IA value in far-field

6 结 论

采用纯钛样品对三维X射线衍射层析术进行了实验验证,并结合图像处理的方法解决了重构过程中遇到的诸多问题,不仅均得到了很好的结果,而且利用并行化运算对程序进行加速,有效地降低了数据处理的时间。在动态X射线衍射层析术模式下获得了样品中晶粒的尺寸、质心位置、晶体学取向等信息,并能够对晶

粒的形变程度做出判断。在现有条件下,数据采集时间过长限制了该方法用于晶粒分布原位动态分布观测,提高入射X射线通量是关键。引入聚焦元件如X射线复合折射透镜,可将通量密度提高一个量级以上,结合更高灵敏度和帧频的面阵探测器,可将曝光时间降低到几十毫秒量级,从而使得采集一层数据的总时间控制在几十秒,可满足动态观测的需求。

致谢 作者在对3DXRD方法的研究过程中,得到了来自丹麦科技大学的Jette Oddershede博士的悉心帮助,以及澳大利亚吉朗大学的Peter Lynch教授提供的样品,特此提出感谢。

参 考 文 献

- 1 Poulsen H F. Three-Dimensional X-Ray Diffraction Microscopy-Mapping Polycrystals and Their Dynamics[M]. Berlin: Springer Berlin Heidelberg, 2004, 221-222.
- 2 Oddershede J, Schmidt S, Poulsen H F, *et al.*. Grain-resolved elastic strains in deformed copper measured by three-dimensional X-ray diffraction[J]. Mater Charact, 2011, 62(7): 651-660.
- 3 Offerman S E, van Dijk N H, Sietsma J, *et al.*. Grain nucleation and growth during phase transformations[J]. Science, 2002, 298(5595): 1003-1005.
- 4 Schmidt S, Nielsen S F, Gundlach C, *et al.*. Watching the growth of bulk grains during recrystallization of deformed metals[J]. Science, 2004, 305(5681): 229-232.
- 5 Lyckegaard A, Lauridsen E M, Ludwig W, *et al.*. On the use of Laguerre Tessellations for representations of 3D grain structures[J]. Adv Eng Mater, 2011, 13(3): 165-170.
- 6 Poulsen H F, Nielsen S F, Lauridsen E M, *et al.*. Three-dimensional maps of grain boundaries and the stress state of individual grains in polycrystals and powders[J]. Journal of Applied Crystallography, 2001, 34: 751-756.
- 7 Poulsen H F. An introduction to three-dimensional X-ray diffraction microscopy[J]. Journal of Applied Crystallography, 2012, 45: 1084-1097.
- 8 Chatterjee K. Determination of Grain-Level Strain and Proposing a New Method of Strain Determination for Three Dimensional X-ray Diffraction (3DXRD)[D]. Urbana-Champaign: University of Illinois at Urbana-Champaign, 2014: 10-14
- 9 Schmidt S. GrainSpotter: a fast and robust polycrystalline indexing algorithm[J]. Journal of Applied Crystallography, 2014, 47: 276-284.
- 10 Oddershede J, Schmidt S, Poulsen H F, *et al.*. Determining grain resolved stresses in polycrystalline materials using three-dimensional X-ray diffraction[J]. Journal of Applied Crystallography, 2010, 43: 539-549.
- 11 Xiao Tiqiao, Xie Honglan, Deng Biao, *et al.*. Progresses of X-ray imaging methodology and its applications at Shanghai Synchrotron Radiation Facility[J]. Acta Optica Sinica, 2014, 34(1): 0100001.
肖体乔, 谢红兰, 邓彪, 等. 上海光源X射线成像及其应用研究进展[J]. 光学学报, 2014, 34(1): 0100001.
- 12 Liang Chuanhui, Wang Yudan, Du Guohao, *et al.*. Research on the contrast enhancement algorithm of synchrotron radiation X-ray image [J]. Acta Optica Sinica, 2015, 35(3): 0310003.
梁传晖, 王玉丹, 杜国浩, 等. 同步辐射X射线图像对比度增强算法研究[J]. 光学学报, 2015, 35(3): 0310003.
- 13 Qi Juncheng, Ren Yuqi, Du Guohao, *et al.*. Multiple contrast micro-computed tomography system based on X-ray grating imaging[J]. Acta Optica Sinica, 2013, 33(10): 1034001.
戚俊成, 任玉琦, 杜国浩, 等. 基于X射线光栅成像的多衬度显微计算层析系统[J]. 光学学报, 2013, 33(10): 1034001.
- 14 Ye Linlin, Xue Yanling, Tan Hai, *et al.*. X-ray phase contrast micro-tomography and its application in quantitative 3D imaging study of wild ginseng characteristic microstructures[J]. Acta Optica Sinica, 2013, 33(12): 1234002.
叶琳琳, 薛艳玲, 谭海, 等. X射线相衬显微层析及其在野山参特征结构的定量三维成像研究[J]. 光学学报, 2013, 33(12): 1234002.
- 15 Suter R M, Hennessy D, Xiao C, *et al.*. Forward modeling method for microstructure reconstruction using X-ray diffraction microscopy: single-crystal verification[J]. Review of Scientific Instruments, 2006, 77(12): 12.

栏目编辑: 张 雁