

doi: 10.3788/gzxb20124109.1090

基于 X 射线衍射仪的 X 光晶体本征参量的标定

杨国洪, 韦敏习, 侯立飞, 易涛, 李军, 刘慎业

(中国工程物理研究院 激光聚变研究中心, 四川 绵阳 621900)

摘要: X 光晶体本征参量的实验标定是准确鉴定 X 光晶体种类和品质, 研制各种类型晶体谱仪, X 光线谱定量测量和高分辨 X 光单能成像的基础. 基于 X 射线衍射仪, 通过制作平面晶体样品架, 采取控制 X 射线管电源、滤波片选取和厚度控制等措施, 极大地抑制了 Cu-K β 及韧致辐射, 使 X 射线管光源 Cu-K α 单能化, 提出了用滤片作为光源单能化的判据. 对 X 光线谱测量中常用的 X 光分光晶体季戊四醇[PET(002)]的晶格常量 $2d$ 和 Cu-K α 能点的积分衍射效率 R_c 进行了标定方法研究, 其标定值分别为 $(0.874\ 25 \pm 0.000\ 42)\text{nm}$ 和 $(1.759 \pm 0.024) \times 10^{-4}\ \text{Rad}$. 基于 X 射线衍射仪的 X 光晶体本征参量的精密实验标定方法既快速高效, 且十分方便和灵活. 通过更换衍射仪的 X 射线管靶材, 采取类似方法, 可以标定其它能点的晶体积分衍射效率, 可为 X 光晶体的本征参量库提供更多的标定数据.

关键词: 标定方法; X 光晶体; 本征参量; X 射线衍射仪

中图分类号: TL81

文献标识码: A

文章编号: 1004-4213(2012)09-1090-4

0 引言

在激光惯性约束核聚变、Z-pinch、高离化态离子谱学和等离子体物理等实验研究中, 通常采用 X 光晶体谱仪对等离子体发射的软 X 光线谱进行定量测量, 获得电子温度、电子密度、离化度和离化分布等等离子体的状态参量信息^[1-3]. X 光晶体谱仪的核心组件是 X 光分光晶体, 其晶格常量($2d$)和积分衍射效率(R_c)是 X 光晶体的本征参量; 对 X 光晶体本征参量的实验标定是准确鉴定晶体种类和品质, 研制各种类型晶体谱仪, X 光线谱定量测量和高分辨 X 光单能成像的基础. 对于 X 光晶体本征参量的实验标定, 特别是积分衍射效率参量, 因 X 射线亮度高和单色性极好, 同步辐射装置的 X 射线束线站是标定的理想装置之一^[4-8]; 因受到计划、审批和运行时间等限制, 使用不便捷. 多晶衍射仪可以对 X 射线管的光源进行单能化, 因晶体衍射效率低, 多晶衍射后 X 射线光源亮度有限, 要求 X 光探测器的灵敏度要高; 一般不可换 X 射线管靶材料, 故仅能进行单一能点的实验标定^[9]; 也有以 X 射线管为光源研制专用装置开展 X 光晶体方面的实验标定^[10]. X 射线衍射仪, 尤其是国产的衍射仪, 是实验室常见的、主要用于材料定量测试和分析的仪器, 其运行十

分稳定, 使用方便; 因其光源的非单能化特性, 用于 X 光晶体积分衍射效率的标定实验未见报道. 利用 X 射线管光源, 国内外对 PET、KAP、RAP、TIAP、ADP、Si 和绿柱玉等常用的 X 射线分光晶体的本征参量开展了相关标定实验^[10-17]; 对于季戊四醇[PET(002)]晶体, 因生产与制作工艺差异, 其晶格常量标称值为 0.873 0 或 0.874 2 nm; 对于积分衍射效率, B. L. Henke 等人计算的理想值和马赛克模型下的计算值其差异很大^[18]; 且 X 光能量大于 6.4 keV 的积分衍射效率的实验标定数据未见报道.

本文基于 X 射线衍射仪, 通过制作晶体样品架, 先将 X 射线管光源 Cu-K α 单能化, 用滤片作为光源单能化的判据. 对 X 光晶体 PET(002)的晶格常量和 Cu-K α 能点(8.048 keV)的积分衍射效率等本征参量进行了标定方法研究.

1 标定原理

X 光晶体对 X 光的衍射遵循布喇格公式

$$n\lambda = 2d\sin\theta \quad (n=1, 2, 3, \dots) \quad (1)$$

式中, d 为晶面间距, 是晶体固有的参量之一; θ 是掠入射角, 即 Bragg 角; n 为衍射级次. 利用 Cu 靶 X 射线管产生 Cu-K α 线, 其波长在国际上已被评价, 即有国际标准值. 利用 X 射线衍射仪测角仪可以精确

基金项目: 国家自然科学基金(No. 11105129)资助

第一作者: 杨国洪(1966-), 男, 研究员, 主要研究方向为 X 射线光谱学及其应用. Email. yangg_h@sina.com

收稿日期: 2012-01-12; 修回日期: 2012-03-06

测量 θ , 衍射取一级 ($n=1$), 通过式(1)可测量晶体的晶面间距 d , 或晶格常量 $2d$.

设 X 光晶体的扭摆曲线为 $P(\theta)$, 则晶体的积分衍射效率定义为

$$R_c = \int_{\theta_1}^{\theta_2} P(\theta) d\theta \quad (2)$$

式中, R_c 为积分衍射效率, θ 为扭摆角, θ_1 和 θ_2 分别为积分起点和终点角度.

因 X 光晶体的积分衍射效率与 X 光的能量关联, 必须将 X 射线管光源单能化. 对于 X 射线衍射仪, 标准配置的是 X 射线管 Cu 靶; 一般运行是给 Cu 靶提供 3~5 倍 Cu-K α 阈值的电压, 这样的 X 射线光源包含 Cu-K α 、Cu-K β 和宽能区的韧致辐射. 考虑到晶体衍射效率低、更高电压导致韧致辐射的能区更宽和强度更大、滤片的单能化能力、正比计数器的线性动态范围等因素, 通过控制 X 射线管电源, 先降低 Cu-K β 强度, 降低韧致辐射的能区宽度和强度; 再在光路上用纯镍滤波片方法将 Cu-K β 及其韧致辐射衰减 5 个数量级, 可将 Cu 靶 X 射线管光源 Cu-K α 单能化, 可用滤片透过率作为光源单能化判据.

在 X 射衍射仪上, 将测角仪 θ 设置在一级衍射的入射角不变, 测角仪 2θ 从 θ_1 至 θ_2 用正比计数器对 X 光晶体的衍射峰进行扫描测量, 获得 Cu-K α 能量下的扭摆曲线. 去掉衍射晶体后, 测量单能化的 Cu-K α 光源强度, 可获得归一化的扭摆曲线 $P(\theta)$, 通过积分即可获得 Cu-K α 能点的晶体积分衍射效率.

2 标定实验

标定实验在国产 Y2000 型 X 射线衍射仪上进行. Y2000 衍射仪主要由 X 射线管、 θ - 2θ 测角仪、正比计数器、高压电源、水冷系统和控制系统等组成, 它具有 X 射线出光稳定、测角仪角度控制精确等特点. X 射线衍射仪通常用于材料的物相及定量分析. Y2000 型 X 射线衍射仪的核心组件见图 1.

Y2000 型 X 射线衍射仪属于卧式结构, 利用它对 X 光晶体本征参量进行实验标定, 必须制作一个平面晶体样品架, 使晶体衍射面与样品台的基准面完全吻合, 实物见图 1. 为了进一步提高准确度, 将衍射仪的入射狭缝宽度变窄为 0.4 mm、接收狭缝宽度变窄为 0.05 mm. 按照操作规程, 将 X 射线衍射仪经过精确“校零”, 即将 X 射线光源、 θ 测角仪、 2θ 测角仪和正比计数器进行精确的准直.

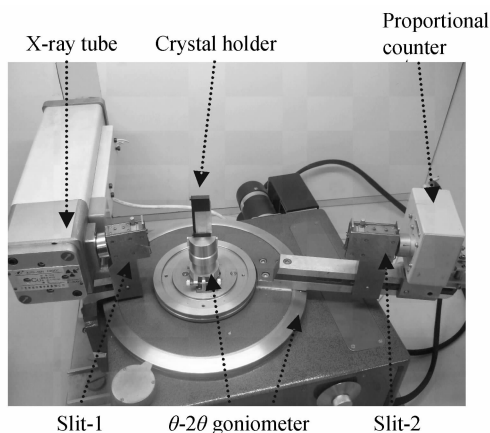


图 1 X 射线衍射仪的核心组件

Fig. 1 Key assemblies of X-ray diffractometer

X 射线管光源的单能化及其判据. 对于 Cu 靶 X 射线管, 为了降低韧致辐射的能区宽度和强度、Cu-K β 线发射强度, 考虑到晶体衍射效率、气体正比计数器的线性范围等因素, 将 Cu 靶 X 射线管的电压、电流分别设置为 15 kV、20 mA. 在入射狭缝处加 40 μm 厚度的纯镍滤片, 将 Cu-K β 及韧致辐射衰减近 5 数量级, 获得了 Cu 靶 Cu-K α 单能化的 X 射线光源. 在基准“零”位, 在无 X 光衍射晶体时, 由纯 (纯度 > 99.99%) 镍滤片 Cu-K α 能点的透过率作为单能化判据; 如 20 μm 厚的纯镍滤片透过率为 42%, 则 X 射线管光源已 Cu-K α 单能化.

测角仪最佳 θ 值确定与扭摆曲线的获取. 将 X 光平面晶体 PET(002) 置于晶体样品架上, 安装到基准面上. 根据 Cu 靶 K α 名义能量、PET 晶体价格常量名义值 ($2d=0.8742$ nm) 和布拉格公式, 求出 θ 约为 10.15° , 则 2θ 约为 20.30° ; 先固定测角仪 θ 在 10.15° , 测角仪 2θ 在 2θ 为 20.30° 附近一定范围内扫描, 寻找此时正比计数器最大计数值的 2θ , 设此时 2θ 为 $2\theta_{-1}$. 再固定测角仪 2θ 在 $2\theta_{-1}$, 测角仪 θ 在 10.15° 附近一定范围内扫描, 寻找此时正比计数器最大计数值的 θ , 设此时 θ 为 θ_{-1} . 经迭代数次, 直到找到正比计数器都为最大计数的 θ_{opt} 和 $2\theta_{\text{opt}}$. 实验得出最佳值 θ_{opt} 为 10.149° , 将测角仪 θ 固定在 10.149° , 测角仪 2θ 从 20.15° 到 20.45° 扫描测量, 测角仪 2θ 采用最小步长 0.001° , 利用正比计数器测量随测角仪 2θ 角度变化的 X 光强度的计数值 CPS (counts per second), 即 Cu-K α 能点的扭摆曲线 $P(\theta)$.

仅取下含晶体的样品架, 在其他条件均不变时, 将测角仪 2θ 置于已精确校准的“零位”, 利用正比计数器测量 X 射线管 Cu-K α 单能化光源强度的计数值 CPS 随时间 t 的变化曲线.

3 实验结果与分析

对于 X 光平面晶体 PET(002), 实验确定最佳值 θ 为 10.149° , 测角仪 2θ 从 20.15° 到 20.45° 扫描测量, 获得了 Cu-K α 能点 PET(002) 晶体的扭摆曲线 $P(\theta)$, 实验结果为粗实线, 如图 2. 从测量曲线看出, 衍射的本底计数约 150cps, Cu-K α_1 和 Cu-K α_2 的信噪比都优于 250, 且 Cu-K α_1 和 Cu-K α_2 的衍射峰结构十分清晰, 也证明 PET 平面晶体分辨本领很高.

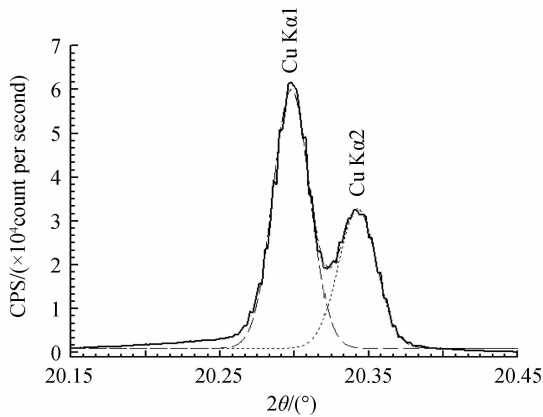


图 2 PET 晶体测定的 Cu-K α 线的扭摆曲线

Fig. 2 Experimental result of Cu-K α by PET diffraction

假设扭摆曲线为高斯型, 拟合 Cu 靶的 Cu-K α_1 和 Cu-K α_2 衍射线谱, 结果如图 2. 图中其中长短虚线分别为拟合后 Cu-K α_1 和 Cu-K α_2 两能点的扭摆曲线, 拟合与实验数据偏离最大偏差为 0.05%, 扭摆曲线的拟合数据见表 1.

表 1 Cu-K α 扭摆曲线拟合数据

Table 1 Fitting parameters of Cu-K α rocking curves

Rocking curves	Area / (cps $^\circ$)	$2\theta/(\circ)$	FWHM/ $(^\circ)$	Intensity/cps
Cu-K α_1	1 855.01	20.298	0.025 0	59 157
Cu-K α_2	1 027.06	20.369	0.025 7	31 858

因 Cu-K α_1 能点曲线拟合角度为 10.149° , Cu-K α_1 的国际评价波长为 $0.154\ 05\ \text{nm}$, 由式(1), 推出 PET(002) 晶体的晶格常量 $2d = 0.874\ 25\ \text{nm}$. Y2000 型 X 射线衍射仪的 θ 分辨力为 0.005° , 由布拉格公式可导出 $2d = (0.874\ 25 \pm 0.000\ 42)\ \text{nm}$, $k = 1$.

Y2000 型 X 射线衍射仪使用水冷方式严格控制 X 射线管温度, 其 X 光输出十分稳定, 可长时间运行. 实验标定时不超过 5 min. 用正比计数器获得的 Cu-K α 光源强度 10 min 内随时间变化的测量结果如图 3. 拟合表明, 图 3 中的 Cu-K α 光源强度平均值为 285 930CPS, 计数值的最大偏差仅为 1.39%. 因实验获得的扭摆曲线的计数值与光源强

度关联, 将其除以光源强度即可获得物理意义上的 $P(\theta)$. 依据式(2)积分, 获得了 PET(002) 晶体的 $R_c = 1.759 \times 10^{-4}\ \text{Rad}$. 在实验标定中, 影响 R_c 测量的主要因素为衍射仪出光稳定性和测角仪的分辨力, 由衍射仪出光非稳定性小于 1.39%, 测角仪的分辨力为 0.005° , 推出 $R_c = (1.759 \pm 0.024) \times 10^{-4}\ \text{Rad}$, $k = 1$.

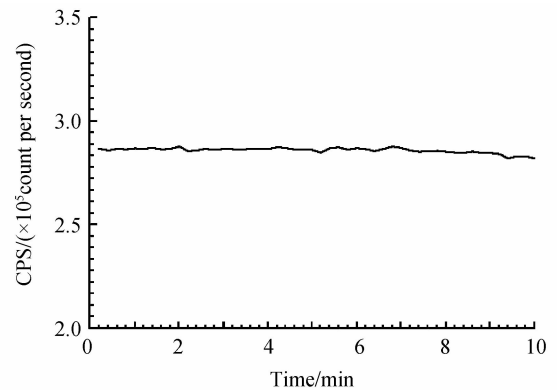


图 3 Cu-K α 光源的稳定性

Fig. 3 Stability of Cu-K α X-ray source

国产 X 射线衍射仪可方便更换 X 射线管靶材 (如 Cr、Ti、Fe、Mo、Ag 和 W 等), 其校准也相对简单, 若采用类似方法也能对 X 光晶体其它能点的积分衍射效率进行实验标, 可为 X 光晶体的本征参量库提供更多的标定数据.

4 结论

基于 X 射线衍射仪, 通过制作平面晶体样品架, 采取控制 X 射线管电源、滤波片选取和厚度控制等措施, 极大地抑制了 Cu-K β 及韧致辐射, 使 X 射线管光源 Cu-K α 单能化, 并用滤片作为 X 射线光源单能化判据. 对在 X 光线谱测量中常用的 X 光晶体季戊四醇 [PET(200)] 的晶格常量 $2d$ 和 Cu-K α 能点下的积分衍射效率 R_c 进行了标定方法研究, 其值分别为 $(0.874\ 25 \pm 0.000\ 42)\ \text{nm}$ 和 $(1.759 \pm 0.024) \times 10^{-4}\ \text{Rad}$.

基于 X 射线衍射仪的 X 光晶体本征参量的实验标定既快速高效, 且十分方便和灵活. 通过对 X 光晶体本征参量的实验标定, 为激光惯性约束核聚变、Z-pinch、高离化态离子谱学和等离子体物理等实验研究中准确鉴定 X 光晶体种类和品质, 研制各种类型晶体谱仪, X 光线谱定量测量和高分辨 X 光单能成像诊断提供条件.

参考文献

- [1] ZHENG Zhi-jian, DING Yong-kun, DING Yao-nan, *et al.* Recent progress and application of diagnostic technique in laser fusion[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2003, **11** (11): 1073-1076.
郑志坚, 丁永坤, 丁耀兰, 等. 激光惯性约束聚变综合诊断系统

- [J]. 强激光与粒子束, 2003, **11**(11): 1073-1076.
- [2] YANG Guo-hong, ZHANG Ji-yan, ZHANG Bao-han, *et al.* Analysis of fine structure of x-ray spectra from laser-irradiated gold dot[J]. *Acta Physica Sinica*, 2000, **49**(12): 2389-2393. 杨国洪, 张继彦, 张保汉, 等. 金激光等离子体 X 射线精细结构谱研究[J]. 物理学报, 2000, **49**(12): 2389-2393.
- [3] YANG Guo-hong, ZHANG Ji-yan, WU Ze-qing, *et al.* Measurement of time-resolved electron temperature of plasmas for Shenguang II hohlraum [J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2010, **22**(11): 2613-2616. 杨国洪, 张继彦, 吴泽清, 等. 神光 II 黑腔等离子体时间分辨的电子温度诊断[J]. 强激光与粒子束, 2010, **22**(11): 2613-2616.
- [4] WEI Min-xi, YANG Jia-min, YANG Guo-hong. Calibration of integral diffraction coefficient of flat crystal[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2006, **18**(2): 219-222. 韦敏习, 杨家敏, 杨国洪. 平面晶体积分衍射效率实验标定[J]. 强激光与粒子束, 2006, **18**(2): 219-222.
- [5] GAN Xin-shi, YANG Jia-min, YI Rong-qing, *et al.* Experimental research on integral diffraction coefficient of RAP crystal[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2009, **38**(4): 947-950. 甘新式, 杨家敏, 易荣清, 等. RAP 晶体积分衍射效率的实验研究[J]. 光子学报, 2009, **38**(4): 947-950.
- [6] GAN Xin-shi, YANG Jia-min, YI Rong-qing, *et al.* Calibration of integral diffraction coefficients of TIAP crystal [J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2007, **19**(11): 1827-1831. 甘新式, 杨家敏, 易荣清, 等. 邻苯二甲酸氢铯晶体积分衍射效率的标定[J]. 强激光与粒子束, 2007, **19**(11): 1827-1831.
- [7] ZHAO Jia, CUI Ming-qi, ZHAO Yi-dong, *et al.* The measurement of peak value diffraction efficiency of Si (111) crystal[J]. *Nuclear Techniques*, 2007, **30**(6): 511-514. 赵佳, 崔明启, 赵屹东, 等. Si(111) 晶体峰值衍射效率的测量[J]. 核技术, 2007, **30**(6): 511-514.
- [8] WEI Min-xi. Quantitative research of the flat crystal spectrometer[D]. Mianyang: China Academy of Engineering Physics, 2006. 韦敏习. 晶体谱仪定量化的初步实验研究[D]. 绵阳: 中国工程物理研究院, 2006.
- [9] LI Chao-rong. Application of X-ray triple crystal diffractometer [J]. *Physics*, 1994, **23**(1): 46-50. 李超荣. X 射线三晶衍射及其应用[J]. 物理, 1994, **23**(1): 46-50.
- [10] SUN Feng-rong, HEI Dong-wei, WANG Qun-shu, *et al.* Development of a soft X-ray crystal calibration system[J]. *Nuclear Electronics & Detection Technology*, 2010, **30**(12): 1598-1601. 孙凤荣, 黑东炜, 王群书, 等. 软 X 射线晶体标定系统研制[J]. 核电子学与探测技术, 2010, **30**(12): 1598-1601.
- [11] GILFRICH J V, BIRKS L S. Spectral distribution of X-ray tubes for quantitative X-ray fluorescence analysis [J]. *Analytical Chemistry*, 1968, **40**(7): 1077-1080.
- [12] GILFRICH J V, BROWN D B, BURKHALTER P G. Integral reflection coefficient of X-ray spectrometer crystal [J]. *Applied Spectroscopy*, 1975, **29**(4): 322-326.
- [13] EVANS K D, LEIGHT B. The absolute calibration of the reflection integral of Bragg x-ray analyzer crystals-single reflection methods[J]. *Space Science Instrumentation*, 1976, **2**: 105-123.
- [14] VIERLING J, GILFRICH J V, BIRKS L S. Improving diffracting property of LiF: comparison with graphite [J]. *Applied Spectroscopy*, 1969, **23**: 342-345.
- [15] REVERDIN C, MORLENS A S, ANGELIER B, *et al.* X-ray calibration of the time resolved crystal spectrometer SXDHR-1t of the ligne d'intégration laser [J]. *Review of Scientific Instrument*, 2004, **75**(10): 3730-3733.
- [16] ZAUMSEIL P, WINTER U, JOKSCH St, *et al.* X-ray reflection properties of annealed silicon single crystals [J]. *Review of Scientific Instrument*, 1992, **63**(1): 907-910.
- [17] BARRUS D M, BLAKE R L, FELTHAUSER H, *et al.* Spectrometric properties of crystals for low energy X-ray diagnostics[C]. AIP Conf Proc, 1981, **75**: 115-123.
- [18] HENKE B L, GULLIKSON E M, DAVIS J C. X-ray interactions: photoabsorption, scattering, transmission and reflection at $E=50\sim 30\ 000$ eV, $Z=1\sim 92$ [J]. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 1993, **54**(2): 181-342.

Calibration of Characteristic Parameters for X-ray Plane Crystal on the Automatic X-ray Diffractometer

YANG Guo-hong, WEI Min-xi, HOU Li-fei, YI Tao, LI Jun, LIU Shen-ye

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

Abstract: X-ray crystal characteristic parameters are the bases of identification of X-ray crystal species and class, kinds of X-ray crystal spectrometer fabrication, X-ray lines intensity quantitative measurement and X-ray monochromatic image diagnosis. On the automatic X-ray diffractometer (XRD), based on stability and precision control of θ and 2θ goniometer, special plane crystal holder was made. Bremsstrahlung and Cu-K α line were attenuated for 5 orders by 40 μm -thick Nickel filter, X-ray sources was to be Cu-K α monochromatic source, and transmission power of filter was the criterion of Cu-K α monochromatic source. For X-ray Pentaerythritol(002) plane crystal of Crystal lattice ($2d$) and integral reflective coefficient (R_c) of Cu-K α energy were calibrated, there are $2d = (0.87\ 425 \pm 0.00\ 042)\text{nm}$, $R_c = (1.759 \pm 0.024) \times 10^{-4}$ Rad respectively. This kind of experimental method is efficient and convenient on XRD in common laboratory. On XRD, other monochromatic X-ray sources can be obtained by changing the material of X-ray tube, and integral reflective coefficient of different energy will be obtained by the same way.

Key words: Calibration; X-ray crystal; Characteristic parameter; X-ray diffractometer