



·惯性约束聚变物理与技术·

X 光弯晶成像金属薄膜面密度测量技术*

司昊轩^{1,2,3,4}, 许昊^{1,2,3,4}, 杜慧瑶^{1,2,3,4}, 伊圣振^{1,2,3,4}, 王占山^{1,2,3,4}

(1. 同济大学物理科学与工程学院, 精密光学工程技术研究所, 上海 200092; 2. 同济大学先进微结构材料教育部重点实验室, 上海 200092; 3. 上海市数字光学前沿科学研究基地, 上海 200092; 4. 上海市全光谱高性能光学薄膜器件与应用专业技术服务平台, 上海 200092)

摘 要: 针对靶用高 Z 金属薄膜的无损检测需求, 提出了一种通过超环面弯晶聚焦型 X 光单能成像器件, 实现金属薄膜均匀性及面密度等参数精确标定的测量技术。该技术即通过高通量、高单能性成像, 定量获取薄膜 X 光透过率及其空间分布, 有效提升了面密度测量的精度, 同时实现了对其均匀性的高空间分辨评估。从总体方案设计、元器件制备和测试实验等方面开展了深入研究, 并评估了各种可能因素对测量不确定度的影响。所发展的超环面弯晶成像系统针对 20 keV 级的高能 X 射线在 mm 尺度内实现了优于 5 μm 的微区分辨, 能谱分辨达到几 eV。通过泡沫金样品面密度测量实验证明了技术可行性, 相对不确定度优于 2%。研究结果为激光惯性约束聚变高 Z 靶材料的精密无损检测提供了一种新的测量技术, 并有望应用于其他需要大视场、高空谱分辨成像的需求领域。

关键词: 金属薄膜; X 射线成像; 超环面弯晶; 高谱分辨; 面密度测量

中图分类号: O434.1

文献标志码: A

doi: 10.11884/HPLPB202335.230161

Areal density measurement technology for metal foils based on X-ray bent crystal imaging

Si Haoxuan^{1,2,3,4}, Xu Hao^{1,2,3,4}, Du Huiyao^{1,2,3,4}, Yi Shengzhen^{1,2,3,4}, Wang Zhanshan^{1,2,3,4}

(1. Institute of Precision Optical Engineering Technology, School of Physical Science and Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China;

2. Key Laboratory of Advanced Microstructured Materials, Tongji University, Shanghai 200092, China;

3. Shanghai Digital Optics Frontier Science Research Base, Shanghai 200092, China;

4. Shanghai Full-Spectrum High-Performance Optical Thin Film Devices and Application Professional Technical Service Platform, Shanghai 200092, China)

Abstract: In view of the measurement requirements of uniformity and areal density parameters of target metal foils, a non-destructive testing technology for high-Z metal foils by obtaining thin film X-ray transmittance and its spatial distribution through a toroidal crystal focusing type X-ray monochromatic imaging device is proposed. This technology not only effectively improves the accuracy of areal density measurement by high-throughput and high-monochromatic imaging, but also realizes high spatial resolution evaluation of thin film uniformity. This paper carries out in-depth research from the aspects of overall scheme design, component preparation and test experiment, and evaluates the influence of various possible factors on measurement uncertainty. The developed toroidal crystal imaging system achieves micro-region resolution better than 5 μm within millimeter scale for 20 keV-level high-energy X-rays, and spectral resolution reaches several eV. The feasibility of the developed technology is verified by surface density measurement experiment of foam gold sample, and relative uncertainty of areal density measurement better than 2% is obtained. This paper provides a new measurement technology for precise non-destructive testing of high-Z target materials for laser inertial confinement fusion, which is also expected to be applied to other fields that require large field of view and high spatial spectral resolution imaging.

Key words: metal foil, X-ray imaging, toroidal crystal, high spectral resolution, surface density measurement

* 收稿日期: 2023-05-31; 修订日期: 2023-10-11

基金项目: 国家自然科学基金项目 (11875202); 国家重点研发计划项目 (2019YFE03080200)

联系方式: 司昊轩, 2130969@tongji.edu.cn。

通信作者: 伊圣振, 15006@tongji.edu.cn;

王占山, wangzs@tongji.edu.cn。

激光惯性约束聚变(ICF)靶材料研究中,高 Z 金属薄膜由于其高导热性和高热稳定性,可作为黑腔腔壁材料以减少 X 射线能量损失,获得高的黑腔辐射温度以及能量转换效率^[1-3]。金属薄膜的面密度及其分布是涉及材料制备探索、物理实验及后续数值模拟的重要参数,准确的面密度测量是ICF制靶领域的重要环节^[4-5]。而靶用金属薄膜的制备流程复杂,且缺乏有效的方法对其进行面密度评价。 X 射线照相法、 β 射线吸收法和 γ 射线检测法是目前常用的靶材料密度测量方法,然而这些方法均存在局限性。 X 射线照相法通过 X 射线在金属薄膜上的反射和散射来推算金属薄膜的面密度,其测量精度较低,误差在10%以上,且能谱分辨率不足,无法区分不同元素的 X 射线散射。 β 射线吸收法是利用其在金属薄膜中传播时的吸收效应来测量金属薄膜的面密度,受制于 β 射线源的强度等因素,该方法的精度也较低,测量误差甚至大于20%,同时也不具备高谱分辨能力。 γ 射线检测法是通过测量 γ 射线在金属薄膜中传播时的衰减和散射效应来计算金属薄膜的面密度,然而,对于复合材料,由于不同材料对 γ 射线的吸收和散射效应不同,会导致分析结果出现较大的误差,对于密度差异不明显的金属材料, γ 射线检测法也难以准确区分它们的面密度。另外,该方法的设备成本较高,且对于较厚的金属薄膜需要进行多次测量以获取更准确的结果^[6-7]。因此我们提出基于单色化 X 射线吸收的无损透视测量新技术,该技术通过聚焦型的 X 射线光学器件进行高通量聚焦或高单色性成像,在有效保证测量数据质量的同时,依靠高单色性可以有效保证面密度测量的精度水平,同时也可实现对靶用金属薄膜的高空间分辨测量^[8-11]。本文介绍一种使用超环面弯晶器件对靶用金属薄膜面密度测量的方法,通过泡沫金材料面密度测量实验进行验证,并给出了测量结果的不确定度分析。

1 金属薄膜面密度测量原理及方案

基于单色化 X 射线吸收的无损透视测量技术利用物质对 X 射线的吸收作用与其密度间的解析关系,可以作为靶用金属薄膜面密度测量的有效手段。 X 射线在穿透物质时,与物质相互作用会引起射线能量损失,从而造成强度衰减。物质对 X 射线吸收作用的解析关系由Lambert-Beer定律给出^[12],即

$$I = I_0 e^{-\mu_1 z} \quad (1)$$

式中: μ_1 为材料的线吸收系数, $\mu_1 = \mu \rho$, μ 为质量吸收系数, ρ 为材料的体密度; I_0 为未经样品吸收前的 X 射线强度; z 为材料样品厚度^[13]。

金属薄膜的面密度 ρz 可以通过式(1)换算得到,即

$$\rho z = \frac{-\ln(I/I_0)}{\mu} \quad (2)$$

因此,通过测量放置金属薄膜样品前后的光强比值(即透射率 I/I_0),可获得待测金属薄膜样品的面密度,也即 X 射线吸收法测量面密度的物理原理。由公式(2)可知,透射率 I/I_0 是可以直接测量的物理量,而质量吸收系数 μ 则和 X 射线的能量有关。不同的 X 射线能量对应的质量吸收系数 μ 存在差异,因此为了准确的获得面密度信息,就必须对能量进行精确标定,或者通过单能 X 射线进行透视测量。此外,靶用金属薄膜样品本身具有一定的尺寸,因此所发展的测量方法能够测量样品在不同空间位置的面密度信息。

兼具空间分辨和高能谱分辨特性的 X 射线单能背光透视成像技术是金属薄膜面密度测量的可行方案,因此我们发展了高单色性、高空间分辨的超环面弯晶成像系统。 X 射线弯晶成像技术基于晶体的 X 射线衍射原理,具有大数值孔径、高空间和谱分辨的光学特性,常用的面形有球面和超环面,其中超环面弯晶在子午和弧矢方向上具有不同的曲率半径,可以消除非正入射情况下存在的严重像散,相比球面弯晶,在20 keV级的高能 X 射线能区更有应用前景^[14-16]。超环面弯晶面密度测量方案如图1所示。 X 射线光源放置于超环面弯晶的子午方向焦点处, X 射线经过其后的物方光阑限束后,穿过待测的金属薄膜样品,并由超环面弯晶聚焦,像面探测器前再次放置限束光阑,从而获得金属薄膜样品的清晰成像。

超环面弯晶系统的成像公式为

$$\begin{cases} \frac{1}{a} + \frac{1}{b_m} = \frac{2}{R_m \sin \theta} \\ \frac{1}{a} + \frac{1}{b_s} = \frac{2 \sin \theta}{R_s} \end{cases} \quad (3)$$

式中: a 为物距; b_m 和 b_s 分别为子午和弧矢焦点与晶面的距离; R_m 和 R_s 分别为超环面弯晶子午和弧矢曲率半径; θ 为布拉格角。

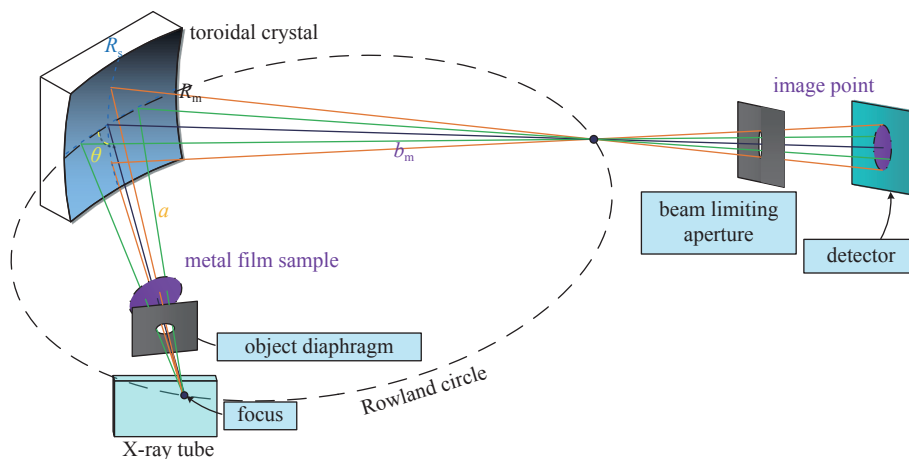


Fig. 1 Scheme diagram of the toroidal crystal to measure areal density

图 1 超环面弯晶面密度测量方案图

超环面弯晶成像系统子午和弧矢方向上的焦距满足

$$f_m = \frac{R_m \sin \theta}{2} = f_s = \frac{R_s}{2 \sin \theta} \quad (4)$$

式中: f_m 和 f_s 分别为子午和弧矢焦距, 当 R_m 和 R_s 满足 $R_s/R_m = \sin^2 \theta$ 时, f_m 和 f_s 相等, 此时可以消除非正入射下弯晶成像会产生的像差, 并且可以在两个方向放大倍率相等处获得最佳成像。理论上超环面弯晶成像系统可以达到 μm 量级的空间分辨率, 满足金属薄膜面密度测量中不同位置处面密度均匀性测量的需求; 超环面弯晶成像系统的有效视场可以达到 mm 量级, 和惯性约束聚变实验中靶丸的尺寸相当; 且弯晶成像的单色性高, $\Delta E/E$ 可以达到 10^{-4} 。总体来说, 利用超环面弯晶成像系统可以很好地开展靶用金属薄膜面密度的测量。

2 超环面弯晶成像系统设计

由于 20 keV 量级的高能 X 射线对于常见的靶用金属薄膜材料具有较好的穿透性, 因此本文选择 $\text{Mo K}\alpha$ 线 (17.48 keV) 作为弯晶系统所针对的成像能点, 晶体材料选择积分衍射效率较高的 Ge 单晶。通过 XOP 软件模拟, Ge(511)晶向的三级衍射对于 17.48 keV 能点有较高的衍射效率, 因此设计了 Ge(511)超环面弯晶系统, 其光学结构参数如表 1 所示。

表 1 Ge(511)超环面弯晶系统光学结构参数

Table 1 Optical structure parameters of toroidal crystal system for Ge(511)

crystal material	crystal orientation	$\theta/(\circ)$	R_m/mm	R_s/mm	object distance/mm	image distance/mm
Ge	$\langle 511 \rangle$	77.74	300	286.5	171.01	1 026.05

超环面弯晶器件由晶片和基底两部分构成, 厚度小于百微米的晶片通过直接接触的方式 (即光胶法) 复制超环面基底的面形。在像面处使用荧光探测器对放置样品前后的谱强度进行测量, 可以获得系统透过率 I/I_0 , 将透过率以及通过查阅资料获得的质量吸收系数 μ 代入式 (2) 即可获得待测样品的面密度。

超环面弯晶器件制备完成后, 为考察系统的空间分辨能力, 用线宽约 $5 \mu\text{m}$ 的 600 目金网格 (Gilder, G600HSS) 作为标定物进行成像实验, 网格线宽由电子显微镜测得, 弯晶成像实验结果如图 2 所示, 经过标定得到, 使用 Ge(511)超环面弯晶系统测量样品可以在大于 1 mm 的有效视场内得到约 $5 \mu\text{m}$ 的高空间分辨率。

所开发超环面弯晶系统的谱分辨能力可以用光学仿真软件进行评估, 使用 X-ray Tracer 软件^[17] 模拟 Ge(511)超环面

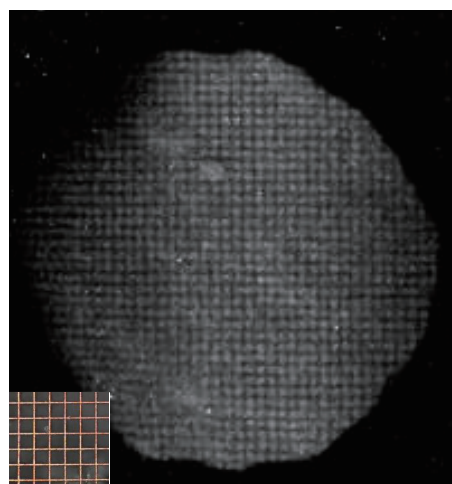


Fig. 2 Image of a 600-mesh gold mesh by Ge(511) toroidal crystal

图 2 Ge(511)超环面弯晶对 600 目金网的成像结果

弯晶对 600 目金网格的成像结果, 在软件中设置光源为 Mo 靶 X 射线的真实能谱, 成像结果如图 3 所示。

由图 3 中右侧框图中能量响应结果可知, Ge(511)超环面弯晶对 Mo K α 线的能谱分辨达到 4 eV。

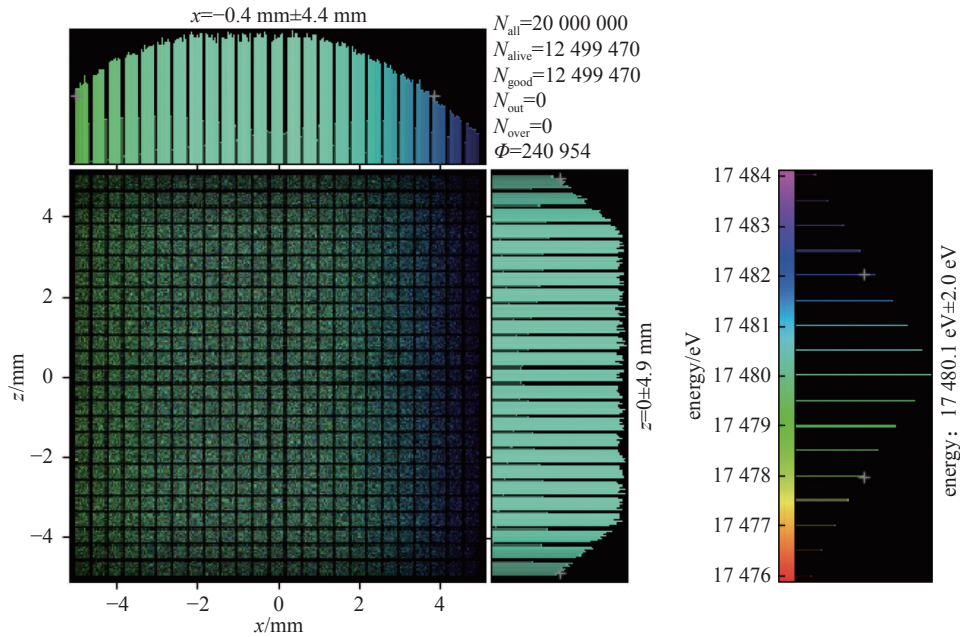


Fig. 3 X-ray Tracer simulated imaging and spectroscopic resolution of Ge(511) toroidal crystal

图 3 X-ray Tracer 模拟 Ge(511)超环面弯晶的成像及能谱分辨

3 泡沫金样品测试实验及不确定度分析

泡沫金作为常用的惯性约束聚变靶丸材料, 可以使用上述测量方案对泡沫金样品进行实验面密度测量来验证方案可行性。Ge(511)超环面弯晶成像系统测量泡沫金材料面密度的实验的排布如图 4 所示。

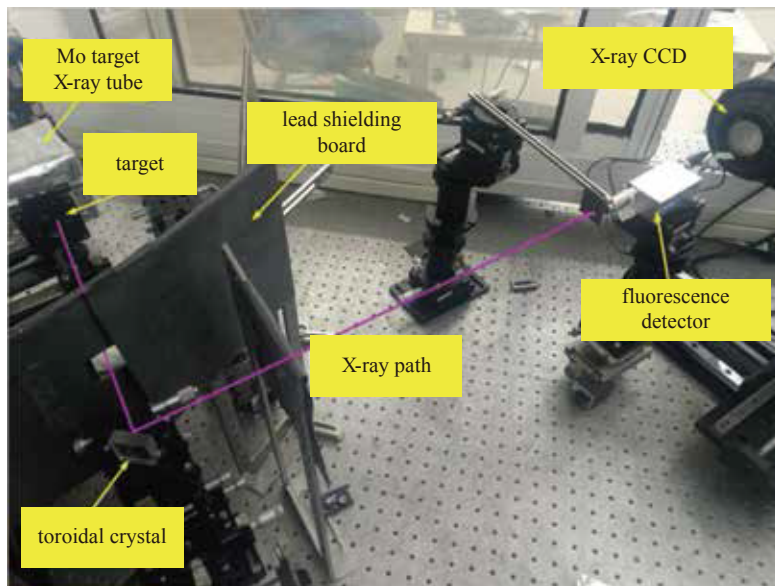


Fig. 4 Experimental arrangement of toroidal crystal for measuring the areal density of foam gold

图 4 超环面弯晶测量泡沫金面密度的实验排布

测量实验得到的结果如图 5 所示。其中图 5(a)为 Ge(511)超环面弯晶系统在不放置泡沫金样品时的成像结果, 图 5(b)为 Ge(511)超环面弯晶系统在放置泡沫金样品时的成像结果。

为降低测量误差影响, 对泡沫金样品上多个点分别进行成像, 并分别对比放置样品前后探测器的光强, 获得透过率, 按照不同点的厚度进行面密度计算, 并根据面密度推算各点处泡沫金样品的厚度, 结果见表 2。

由以上测量结果可知, 测得泡沫金样品的面密度为 15.1~16.4 mg/cm²。

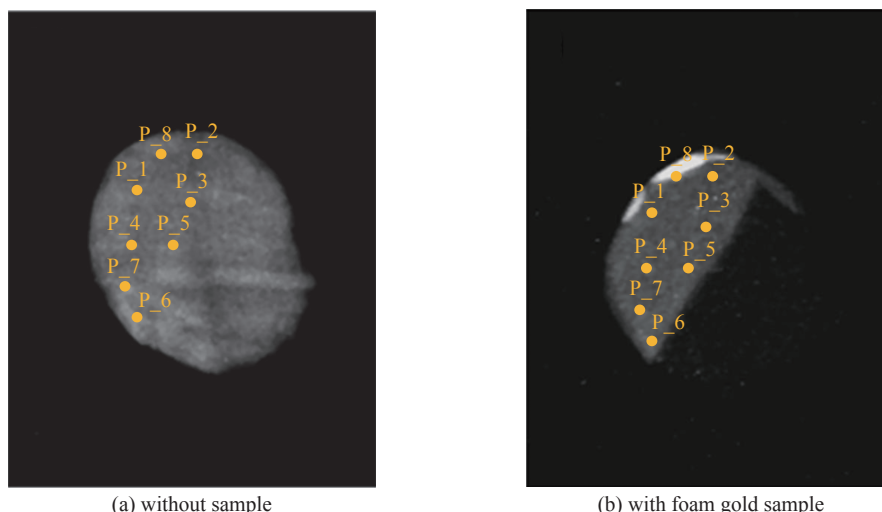


Fig. 5 Results of areal density measurement of foam gold in toroidal crystal

图 5 超环面弯晶泡沫金面密度测量结果

表 2 Ge(511)测量泡沫金样品面密度

Table 2 Ge(511) measurement of surface density of foam gold sample

No.	image coordinates/mm	direct light count (I_0)	transmitted light count (I)	transmissivity/%	areal density/(mg/cm ²)	thickness/ μ m
P_1	(409,276)	3 309	600	18.132	15.856	8.207
P_2	(432,274)	3 003	590	19.647	15.108	7.820
P_3	(441,281)	2 871	554	19.296	15.290	7.914
P_4	(415,298)	3 433	609	17.740	16.055	8.310
P_5	(436,297)	3 523	624	17.712	16.072	8.319
P_6	(395,313)	3 450	647	18.754	15.547	8.047
P_7	(427,324)	3 599	613	17.033	16.432	8.505
P_8	(403,326)	3 366	594	17.647	16.107	8.337

接下来对该测量结果进行不确定度分析, 按照国家质量监督检验检疫总局发布的 JJF1059.1-2012《测量不确定度评定与表示》(GUM 法)进行不确定度的评定, 首先建立测量模型, 即式(1), 然后分析不确定度的来源, 然后对 A、B 类不确定度进行分别评估, 最终计算合成不确定度^[18]。

面密度测量实验中不确定度的来源有以下几种: X 射线光管强度的稳定性、样品纯度、探测器能谱分辨以及实验环境的影响。上述来源中 X 射线光管强度的稳定性属于由随机效应引入的测量不确定度, 可以用统计方法进行评定, 故属于 A 类不确定度, 其他来源均属于 B 类不确定度, 具体来源和分类如图 6 所示。

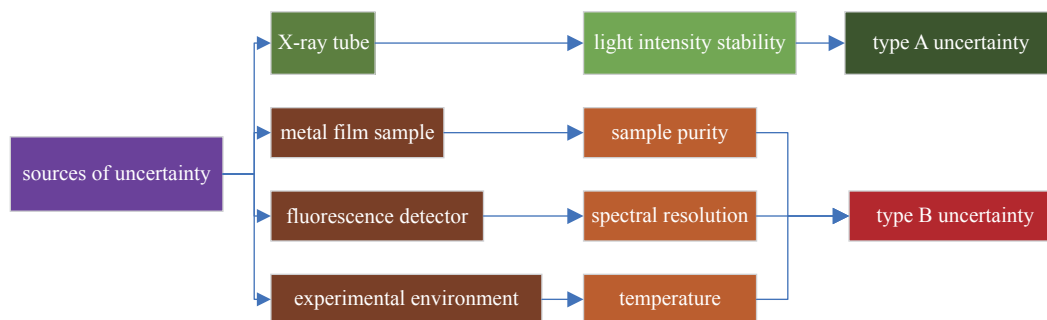


Fig. 6 Sources and classification of uncertainty of areal density measurement

图 6 面密度测量不确定度来源及分类

A 类不确定度即透过率的测量误差, 利用 XR-100CR 型探测器标定 Mo $K\alpha_1$ 峰, 并读出去除基底和噪声的光强值, 5 次测量记录时间均为 5 min, 且每次测量间隔 5 min, 透射光光强计数分别为 6 174、6 188、6 190、6 195、6 182, 测量平均值为 6 185.8, 标准偏差为 7.2, 最大不超过 0.2%, 根据 X 光管强度稳定性为 0.2% 左右时的实验数据估算

A类不确定度 $u_A(T)$ 为 0.028 284 27。

B类不确定度通过 IMD 软件模拟样品纯度、能谱分辨对质量吸收系数的影响合并通过 GEANT4 软件分别模拟了相对密度变化、工作能量变化和温度变化对透过率的影响给出。在 IMD 软件中,将单层膜密度设置为 0.55 g/cm^3 (相对密度为 2.85%),膜层厚度为 $20 \mu\text{m}$,泡沫金材料中主要掺杂元素为 C,因此设置 C 杂质元素的含量分别设置为 25×10^{-6} 、 50×10^{-6} 、 10×10^{-5} 、 20×10^{-5} 、 10×10^{-4} ,计算在 17.48 keV 能点透过率受杂质含量的影响,进而计算质量吸收系数受杂质含量的影响并算出质量吸收系数的不确定度,计算得到相对不确定度为 0.001 4%,几乎可以忽略不计,说明在指定的样品纯度区间内,样品纯度对于质量吸收系数的不确定度影响很小。同样在 IMD 软件中,模拟样品在极限能谱分辨处,即 17.405、17.48、17.555 keV 能点透过率,得到的相对不确定度为 0.61%。使用 GEANT4 软件分别模拟了泡沫金材料的相对密度为 1%、2%、3% 和 100% 标准密度时在 17.48 keV 能点的透过率,得到相对密度引起的质量吸收系数相对不确定度为 0.29%。模拟相对密度为 3% 的泡沫金材料在室温 $\pm 25 \text{ K}$ 的透过率,得到实验温度引起的质量吸收系数相对不确定度为 0.32%。根据 GUM 法,将以上各影响因素对质量吸收系数的造成的不确定度合成为 B 类不确定度 $u_B(T)$,计算得到 $u_B(T)$ 为 $0.839 6 \text{ cm}^2/\text{g}$ 。

根据测量模型,将透过率的 A 类不确定度和质量吸收系数的 B 类不确定度合成,最终得到泡沫金样品面密度的合成相对不确定度 u 为 1.72%。

4 结 论

本文将基于单色化 X 射线吸收的无损透视测量技术作为靶用金属薄膜面密度测量的手段,结合超环面弯晶成像系统,提高了系统集光效率的同时,也获得了更好的单色性和空间分辨能力,解决了传统测量方法精度低、效率低的问题。同时,本文分析了面密度测量实验中不确定度的来源,给出了不确定度的评估方法。通过所开发超环面弯晶面密度测量方案对靶用泡沫金样品开展面密度测量实验进行验证,并进行面密度测量的不确定度分析,最终得出面密度测量的不确定度能够达到优于 2% 的水平结论。研究结果为激光惯性约束聚变高 Z 靶材料的精密无损检测提供了一种精准、高效的测量技术,提升了金属薄膜面密度的测量精度,同时降低了靶丸检测对背光尺寸的需求,有效提升透视测量效果。

参考文献:

- [1] 唐永建,张林,吴卫东,等. ICF 靶材料和靶制备技术研究进展[J]. 强激光与粒子束, 2008, 20(11): 1773-1786. (Tang Yongjian, Zhang Lin, Wu Weidong, et al. Research progress on ICF target materials and target fabrication technology[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2008, 20(11): 1773-1786)
- [2] 高莎莎,吴小军,何智兵,等. 激光惯性约束聚变靶制备技术研究进展[J]. 强激光与粒子束, 2020, 32: 032001. (Gao Shasha, Wu Xiaojun, He Zhibing, et al. Research progress of fabrication techniques for laser inertial confinement fusion target[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2020, 32: 032001)
- [3] Rong Chunming, He X, Meng J, et al. Nuclear microbeam analysis of ICF target material made by GDP technique[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2015, 348: 178-182.
- [4] Dong Yalun, Yang Lihong, Jin Ziqi, et al. Experimental and numerical analysis of ballistic impact response of fiber-reinforced composite/metal composite target[J]. Composite Structures, 2022, 294: 115776.
- [5] Stoner J O Jr, Borgardt J, Ashbaugh M D, et al. Areal-density measurement of ^{12}C and ^{13}C foils and layers using the (^3He , p) nuclear reaction[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2002, 480(1): 133-136.
- [6] Fukuchi T, Yamamoto S, Kataoka J, et al. Beta-ray imaging system with γ -ray coincidence for multiple-tracer imaging[J]. Medical Physics, 2020, 47(2): 587-596.
- [7] Ashworth C. Boosting β -ray detection[J]. Nature Reviews Materials, 2020, 5: 640.
- [8] Yi Shengzhen, Si Haoxuan, Jiang Li, et al. Optical and multilayer design of two-energy sixteen-channel Kirkpatrick-Baez microscope for ultrafast plasma diagnostics[C]//Proceedings of SPIE 11909, Tenth International Symposium on Ultrafast Phenomena and Terahertz Waves. 2021: 11909S.
- [9] 伊圣振, 司昊轩, 黄秋实, 等. 激光惯性约束聚变 X 射线诊断用多通道 Kirkpatrick-Baez 成像系统研究进展[J]. 光学学报, 2022, 42: 1134007. (Yi Shengzhen, Si Haoxuan, Huang Qiushi, et al. Research progress of multi-channel Kirkpatrick-Baez microscope for X-ray diagnostics in laser inertial confinement fusion[J]. Acta Optica Sinica, 2022, 42: 1134007)
- [10] Yi Shengzhen, Si Haoxuan, Fang Ke, et al. High-resolution dual-energy sixteen-channel Kirkpatrick-Baez microscope for ultrafast laser plasma diagnostics[J]. Journal of the Optical Society of America B, 2022, 39(3): A61-A67.
- [11] Si Haoxuan, Dong Jiaqin, Fang Zhiheng, et al. High-resolution X-ray monochromatic imaging for laser plasma diagnostics based on toroidal crystal[J]. Plasma Science and Technology, 2023, 25: 015601.
- [12] Mamouei M, Budidha K, Baishya N, et al. An empirical investigation of deviations from the Beer-Lambert law in optical estimation of lactate[J]. Scientific Reports, 2021, 11: 13734.

- [13] Linstrom P J, Mallard W G. NIST chemistry WebBook[D/OL]. Gaithersburg: National Institute of Standards and Technology, 2020[2023-04-07]. <https://webbook.nist.gov/chemistry/>.
- [14] Jiang Chenglong, Xu Jie, Mu Baozhong, et al. Four-channel toroidal crystal X-ray imager for laser-produced plasmas[J]. *Optics Express*, 2021, 29(4): 6133-6146.
- [15] 姚童, 黎森, 施军, 等. 钛靶 X 射线超环面晶体衍射高分辨率聚焦诊断技术研究[J]. *中国激光*, 2021, 48: 2103002. (Yao Tong, Li Miao, Shi Jun, et al. High-resolution focusing diagnosis technology on Ti-target X-ray diffraction using toroidal crystals[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2021, 48: 2103002)
- [16] Schollmeier M S, Loisel G P. Systematic search for spherical crystal X-ray microscopes matching 1-25 keV spectral line sources[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2016, 87: 123511.
- [17] Klementiev K, Chernikov R. Powerful scriptable ray tracing package XRT[C]//Proceedings of SPIE 9209, Advances in Computational Methods for X-Ray Optics III. 2014: 92090A.
- [18] JJF 1059.1-2012, 测量不确定度评定与表示[S]. (JJF1059.1-2012, Evaluation and expression of uncertainty in measurement[S])