

高分辨透射 X 射线三维成像在材料科学中的应用 *

王绍钢 王苏程 张磊

(中国科学院金属研究所沈阳材料科学国家(联合)实验室, 沈阳 110016)

摘要 随着 X 射线光源、光学器件及图像分析技术的不断发展, 微米甚至数十纳米空间分辨 X 射线三维数字化成像成为可能. 在此基础上, 提供了高分辨无损探测材料内部结构的新技术和方法, 预计高分辨 X 射线三维成像新技术将会进一步促进材料科学技术的发展. 本文将简述 X 射线三维成像的产生背景和发展过程, 介绍吸收衬度成像、相位衬度成像和全息成像的原理与特点, 着重分析高分辨透射 X 射线三维成像在材料孔洞、裂纹与腐蚀、复合材料以及原位测试等方向的应用及其特点, 比较同步辐射与实验室 X 射线高分辨透射三维成像技术的不同, 以探讨高分辨透射 X 射线三维成像在材料科学研究中进一步应用的可能性.

关键词 X 射线, 三维成像, 材料科学, 金属, 复合材料, 原位

中图分类号 TF777.1

文献标识码 A

文章编号 0412-1961(2013)08-0897-14

APPLICATION OF HIGH RESOLUTION TRANSMISSION X-RAY TOMOGRAPHY IN MATERIAL SCIENCE

WANG Shaogang, WANG Sucheng, ZHANG Lei

Shenyang National Laboratory for Materials Science, Institute of Metal Research, Chinese Academy of Sciences, Shenyang 110016

Correspondent: ZHANG Lei, associate professor, Tel: (024)23971551, E-mail: lzhang@imr.ac.cn

Manuscript received 2013-03-06, in revised form 2013-06-04

ABSTRACT The continuing development of X-ray light sources, optical devices and image analysis technologies enables us to nondestructively analyze internal structures of materials by using 3D imaging with a spatial resolution of micron, even dozens of nanometers. Innovations in materials science and technology will benefit from the new achievements of the X-ray tomography with higher resolution. This article devotes to review the origination and development of the X-ray tomography techniques for 3D imaging and introduce the principles and specifications of three imaging methods, including absorption imaging, phase contrast imaging and holographic imaging. The differences between synchrotron-based and laboratory-based X-ray tomography are also discussed. To explore new opportunities of the high resolution X-ray tomography in the development of material science and technology, particular emphasis is laid on the applications for traditional materials with a 3D view, such as the characterizations of holes, cracks, corrosion, composites, and in situ testing etc..

KEY WORDS X-ray, tomography, material science, metal, composites, in situ

材料科学中, 材料的宏观性能与其微观结构类型密切相关. 根据尺度的不同, 块体材料的微观结构大致包括微米级的晶粒和增强相, 以及纳米级的晶粒、沉淀相、位错和李晶等; 在制备和使用过程中, 材料内部还可能出现孔洞、夹杂和裂纹. 如果微观结构分布不均匀, 传统的金相显微镜或者扫描电镜等二维材料表征技术就难以提供完整

的材料内部信息^[1]. 要想准确建立材料微观结构和宏观性能的关系, 必须了解材料微观结构在三维空间的数量、体积分数和分布等定量化信息.

到目前为止, 与材料科学相关的三维成像技术主要包括原子探针、二次离子质谱、透射电镜、聚焦离子束和 X 射线技术^[2]. 其中, 仅有 X 射线三维成像(XRT)属于非破坏性三维成像技术; 此外, 在所有的三维成像技术中, XRT 技术适用的尺度范围最广, 可以从数十纳米到毫米量级^[3-5]. 近年来, 第三代同步辐射光源和实验室商用高分辨透射 X 射线三维成像(HRTXRT)设备的出现, 大大促进了 XRT 技术的发展. 越来越多的研究人员进入到

* 收到初稿日期: 2013-03-06, 收到修改稿日期: 2013-06-04

作者简介: 王绍钢, 男, 1981 年生, 博士

DOI: 10.3724/SP.J.1037.2013.00107

这个领域.

目前, XRT 技术大致包括透射 XRT(形貌)、荧光 XRT(元素)、衍射 XRT(晶体学)和散射 XRT(织构). 其中, 只有透射 XRT 技术, 不仅能在同步辐射装置上实现, 也能在普通实验室成像设备上应用; 其它几种技术需要高强度的 X 射线束, 只能在同步辐射装置上应用. 本文将围绕透射 XRT 展开叙述.

在很多研究工作中, XRT 被表述为 X 射线断层成像、X 射线层析成像、X 射线显微成像或者计算机显微成像. 显然, 不同的术语让新进入到这个领域的人们无法对最新研究进展有一个清晰的判断. 本文旨在给出一个清晰的脉络, 帮助人们尽快了解 HRTXRT 技术在材料科学, 尤其是金属材料领域应用的新进展, 找到 HRTXRT 技术和材料科学的结合点. 为此, 本文将首先介绍 XRT 的发展历史, 其次是透射 XRT 的几种成像原理, 然后结合一些金属材料应用的最新研究进展介绍 HRTXRT 技术在材料科学中的应用, 最后讨论同步辐射和实验室 HRTXRT 的优缺点, 以及国内外利用 HRTXRT 系统开展工作的情况.

1 X 射线三维成像的发展

众所周知, 1895 年, 德国物理学家 Roentgen 发现了 X 射线, 并在底片上清晰地看到妻子的手指骨和戒指. 该图像被公认为世界上第一张放射学图像^[6]. X 射线也因此被用于医学诊断, 如探测骨骼的病变等. 然而, 该方法存在严重的缺陷: 它仅仅是物体内部 X 射线吸收量变化值的二维投影. 如果在投影方向几个性质不同的部分呈前后分布, 则投影像重叠, 无法准确分辨, 从而影响甄别与诊断的正确性.

1917 年, Radon^[7] 提出了断层扫描技术的基本思想: 利用逐层扫描, 将被探测物体分割成很多个面; 如果已知这些面上的积分函数信息, 也就是 Radon 变换, 就可以进行 Radon 逆变换处理和运算, 从而重建物体的图像. 然而, Radon 的数学思想直到 20 世纪 70 年代初才被人们知晓. 1963 年, Cormack^[8] 基于 X 射线穿过物体后所携带的信息, 发展了一种可以计算物体内部 X 射线吸收量分布的方法, 从而解决了计算机断层扫描技术重建的理论问题. Cormack 被认为是对计算机断层扫描技术的发展做出了实质性贡献的第一人. 1972 年, Hounsfield 独立发展了一种重建方法, 研制成功了世界上第一台 X 射线计算机断层扫描机 (computed tomography, CT), 并于次年发表了首篇三维成像的论文^[9]. 第一台 CT 机的分辨率 (相当于 2 个像素之间的尺寸) 约为 26 mm^[10]. 从此, X 射线不仅能探测到密度差异明显的人体组织, 而且能够分辨具有相似密度的不同组织^[9], 彻底解决了 X 射线照相时前后物体图像重叠问题, 极大提高了医学诊断的可靠性和准确性, 树立了 X 射线医学诊断新的里程碑. Cormack

和 Hounsfield 因此获得 1979 年的诺贝尔生理医学奖.

人们对 XRT 的认识大多限于医学成像, 而对其它领域应用的认识尚不足. 事实上, 伴随着工业界的需求, XRT 技术在工业无损探伤方面的应用日益增多^[11]. 一方面, 工业专用无损探伤设备投入应用; 另一方面, 成熟的医用 CT 机仍然在发挥作用. 需要指出的是, 工业无损探伤一般仅关注毫米量级的特征信息, 分辨率仍然比较低.

随着科技的进步, 人们对 XRT 技术的分辨能力提出了更高的要求. 如果 XRT 的细节分辨率能从毫米量级或者几百个微米的量级降到微米量级, 生物结构材料如钙化组织、复合材料的损伤、金属中的疲劳裂纹等微观结构就能以非破坏方式研究. 20 世纪 70 年代以后, 电子束光刻等微纳加工技术取得突破, 制作用于 X 射线聚焦和成像的光学元件, 如 Fresnel 波带片成为可能. X 射线光学元件, 克服了 X 射线穿过物质时折射率小, 不能像可见光一样有效折射和反射的缺点, 大大提高了 X 射线成像的分辨率. 1982 年, Elliott 和 Dover^[12] 第一次使 XRT 的分辨率达到十微米的量级. 此外, 同步辐射光源还能以扫描方式成像, Flannery 等^[13] 于 1987 年获得了接近 1 μm 分辨率的三维图像, Haddad 等^[14] 则于 1994 年同样以扫描模式进一步获得了横向分辨率约为 100 nm 的三维图像.

应用高亮度相干同步辐射 X 射线光源, 并结合高分辨和高速数据读取的 X 射线探测器, XRT 技术的应用迈入新的阶段. 1997 年, Guvenilir 等^[15] 首次开展了 XRT 的原位实验, 观察了 Al-Li 缺口拉伸样品在载荷作用下的裂纹张开. 2003 年, Nielsen 等^[16] 利用 XRT 技术和标记颗粒技术, 研究了 Al-W 合金中 W 颗粒在压缩载荷作用下的位移, 首次获得了金属材料塑性变形的位移梯度张量图, 近年来, 他们利用 X 射线衍射实现了多晶三维成像, 并结合原位实验将材料三维结构随时间的演化作为第四维, 提出了 4D 技术.

虽然利用高亮度同步辐射光源可以得到高质量图像, 但是用传统实验室光源进行 HRTXRT, 一直是该领域的目标之一. 2008 年, 利用实验室 X 射线管作为光源的 XRT 技术的空间分辨率已达到 1 μm , 甚至亚微米的水平^[17], 成为光学显微镜和透射/扫描电子显微镜的有益补充. 目前, 各国科学家已利用同步辐射光源或实验室微焦点 X 射线管作为光源, 用 HRTXRT 技术研究了材料科学中的诸多问题^[1,18-22], 比如陶瓷等无机材料中孔洞的尺寸、形貌、体积分数和内部的表面积^[23-26], 复合材料中不同尺寸纤维的分布^[27], 超导材料中密度差异对超导性能的影响^[28], 金属材料的相或者裂纹在三维空间的连通性, 形貌和体积分数^[29-33], 金属材料的力学性能/变形机制与微结构的关系^[34-41], 以及完成材料压缩、拉伸过程的原位观察等各种损伤机制的研究^[42-48], 包括高温条件

下的行为^[49,50]等。

2 透射 X 射线三维成像的原理

XRT 系统主要由 X 射线源、样品台、探测器和计算机数据处理系统组成。X 射线源发射的 X 射线在穿过样品时与样品发生相互作用。由于样品内部的不同微观结构的衬度不同, 这些衬度信息被探测器所记录, 就会得到一幅包含衬度信息的二维投影; 以 X 射线源和探测器中心连线的垂直方向为旋转轴, 将样品 360° 旋转, 并等角度间隔采集二维投影, 比如每旋转 1°, 获得一幅二维投影, 那么旋转 360° 后, 就可以得到 360 幅包含衬度信息的二维投影。根据这些二维投影, 采用 Fourier 滤波反投影算法^[51], 就能重建出与衬度相对应的样品区域的形状、大小和分布, 即整个样品体积的三维微观结构。二维投影的数目越多, 重建后的三维图像的信噪比越高, 即图像质量越高。

目前, 基于磁场、电场、X 射线和 γ 射线等各种物理激发源的成像技术所使用的成像衬度模式包括吸收、相位、荧光、散射、衍射和全息等; 材料科学领域应用的透射 XRT 主要采用吸收衬度成像、相位衬度成像和全息成像 3 种衬度成像模式。

2.1 吸收衬度成像

吸收衬度成像是 XRT 采用的最基本和最普遍的成像模式。它的理论基础是 Beer-Lambert 定律或者衰减定律, 如下式所示:

$$N_1 = N_0 \exp \left[- \int_{\text{path}} \mu(x, y_1) dx \right] \quad (1)$$

如果能够测量出入射光子数 N_0 和沿一条线 $y=y_1$ 穿过样品的透射光子数 N_1 , 就可以计算此路径上的 μ 的

积分:

$$\ln \frac{N_0}{N_1} = \int_{\text{path}} \mu(x, y_1) dx \quad (2)$$

$\mu(x, y)$ 是点 (x, y) 处的线性吸收系数。 $\mu(x, y)$ 与光子能量 E , 被测材料的密度 ρ 以及原子序数 Z 有关。在 200 keV 以下, 质量吸收系数 μ/ρ 强烈地依赖于 E 和 Z , 如下式所示^[52]:

$$\frac{\mu}{\rho} = K \cdot \frac{Z^4}{E^3} \quad (3)$$

式中, K 是常数。根据式 (3), 对于给定的入射光子能量 E , μ 正比于 ρ 和 Z^4 。当 E 超过 200 keV 时, 光子入射后发生 Compton 散射, 由于 μ 几乎不依赖于 Z 和 E , 因此, 可以产生与 ρ 几乎成正比的信息。不过, 从 Beer-Lambert 定律可知, 由于光子能量较高, μ 应该比较低, 因此, 被测物体图像的对比度也会低一些。对于 X 射线透射三维成像, 吸收衬度的灰度直接反映了样品内部 X 射线线性吸收系数的分布。样品内不同区域的 μ 差别越大, 得到的图像衬度越大, 这更便于图像分析。

对于厚度为 t 的单质材料, 式 (1) 可以改写为 $N_1 = N_0 \exp(-\mu t)$ 。为了保证图像具有好的对比度, 光子透射率应该大于 20%^[4]。如果所有单质材料的透射率 $T = N_1/N_0$ 均取 20%, 由各单质材料的线性吸收系数^[53], 就可以计算出 X 射线穿透各单质材料的最大厚度 t_{\max} 。随着 E 的提高, t_{\max} 迅速增加。表 1 列出了常见单质材料的 E 和对应的 t_{\max} 。例如单质 Al, 当 E 为 10, 30 和 150 keV 时, t_{\max} 分别为 0.227, 5.286 和 43.273 mm; 而对于单质 Fe, 当 E 为 10, 30 和 150 keV 时, t_{\max} 分别为 0.012, 0.250 和 10.411 mm。需要注意的是, 表 1 中的 t_{\max} 是针对单色 X 射线, 也就是光子能量是定值的情

表 1 不同 X 射线光子能量 E 下常见单质材料的 X 射线最大穿透厚度 t_{\max}

Table 1 Maximum thickness t_{\max} for normal single substances under different X-ray energy E

(mm)

E keV	Mg	C	Si	Al	Ti	Fe	Ni	Cu	Zr	Ag	Ta	Pb	W
5	0.059	0.371	0.028	0.031	0.005	0.015	0.010	0.010	0.005	0.002	0.002	0.002	0.002
10	0.440	2.993	0.204	0.227	0.032	0.012	0.009	0.008	0.033	0.013	0.004	0.011	0.009
20	3.353	16.068	1.548	1.733	0.225	0.080	0.056	0.053	0.034	0.084	0.015	0.016	0.013
30	9.954	27.720	4.812	5.286	0.718	0.250	0.175	0.165	0.100	0.042	0.044	0.047	0.037
40	18.979	34.210	9.854	10.489	1.613	0.563	0.393	0.371	0.217	0.089	0.094	0.099	0.078
50	28.139	37.958	15.758	16.199	2.945	1.044	0.731	0.691	0.401	0.163	0.169	0.177	0.141
60	36.045	40.513	21.546	21.465	4.663	1.697	1.195	1.133	0.660	0.266	0.271	0.283	0.225
80	47.481	44.111	31.014	29.549	8.816	3.435	2.474	2.366	1.437	0.579	0.127	0.587	0.107
100	54.944	46.908	37.656	34.994	13.128	5.501	4.071	3.937	2.560	1.044	0.225	0.256	0.188
150	66.453	52.724	47.720	43.273	21.663	10.411	8.186	8.141	6.524	2.829	0.632	0.705	0.529
200	74.406	57.786	54.195	48.757	27.186	14.005	11.425	11.578	11.054	5.164	1.273	1.422	1.066

况来计算的,如果三维成像系统的光源发出的光是多色光,则射线平均能量要低于最高光子能量.此时,应该使用射线平均能量从表 1 中查询 t_{\max} .例如,对于多色光系统,最高光子能量为 150 keV,但平均光子能量为 80 keV 时,应根据 80 keV 所对应的 t_{\max} 来选择样品.

2.2 相位衬度成像

对于不均匀的样品, X 射线穿过样品时,其振幅和相位都会发生变化.这种变化可用介质的复数折射率来表示.在折射率接近于 1 时, X 射线穿过物体时的折射率 n 可由下式来表示 [54]:

$$n = 1 - \delta - i\beta \tag{4}$$

式中, β 是吸收项,与材料中的 μ 成正比; δ 为相位项,与材料中的电子密度成正比.在真空中,波长为 λ 的平面单色 X 光波沿 z 轴传播时,可记为 $\exp(i\frac{2\pi}{\lambda}z)$.在折射率为 n 的材料中, X 光波为 $\exp(i\frac{2\pi}{\lambda}nz)$.如果把物体投影到一个垂直于传播方向的平面上,反映折射率分布投影的透射函数 $T(x, y)$ 可以表示为 [55]:

$$T(x, y) = A(x, y) e^{i\varphi(x, y)} \tag{5}$$

式中,振幅

$$A(x, y) = \exp(-B(x, y)), B(x, y) = \frac{2\pi}{\lambda} \int \beta(x, y, z) dz \tag{6}$$

相位调制

$$\varphi(x, y) = \frac{2\pi}{\lambda} \int [1 - \delta(x, y, z)] dz = \varphi_0 - \frac{2\pi}{\lambda} \int \delta(x, y, z) dz \tag{7}$$

式中, φ_0 是没有物体时的相位调制.对于吸收衬度成像,先旋转样品 360° ,并等间隔采集多幅 μ 的二维投影,再根据一系列的二维投影,采用重建算法重建出 $\mu(x, y, z)$ 或者 $\beta(x, y, z)$ 的三维分布.当然,也可以用同样的方法重建出相位项 $\delta(x, y, z)$ 的三维分布,获得相位衬度图像.

X 射线穿过轻质材料时的 δ 和 β 都很小,一般为 10^{-5} — 10^{-6} 和 10^{-8} — 10^{-9} [55],也就是说对于轻质材料的敏感性,相位衬度比吸收衬度要高 2—3 个数量级 [56],具有更好的成像能力 [57].需要指出的是,这里所说的轻质材料主要指由轻质元素比如 H, C, N 和 O 等元素构成的材料 [56,58—60].目前相位衬度成像的方法主要有晶体干涉法 [61]、衍射增强法 [62]、光栅剪切法 [63] 和传播法 [57].

2.2.1 晶体干涉法 1965 年, Bonse 和 Hart[61] 研制成功第一台可以测量相位变化的 X 射线干涉仪. 1972 年, Ando 和 Hosoya[64] 利用 Bonse 发明的 X 射线晶体干涉仪, 拍下了蝴蝶骨组织的相位衬度图像, 成为 X 射线相位衬度成像的先驱. 随后, 晶体干涉法成为 X 射线相位衬度三维成像的方法之一 [65]. 如图 1a 所示, 在一块大的

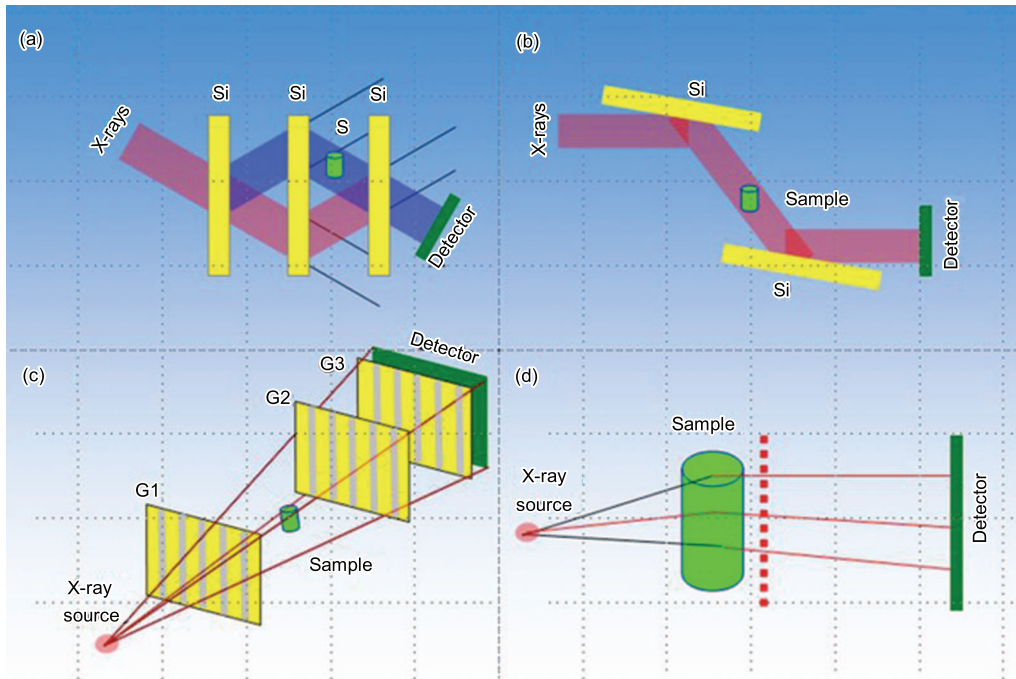


图 1 晶体干涉法、衍射增强法、光栅剪切法和传播法 4 种相位衬度成像方法的示意图

Fig.1 Schematic drawing of several phase contrast imaging methods
 (a) crystal interferometer imaging (b) diffraction enhanced imaging
 (c) grating based imaging (d) propagation based imaging

单晶 Si 上, 制出三块晶体: 第一块是分光晶体, 将入射光分成直射束和衍射束; 第二块是透射晶体, 使两束分离的相干 X 射线重合, 产生干涉条纹; 第三块是分析晶体, 把原子尺度的干涉条纹放大为宏观尺度的 X 射线干涉条纹. 因为没有样品时也有干涉条纹, 实验得到的干涉条纹并不是完全由样品本身产生的, 通过图像处理可以定量重建出样品所产生的相位调制.

2.2.2 衍射增强法 X 射线相位衬度三维成像的第 2 种方法是衍射增强法, 又称为纹影法 (schlieren method)^[62,66] 或者相位分散成像法^[67]. 1980 年, Forster 等^[62] 首次利用双晶衍射仪进行了 X 射线相位衬度成像研究, 奠定了衍射增强相位衬度方法的基础. 如图 1b 所示, 第一块晶体相当于准直器, 用来限制入射光的角度和光谱范围, 也就是将多色光转换成单色光; 第二块晶体是分析晶体, 相当于角度过滤器, 用来剔除那些发生非相干散射的 X 射线和大部分发生小角相干散射的 X 射线, 仅保留发生折射的 X 射线. 如果分析晶体的接收角偏离单色器的出射角, X 射线穿过样品时所发生的折射角偏移就会改变射线经分析晶体衍射的强度, 从而在探测器上产生比吸收衬度高的折射衬度. 由于折射率反映了样品内部的不同区域边界的信息, 折射率的梯度越大, 所得到的折射衬度越高, 图像成像质量越好^[68].

2.2.3 光栅剪切法 光栅剪切法是利用光栅剪切干涉来选择经过样品的不同角度的折射光, 以获得折射衬度^[63,69]. 如图 1c 所示, 整个系统需要 3 个相互平行的光栅. 先考虑未放置样品的情况. 第一个光栅 G1 主要是将非相干光源转变为多个相互独立的相干光源^[70], 因此, 当光源是 X 射线管时, 需要使用第一个光栅; 当光源是同步辐射光源, 不需要第一个光栅. 第二个光栅 G2 的作用是将一束光分为两束衍射光. 考虑到 X 射线的波长约为 10^{-10} m, 而光栅的间隔约为 10^{-6} m, 所以两束衍射光的

夹角会非常小; 当两束衍射光离开 G2 而传播时, 它们几乎完全重叠到一起并发生干涉^[17]. 一方面, 可以在远离 G2 光栅约 d 处放一探测器, 直接记录干涉条纹, 但是这样得到的图片空间分辨率很低; 另一方面, 可以在远离 G2 光栅约 d 处放一个分析光栅 G3, 来选择需要记录的光的角度, 并将干涉条纹位置转变为强度的变化. 放置样品后, 衍射条纹波前扭曲, 干涉条纹改变. 通过调节 G2 和 G3 的相对位置, 获得合适数量的光子数, 得到样品的折射衬度图像.

2.2.4 传播法 对于传统的微焦点 X 射线管发出的多色 X 光, X 射线在空间的自由传播中也能将对入射光的相位调制转换为振幅调制^[71]. 如图 1d 所示, 对于传播法, 不需要分析晶体和光栅, 只需要将探测器放在远离样品的位置. 如果吸收成像的样品和探测器的距离为 10 mm, 如图 1d 中红色虚线位置处, 那么样品和探测器的距离约需要 1 m. X 射线穿过样品后, 在样品中具有不同电子密度的材料的边界处发生折射, X 射线变得发散, 并与发生透射的 X 射线相干. 相位二阶导数转变为光强的二阶导数^[57,71], 从而得到样品的折射衬度像.

2.3 全息成像

对于尺寸为微米尺度的轻质材料, 为了改善吸收成像质量, Cloetens 等^[54] 发展了可以给出相位三维分布的全息成像方法. 根据 Talbot 效应, 一个周期为 a 的位相物体 (光波通过这些物体时, 只改变入射光波的位相而不改变它的振幅) 在距离样品 pa^2/λ 处不会产生任何衬度 (其中, λ 是入射波的波长, p 是整数)^[72,73]. 因此, 在一给定距离处, 只能记录部分相位信息, 无法记录全部相位信息. 为了得到完整精确的相位信息, 全息成像需要在距离样品不同位置处记录多幅图像, 如图 2 所示^[54], 转动样品选择多个角度, 每个角度均记录多幅图像. 每个角度的多幅图像对应一幅相位图. 将所有角度的相位图重建, 就可以

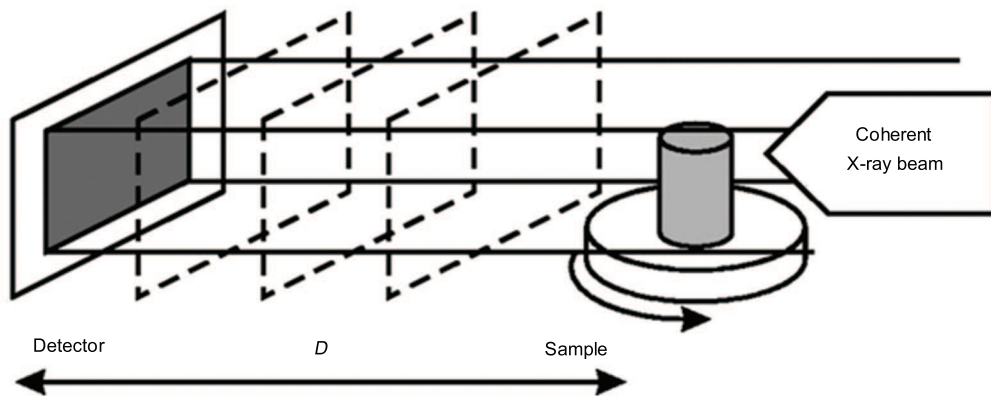


图 2 全息成像装置示意图 (在距离样品不同位置处记录多幅图像, 然后转动样品选择多个角度重复此过程)^[54]

Fig.2 Schematic drawing of the holotomography setup (Images recorded at different distances from the sample are combined to retrieve numerically the phase of the exiting wave from the sample. This is repeated for a large number of angular positions of the specimen)^[54]

得到 δ 或者电子密度的三维分布。

3 高分辨透射 X 射线三维成像的应用

3.1 孔洞

含有孔洞的材料可以粗略分为 2 类: 孔洞作为主体的高孔隙材料和孔洞作为缺陷的普通材料. 高孔隙材料如由金属、陶瓷和聚合物等制成的开孔或闭孔泡沫材料具有比重低、比强度高和内部表面积大的特点, 逐渐成为工程领域广泛使用的新型材料^[74]. 这类材料的服役性能主要取决于密度、孔的大小、孔壁厚度和孔的连通性等参数. 而这些参数在三维空间的分布和测量需要包含三维信息的图像^[75]. HRTXRT 技术可以完美地解决这些问题, 如对铝合金和钛合金泡沫材料进行三维形貌表征等^[76,77].

HRTXRT 技术优点之一是可以对样品中的孔洞进行定量分析. 本工作采用 HRTXRT 技术, 对镍基合金样品进行定量表征. 体积为 $650 \mu\text{m} \times 650 \mu\text{m} \times 1500 \mu\text{m}$ 的样品区域共有 379 个孔洞. 所有孔洞的体积分布在 $4-62766 \mu\text{m}^3$ 的范围内. 如果将单个孔洞等效为一个直径为 d_1 的等体积球, 即 $V(\text{pore})=V(\text{sphere})=\pi d_1^3/6$, 那么所有孔洞的等效直径约为 $2-49 \mu\text{m}$. 图 3a 给出了镍基高温合金里的等效直径约为 $4-49 \mu\text{m}$ 的三维孔洞形貌, 不同的颜色代表了不同孔洞的尺寸分布. 图 3b 和 c 则分别给出了一个不规则孔洞和一个球形孔的形貌. 显然, 传统分析手段如扫描电子显微镜和金相显微镜, 无法得到图 3 中的定量信息及单个孔洞的三维形貌. 为了获得样品中孔洞的更多信息, 对 $650 \mu\text{m} \times 650 \mu\text{m} \times 1500 \mu\text{m}$ 的样品区域里的所有孔洞进行了统计, 图 4 是不同尺寸的孔洞数目的统计结果. 可以看出, 孔洞的尺寸越小, 数目越多. 比如等效直径为 $2-4 \mu\text{m}$ 的孔洞约有 156 个, 等效直径为 $16-18 \mu\text{m}$ 的孔洞约有 8 个, 而等效直径超过 $30 \mu\text{m}$ 的孔洞总共有 11 个.

作为非破坏表征手段, HRTXRT 技术可帮助澄清二维成像的假象. Chaijaruwanich 等^[78] 对铸造 Al-Mg 合金做均质化热处理时, 在金相显微镜下发现合金内部平

均孔洞等效尺寸增加, 即内部的孔洞发生了经典的 Ostwald 熟化 (ripening) 效应, 同时也发现, 孔的数目也明显增加, 这似乎和熟化效应矛盾. 然而, HRTXRT 的结果却很好地解释了这个矛盾, 实际上, 由于金相显微镜和 HRTXRT 分辨率的限制, 两类孔洞难以被观察到: 一类是直径小于 $5 \mu\text{m}$ 的近似圆形孔洞; 另一类是有效尺寸小于 $5 \mu\text{m}$ 的具有复杂形状尖角外形的、呈网络结构的孔洞. 均质化处理熟化后, 第二类孔洞的尖角钝化, 有效尺寸增加, 这类孔洞就有可能被观察到. 由于金相显微镜只能观察到这种网络结构孔洞的二维截面, 同一孔洞在不同截面上表现形式不同, 有时表现为一个孔洞, 有时表现为几个孔洞, 从而易得到“孔洞数目明显增加”的假象, 而 HRTXRT 观察却有效地避免了这种假象的发生. 对于奥氏体不锈钢 AL-6XN, 传统二维表征手段能观察到孔洞的存在, 但这些孔洞是在准备样品过程中如打磨抛光时引入的. Fonda 等^[79] 采用 HRTXRT 技术不仅观察到了奥氏体不锈钢 AL-6XN 里面的脆性 σ 相的三维分布、内部连通性和形貌, 还观察到了与 σ 相处于同一平面或者相关的内部呈网络结构的孔洞. 令人吃惊的是, 每一个 σ 相至少对应一个孔洞, 有时一个 σ 相对于几个孔洞. 孔洞可为 σ 相的边界或者将 2 个或多个 σ 相相连. 事实上, AL-6XN 内部观察到的大多数孔洞来自于轧制变形时基体和析出相颗粒的应变不匹配, 还有一些可能是由于颗粒断裂或者大变形时裂纹的开裂所致.

此外, 利用 HRTXRT 能观察拉伸载荷下, 钢中孔洞的形核、长大和合并^[80] 以及铝合金中孔洞的形核和长大过程^[81,82], 因此, 可将孔洞与合金的力学性能联系起来. 比如对于单晶镍基高温合金, 为了提高高温强度, 常加入难熔金属如 W, Re, Mo 和 Ta 等元素, 其含量越多, 孔隙率越高. $1100 \text{ }^\circ\text{C}$ 蠕变时, 枝晶间已存在的孔和新产生的小孔慢慢长大, 最终成为呈多面体的孔^[83]. Weiler 等^[84] 在 AM60B 压铸镁合金的拉伸实验中发现, 孔洞体积分数决定了拉伸断裂应变和应力的的大小: 当孔隙率从 0.1% 增

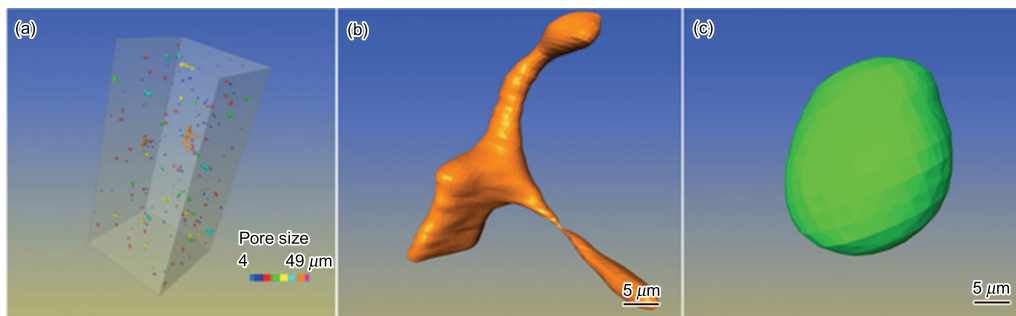


图 3 利用高分辨透射 X 射线三维成像 (HRTXRT) 技术获得的镍基合金中的孔洞的三维分布, 及不规则孔洞和球形孔的形貌

Fig.3 3D rendering of the pores in a Ni-based alloy (a), irregular pore (b) and sphere pore (c) acquired by high resolution transmission X-ray tomography (HRTXRT)

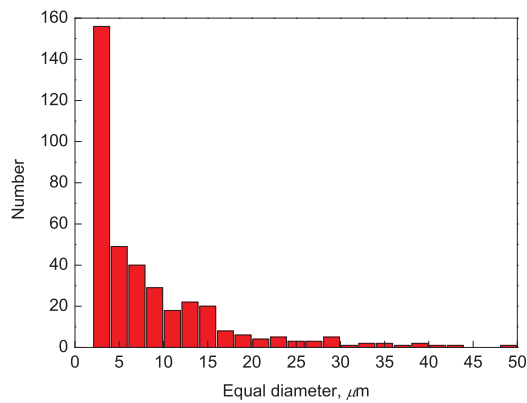


图 4 镍基合金样品中孔洞数目的统计

Fig.4 Histogram for the pore number in the Ni-based alloy

加到 1.3% 时, 屈服强度从 135 MPa 降到了 117 MPa, 断裂强度从 223 MPa 降到了 153 MPa, 断裂应变从 8.13% 降到了 2.38%。此外, 每个样品的断裂源都在最大的孔洞处。

3.2 疲劳裂纹

工程合金材料的疲劳寿命至关重要。要准确预测材料的疲劳寿命, 首先要详细了解疲劳裂纹的萌生和扩展, 以及它们与材料内部缺陷的相互作用。传统的二维技术手段不能给出裂纹萌生和扩展的三维信息。利用 HRTXRT 可以观察铝合金^[85-87]、钛合金^[88]、球墨铸铁^[89]和钢^[90]等材料中的裂纹在三维空间的演化行为。疲劳裂纹所具有的复杂三维形状影响其扩展的行为, 因此, 在疲劳样品表面所观察到的裂纹扩展并不能代表裂纹在整个块体样品里的扩展行为^[91]。采用 HRTXRT 对铝合金^[92,93]和铸铁^[94]的研究表明, 在单轴疲劳中, 从孔状缺陷处萌生裂纹的几率依赖于此缺陷到表面的距离; 如果一个缺陷到表面的距离大于缺陷本身的尺寸, 那么从这个缺陷萌生裂纹的可能性就很小。另外一个从三维成像得到的有趣信息是, 尽管几乎所有与表面发生相互作用的缺陷都会萌生一个裂纹, 但是大多数的裂纹并不扩展^[93], 这是因为尽管小裂纹在缺陷附近裂纹萌生的驱动力足够高, 但是裂纹扩展的驱动力太低所致^[93-95]。此外, 通过细致观察铸造铝合金中一个孔洞周围的小裂纹扩展, 发现疲劳寿命包含了一个将孔变为裂纹的过程。在这个过程中, 晶界可以作为障碍物延缓裂纹的扩展^[96]。

为了进一步展示 HRTXRT 在疲劳裂纹研究方面的优势, 本工作对 316L 不锈钢的单边缺口三点弯曲 (SENB) 样品进行了测试。在 SENB 测试中, 载荷位移曲线进入非线性阶段后, 当压头总位移为 0.68 mm 时停止加载, 并对该样品进行扫描电镜 (SEM) 和 HRTXRT 表征。图 5a 是该样品的 SEM 像。从图中只能观察到样品表面的裂纹信息, 即裂纹没有明显变化。图 5b 是采用 HRTXRT 技术获得的样品形貌, 而在图 5c 中, 将样品作

透明处理, 而将裂纹部分做实体化表示, 其中包括了缺口、裂纹以及裂纹扩展的信息。根据图 5c, 虽然裂纹在样品表面没有发生明显扩展, 但是若仔细观察样品内部中间区域, 在裂纹前端, 已经出现了尺度为几百微米的裂纹。这表明内部裂纹已经局部扩展。

3.3 腐蚀

作为无损检测技术, HRTXRT 技术可以用于浸在水里的样品成像, 为研究材料腐蚀行为提供理想手段。对于飞行器, 大气腐蚀是最主要的腐蚀机制, 其中比较重要的是晶间腐蚀。由于晶间腐蚀主要发生在材料内部, 三维成像是最适合的表征手段。Knight 等^[97]研究了航空用铝合金 Al-Zn-Mg-Cu (7050-T7451) 和 Al-Cu-Mg (2024-T351) 的大气腐蚀行为, 发现合金腐蚀的深度和体积都随腐蚀时间的延长而增加, 而且水滴中的含氧量越高, 腐蚀速率越快。Eckermann 等^[98]原位观察了 AlMgSi 合金在三维空间的腐蚀过程, 发现在 0.7 mol/L HCl 腐蚀液中, 晶间腐蚀占主要地位, 而在 2.5 mol/L HCl 腐蚀液中, 主要发生剥落腐蚀; 合金的表面变形层先发生晶间腐蚀, 然后发生不均匀腐蚀; 在块体样品腐蚀过程中, 金属间化合物完全溶解, 而利用传统的二维技术进行样品表征几乎不可能观察到这种现象。

元素的三维分布对合金腐蚀, 尤其是点蚀有何影响也可以采用三维成像来表征。Davenport 等^[99]研究了 Y 元素在镁合金 WE43 腐蚀中的作用, 发现在 0.1 mol/L NaCl (pH=10) 溶液中, 基体的富 Y 区域比其它区域的腐蚀速率低; 而对 WE43 合金进行加热均匀化处理后, 均匀分布的 Y 提高了合金的抗腐蚀能力, 但是仍然存在局部的均匀腐蚀和点蚀。对于不锈钢, 恒电流模式下, 只有一个点蚀源; 恒电压模式下, 同时发生多个点蚀。这些点蚀区域都呈半椭圆状^[100]。在点蚀区域的下部经常能观察到一些突起, 可能与合金轧制方向平行的 MnS 的分布有关^[100]。点蚀容易发展成应力腐蚀断裂 (SCC), 演化过程一般为点蚀形核、点蚀扩展、点蚀转变为裂纹、短裂纹扩展和长裂纹扩展。但是, 限于表征或测量手段, 点蚀到裂纹的转变过程尚不清楚。Horner 等^[101]采用 HRTXRT 对蒸气涡轮机用的 3NiCrMoV 盘钢的 SCC 研究表明, 超过 80% 的裂纹是从呈 U 状的点蚀壁上形核的, 仅有少量从点蚀的底部形核。从点蚀壁形核后的多个裂纹在点蚀区域扩展, 最终合并成一个穿透性裂纹。

此外, 腐蚀产物也可以借助 HRTXRT 来进行分析。AZ91 合金在模拟体液里浸泡后的腐蚀产物可能包含 AZ91 基体粉末、羟基磷灰石和 $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ 相。然而, 即使真的含有 $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ 相, 其体积分数也会非常少, 仅凭肉眼或者 X 射线衍射和金相显微镜难以捕捉到该相的分布。将腐蚀产物压片后, 进行 XRT 分析, 图 6a 是腐蚀产物的片状样品经三维成像后重构出的三维形貌。从图中

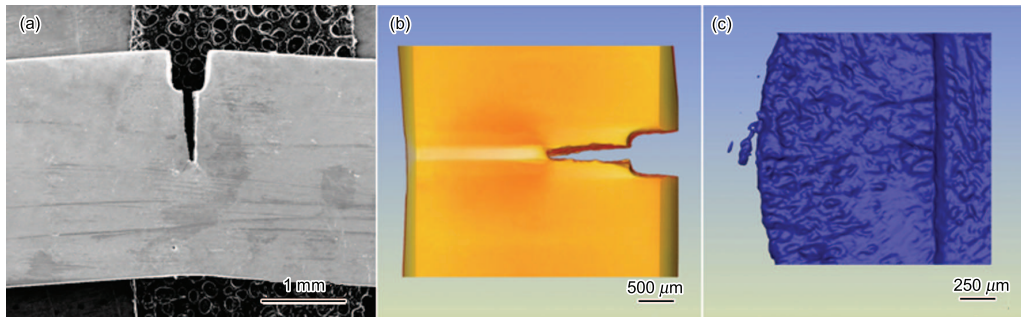


图 5 316L 不锈钢单边缺口三点弯曲样品的 SEM 像, 以及该样品局部体积和裂纹轮廓的 HRTXRT 照片

Fig.5 SEM image of 316L stainless steel sample after three point single-edge notched bend (SENB) test (a), volume renderings of local volume of the sample (b) and the crack morphology (c) acquired by HRTXRT

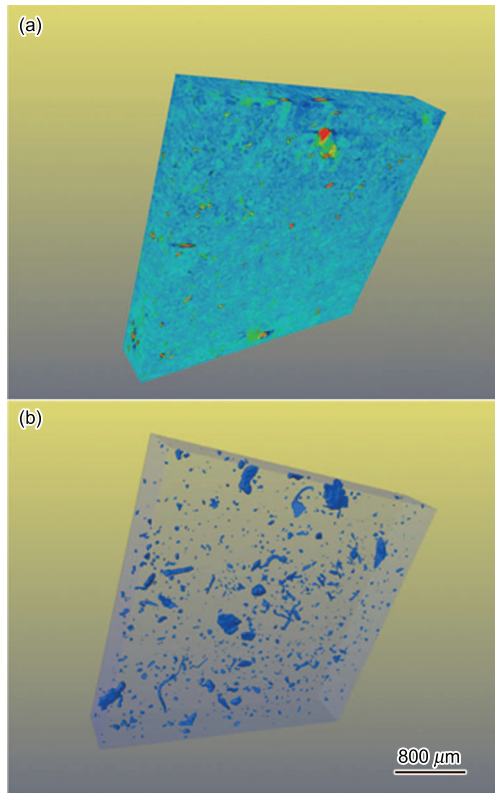


图 6 AZ91 合金腐蚀产物的片状样品的 X 射线三维成像重构图和其中红色相的三维分布图

Fig.6 Volume rendering of a plate specimen from the corrosion products of AZ91 alloy (a) and 3D distribution of the red phase shown in Fig.6a (b)

可以观察到 3 个不同的相: 蓝色的基体、呈针状的绿色相和红色相。根据颜色可知, 3 个相对 X 射线的吸收依次增强。初步判断, 红色相可能是 $Mg_{17}Al_{12}$ 相, 图 6b 给出了红色相的三维分布图。需要说明的是, 要完全确定此相确是 $Mg_{17}Al_{12}$ 相, 尚需在样品的相应位置处进行能谱分析。

3.4 复合材料的第二相

准确了解金属基复合材料第二相的空间分布信息, 对于理解变形机制非常重要。迅速发展的 XRT 技术使获得

第二相的分布图成为可能。人们不仅能对铝合金中 TiB_2 颗粒的三维分布进行成像^[33], 还能给出双辊激冷铸造 Al-12%Cu(质量分数)合金的柱状枝晶的三维形貌, 并在枝晶的三维结构基础上进行有限元模拟, 进而理解合金的流变行为^[102]。在 Al-Sn 多晶合金中, 元素 Sn 在晶界上析出, Dobrich 等^[103]利用 HRTXRT 成功得到了 Al-Sn 合金晶界的三维网络结构。在使用 XRT 对复合材料进行表征时, 常常能观察到一些独特的相结构。对于具有六方密堆积结构的 Mg-9Al 合金, 在定向凝固过程中, Wang 等^[104]发现, α -Mg 枝晶呈现几乎完美的六次对称, 一次枝晶壁的夹角约为 60° 。此外, 还观察到了枝晶间析出的 β - $Mg_{17}Al_{12}$ 共晶相。

随着 XRT 技术的发展, 以前无法使用吸收衬度成像的复合材料现在也可以得到第二相的三维形貌。广泛用于汽车车身的双相钢的力学性能与结构密切相关。双相钢的基体是铁素体, 第二相为马氏体。过去采用破坏样品的金相法来研究马氏体的分布, 无法得到准确的三维信息。由于铁素体和马氏体的 X 射线吸收系数非常接近, 采用吸收衬度三维成像无法分辨铁素体和马氏体。Landron 等^[105]采用 X 射线三维全息成像表征了马氏体相的三维分布。在金相照片中, 可以观察到典型的铁素体晶界和黑色的马氏体第二相。从 HRTXRT 重建后的一个二维切片上也可以观察到黑色的马氏体相, 但是由于铁素体晶粒和晶界的电子密度几乎没有差异, 无法观察到铁素体的晶界。在所有马氏体的三维分布中, 不同颜色用于区分相邻的马氏体。很多在二维图片上观察到的独立马氏体相, 实际上在三维空间是相互连通的一个团簇。

HRTXRT 在表征一些复合材料时具有显著优势。图 7a 是一个 C-C 复合材料样品 XRT 重建后的三维形貌。图中的颜色梯度代表了该样品中不同的吸收衬度, 红色区域对 X 射线的吸收最强, 紫色区域对 X 射线没有吸收, 即此区域是空的。根据图 7a, 可以清楚地观察到包括不同方向碳纤维在内的多个相在三维空间的形貌及分布。图 7b 是从图 7a 中单独提取出的红色相的三维分布图。其中, 不

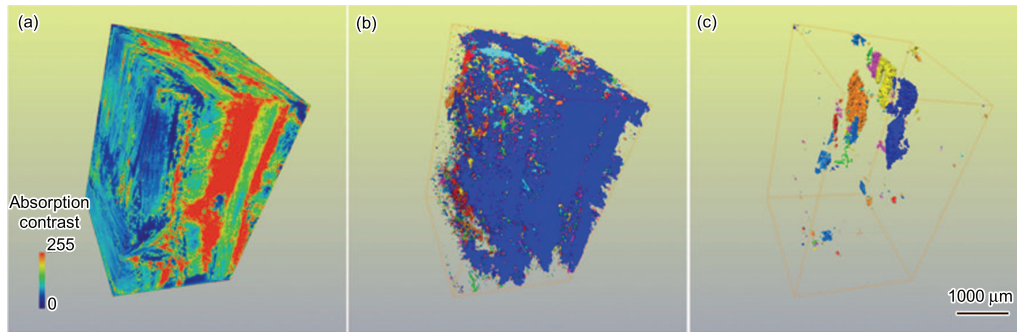


图 7 C-C 复合材料样品的 X 射线三维成像重建的三维形貌、从图 7a 中提取出的红色相的三维分布图和从图 7a 中提取出的裂纹三维分布图

Fig.7 Volume rendering of the C-C composite after reconstruction of the data obtained from X-ray tomography (a), the 3D distribution of the red phase in Fig.7a (b) and the 3D distribution of the crack in Fig.7a (c)

同颜色用以区分相邻的个体。从图 7b 中可知, 图 7a 中的红色相由一个尺寸较大的蓝色个体和许多小的个体共同组成。图 7c 是从图 7a 中单独提取出的裂纹的三维分布图。可以看到, 除了一些小裂纹之外, 还有几个大的裂纹, 比如图 7c 中上部的蓝色大裂纹、红色大裂纹和橙色大裂纹。

3.5 原位成像

研究材料各种损伤机制的传统手段是破坏样品, 采用金相手段逐层分析, 但是, 这种方式耗费大量时间, 不仅在样品磨抛过程中容易引入假象, 而且难以提供样品中损伤发生的先后顺序的信息。HRTXRT 原位表征手段克服了传统金相手段的缺点。目前, HRTXRT 研究, 包括铝合金样品的韧性断裂过程中孔洞的形核、长大和合并^[106,107], 陶瓷材料在烧结过程中孔隙率和晶粒度的变化^[49], Ti-6246 (Ti-6Al-2Sn-4Zr-6Mo) 合金疲劳加载时短疲劳裂纹的扩展^[108], SiC 颗粒增强的 6061 铝合金复合材料的早期塑性变形机制^[109] 和复合材料蠕变损伤演化机制^[110] 等。

对于金属材料的拉伸或者压缩实验, 加载过程常常伴随样品发出一些声信号。这些声信号是否与样品的损伤相关需要采用原位实验来获得更多的信息。Maire 等^[111] 采用快速 XRT 原位研究了拉伸时 AA-2124 铝合金复合材料样品断裂的过程, 发现在加载过程中, 样品声发射事件的数目与从图片分析中探测到的裂纹数目相一致, 并且声信号能量与和加载轴相垂直面内的新裂纹的表面积成正比。对于铝合金的原位研究^[112] 还表明, 拉伸时裂纹的形核率与颗粒在三维空间的不均匀分布有关, 在低应变下, 形成团簇的颗粒比单个独立颗粒更易发生裂纹形核; 大颗粒和具有高径比的颗粒形核率也相对较高。

除了常温的原位实验, 在高温下也可以进行合金的原位研究。在合金凝固过程中, 枝晶的粗化机制十分复杂。Al-10%Cu(质量分数) 合金凝固过程中枝晶结构的演化, 除了固相生长外, 还可能至少有两种粗化机制: 一种是小的二次枝晶壁熔化, 促进周围大枝晶壁的生长; 另一种

是在固相体积分数较高时, 相邻二次枝晶壁的合并^[113]。凝固过程中利用 HRTXRT 可从块体样品上提取出二维切片^[113]。从凝固时间为 163 和 275 s 的切片中可以观察到小的二次枝晶壁的熔化, 而从凝固时间为 275 和 935 s 的切片中则观察到了相邻二次枝晶壁的合并。

4 高分辨透射 X 射线三维成像的分类

目前, 按照使用光源的不同, 透射 XRT 主要有两种: 一种是同步辐射光源 XRT; 另一种是基于微焦点 X 射线管的实验室 XRT。

4.1 同步辐射三维成像

同步辐射光是速度接近光速的带电粒子在磁场中偏转时, 沿偏转轨道切线方向发射的连续谱的电磁波, 其频谱宽且连续可调(具有从远红外到 X 射线范围内的连续光谱)、高亮度(比普通 X 射线管发出的光亮 10^6 到 10^{12} 倍^[49])、高准直度(平行光, 影像无放大效应)和准相干等独特的性能。因亮度高, 图像曝光时间短, 不同实验装置的一次数据采集时间可从 10^{-3} h(快速三维成像)到 1 h^[114]。由于同步辐射 X 射线成像站使用平行单色光, 所获得的图像不存在射线束硬化(指多色 X 射线穿过样品时, 因能量较低的光子优先被完全吸收所引起的平均 X 射线能量沿入射路径增加的现象)引起的样品中同一微观结构在不同位置处具有不同衬度的假象。图 8 为欧洲同步辐射光源 ID19 光束线站的实验装置示意图^[109]。可以看到, 光源和成像装置的距离为 145 m, 为在不同位置处记录图像提供了足够的空间距离。因而, 除了基本的吸收衬度成像外, 还能进行相位衬度成像和全息成像^[1]。此外, 样品和探测器之间的距离最高可达 5 m, 中间可放置高温炉、万能力学试验机和衍射分析仪等装置来拓展应用范围^[104]。

表 2 列出了包括日本 Spring-8, 美国阿贡国家实验室的先进光源 APS 和法国的欧洲同步辐射光源 ESRF 在内的世界三大高能(电子束能量超过 5 GeV)同步辐射装置以及国内同步辐射光源的 X 射线成像线站。目前, 国外各同步辐射光源的 X 射线成像站主要集中在以微米或者

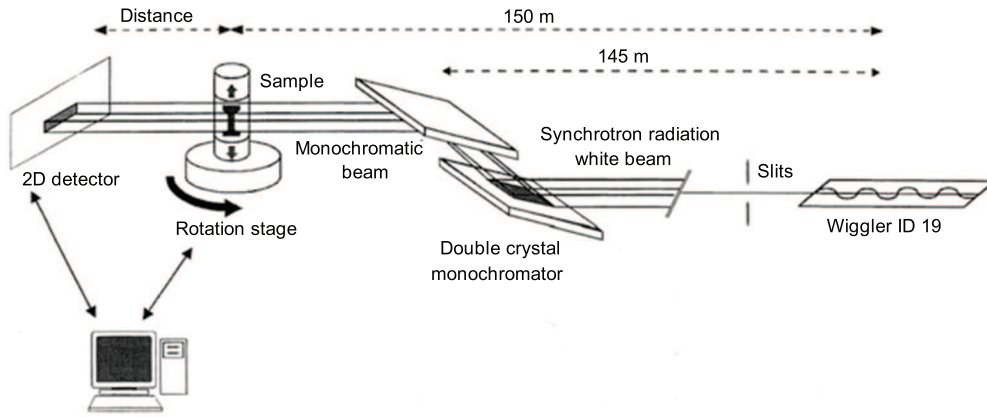


图 8 欧洲同步辐射光源的 ID19 光束线站实验装置示意图^[109]

Fig.8 Schematic drawing of the experimental set-up used at ESRF on the ID19 beam line^[109]

表 2 国外主要第三代高性能同步辐射光源和国内同步辐射光源的 X 射线成像线站

Table 2 X-ray tomography beamlines in the synchrotron facilities in China and the major 3rd generation synchrotron light sources in other countries

Country	Location	Facility	Beamline	Energy, keV
France	Grenoble	European Synchrotron Radiation Facility	ID19	7—250
America	Argonne	Advanced Photon Source	2-BM	5—30
Japan	Hyogo	Super Photon Ring-8	BL47XU	5.2—37.7
China	Shanghai	Shanghai Synchrotron Radiation Facility	BL13W1	8.0—72.5
China	Hefei	National Synchrotron Radiation Laboratory	U7A	7—11
China	Beijing	Beijing Synchrotron Radiation Facility	4W1A	5—20

亚微米量级,甚至更高空间分辨率对材料科学、生命医学、化学、环境科学和考古学等学科的一些重要问题的研究.国内的相关单位也利用 X 射线成像站开展了很多工作,比如北京同步辐射光源 X 射线成像线站进行了 X 射线相位衬度成像方法的实验研究,提出了普遍的衍射增强成像方程,并基于衍射增强成像方法,提出了 2 个折射率导数、折射率梯度和折射率的重建算法公式^[115—118];中国科技大学国家同步辐射实验室在纳米材料结构及生长机理、洁净能源生物质降解机理、芯片分析、蛋白质与细胞的相互作用以及古生物化石等方向正在开展工作;而上海光源则致力于生物软组织及低 Z 材料的低剂量和高分辨三维成像研究.需要指出的是,利用同步辐射光源亮度高、成像速度快的特点,更易于开展对动态过程的研究.

4.2 实验室三维成像

虽与同步辐射光源高速成像,优越的信噪比无法相比,但人们也常常低估了实验室 HRTXRT 的潜力^[119].按两者的特点,如果实现 2 种技术高低搭配,实验室 HRTXRT 的结果可作为同步辐射光源的高端应用实验设计、样品筛选以及先期的辅助技术准备的参考.

实验室 HRTXRT 所使用的光源是微焦点 X 射线管,发出的 X 射线是多色光.随着纳米焦点 X 射线管和高分辨平板探测器 (2048×2048×2048) 的出现,毫米量

级的金属材料样品成像的体元尺寸最小可达 0.4 μm,空间分辨率约为 1 μm^[120].曼彻斯特大学拥有 7 台实验室 X 射线成像设备,可以满足各种材料从亚微米到毫米量级的多尺度分辨要求.近几年来,实验室 HRTXRT 在传统的吸收衬度成像^[121,122]的基础上,还针对小动物和软组织^[123,124]、碳纤维、含有多个对 X 射线吸收系数相近的相的复合材料以及聚合物^[125,126]等实现了传播相位衬度成像^[127,128].此外,球墨铸铁疲劳裂纹扩展的原位观察也可在实验室 HRTXRT 设备上完成^[129].

目前,国内实验室微焦点 XRT 多集中于生物样品,也有少量针对聚合物^[130],针对金属材料的三维成像的研究刚刚起步.金属材料在制造和机加工过程中会不可避免地引入一些缺陷,如夹杂、气孔和缩孔等.这些缺陷在载荷下对材料力学性能的影响是不可忽略的.中国科学院金属研究所的 Gao 等^[131]发现,ZrTiCoAl 块体金属玻璃在拉伸载荷下的断裂强度分布在一个非常广的范围内,从 310 MPa 到 1690 MPa,平均拉伸强度仅为 1090 MPa.对拉伸强度进行 Weibull 统计分析,其三参数 Weibull 模量 m_{3p1} 和门槛应力值 σ_{μ} 仅分别为 1.8 和 250 MPa.这表明仅关注平均拉伸强度是不够的,更应关注 σ_{μ} .而门槛应力值与材料里的缺陷信息密切相关.然而,对缺陷作用的认识还远远不够,比如样品性能对缺陷敏感的尺寸范围

多大, 多大的缺陷会对样品力学性能造成影响; 缺陷在样品内的分布是否影响力学性能; 尺寸相同, 但形貌不同的缺陷在材料加载过程中行为是否相同等. 传统的二维表征手段, 如扫描电镜只能给出样品断裂表面的缺陷照片, 无法给出整个样品体积内的缺陷信息, 无法将缺陷与材料的力学性能联系起来. HRTXRT 在缺陷表征方面具有独特优势: 可以对整个样品体积内的缺陷进行无损成像, 有利于辨别缺陷在材料失效中的作用, 进而帮助分析失效机理, 以优化制造过程和改善材料质量.

2012 年, 中国科学院金属研究所沈阳材料科学国家(联合)实验室从 Xradia 公司购入 VersaXRM-500 透射 XRT 系统. 图 9 为该系统的光路示意图. 如图 9 所示, 该系统可实现几何放大和光学放大的二级放大成像. 该系统的空间分辨率 R 可用下式来计算:

$$R = \frac{\sqrt{P_D^2 + \left(S \frac{d_{sd}}{d_{ss}}\right)^2}}{M_g M_o} \quad (8)$$

式中: P_D 是探测器的像素尺寸; S 是 X 射线源焦点尺寸; d_{sd} 是样品与探测器的距离; d_{ss} 是样品与 X 射线源的距离; M_g 是几何放大倍数, 其数值为 $(d_{sd} + d_{ss})/d_{ss}$; M_o 是光学放大倍数. 根据式 (8), P_D 越小, S 越小, 放大倍数越高, 空间分辨率越高. 对于只有几何放大的传统 XRT 设备, 在射线源和探测器一定的情况下, 空间分辨率主要取决于 d_{ss} . 然而, 样品尺寸较大时, d_{ss} 也较大, 无法获得高分辨率的图像. 在几何放大的基础上实施光学放大, 就可以实现大尺寸样品的高分辨成像. 需要说明的是, 分辨率越高, 成像视场越小. 对于 VersaXRM-500 透射 XRT 系统, 视场的尺寸约为分辨率的 1000 倍. 比如, 视场为 1 mm 时, 分辨率约为 $1 \mu\text{m}$. 目前, 利用该系统, 以高温合金、钢、钛合金、铝合金、镁合金、陶瓷和碳材料等为对象开展了大量工作. 本工作中的图 3—7 的 HRTXRT 测试都是在 VersaXRM-500 透射 XRT 系统上完成的.

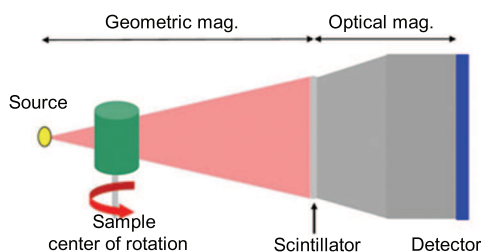


图 9 中国科学院金属研究所沈阳材料科学国家(联合)实验室 X 射线三维成像光路示意图

Fig.9 Schematic drawing of the Lab-X-ray tomography experimental set-up used in Shenyang National Laboratory for Materials Science, Institute of Metal Research, Chinese Academy of Sciences

5 结论和展望

2012 年 7 月, 第一届三维材料科学国际会议在宾夕法尼亚召开^[132], X 射线三维成像与材料科学的结合是其中一个重要的讨论方向. 这表明越来越多的人开始探索材料三维微观结构信息与性能的关系. 除了光学显微镜和电子显微镜外, X 射线三维成像成为探索材料微观世界的又一个重要的技术手段.

作为一种无损测试技术, 与传统的无损检测手段相比, HRTXRT 有其自己的特点. 传统的四大无损检测手段包括超声、射线、磁粉和渗透. 一般来说, 磁粉和渗透适用于表面和近表面的无损检测, 超声法适用于厚样品内部缺陷无损检验, 射线法适用于薄样品内部缺陷无损检验. 传统射线法的空间分辨率一般在毫米量级. 而 HRTXRT 的分辨率为微米量级甚至亚微米量级, 适合材料科学基础研究所使用的标准样品以及一些面向工程应用的小试样的测试. 除了基本的无损探伤, 即探测缺陷的功能外, HRTXRT 可用来研究传统金属材料的小裂纹的形核和扩展、腐蚀损伤、复合材料第二相的分布和在载荷作用下的变化、陶瓷材料孔隙率的变化、评估 3D 打印材料结构设计的合理性、研究构筑多尺度材料的断裂过程、获取进行计算机模拟时所需输入的材料三维信息以及对小型精密样品进行内部尺寸检验等.

预计透射 X 射线三维成像在材料科学领域的未来研究方向主要集中在以下几点: 第一, 研制更高分辨率的系统, 如果实验室 XRT 的分辨率能够达到几个纳米的量级, 那么除了传统的具有微米尺度内部结构的材料外, 具有纳米尺度微结构的材料的三维成像就会成为现实, 这些都依赖于高质量的 X 射线光学元件和探测器的发展; 第二, 与其它表征手段相结合, 由于透射三维成像对材料内部结构的认识也有其局限性, 比如无法给出晶粒形状、取向和成分等信息, 如果与电子衍射系统、能谱等手段联合使用, 就会得到更好的结果. 最近, Ludwig 等^[133]结合同步辐射光源透射 XRT 和 X 射线衍射成像, 获得了氧化铝多晶材料内晶粒的三维形状和取向; 第三, 拓展更广的应用范围, 如何在加载、高温以及改变气氛等条件下, 原位观察材料结构的变化是一个较新的领域. 可以预见, X 射线三维成像将使人们更完整和更准确地理解材料微观结构和性能的关系, 促进人们对材料的认识达到一个新的高度, 有助于更多具有优异性能的新材料的开发研制.

感谢中国科学院金属研究所高温合金研究部的李相伟、材料疲劳与断裂研究部的熊亮以及专用材料与器件研究部的刘辰和汤素芳博士提供 XRT 样品.

参考文献

- [1] Salvo L, Cloetens P, Maire E, Zabler S, Blandin J J, Buffiere J Y, Ludwig W, Boller E, Bellet D, Jossier C. *Nucl Instrum Meth*, 2003; 200B: 273

- [2] Mobus G, Inkson B J. *Mater Today*, 2007; 10: 18
- [3] Epting W K, Gelb J, Litster S. *Adv Funct Mater*, 2012; 22: 555
- [4] Salvo L, Suery M, Marmottant A, Limodin N, Bernard D. *C R Phys*, 2010; 11: 641
- [5] Withers P J. *Mater Today*, 2007; 10: 26
- [6] Stock S R. *Int Mater Rev*, 1999; 44: 141
- [7] Radon J. *Ber Verh Sachs Ak Mn*, 1917; 69: 262
- [8] Cormack A M. *J Appl Phys*, 1963; 34: 2722
- [9] Houndfield G N. *Br J Radiol*, 1973; 46: 1016
- [10] Kalender W A. *Phys Med Biol*, 2006; 51: R29
- [11] Copley D C, Eberhard J W, Mohr G A. *J Miner Met Mater Soc*, 1994; 46: 14
- [12] Elliott J C, Dover S D. *J Microsc-Oxford*, 1982; 126: 211
- [13] Flannery B P, Deckman H W, Roberge W G, Damico K L. *Science*, 1987; 237: 1439
- [14] Haddad W S, McNulty I, Trebes J E, Anderson E H, Levesque R A, Yang L. *Science*, 1994; 266: 1213
- [15] Guvenilir A, Breunig T M, Kinney J H, Stock S R. *Acta Mater*, 1997; 45: 1977
- [16] Nielsen S F, Poulsen H F, Beckmann F, Thorning C, Wert J A. *Acta Mater*, 2003; 51: 2407
- [17] Stock S R. *Int Mater Rev*, 2008; 53: 129
- [18] Maire E, Buffiere J Y, Salvo L, Blandin J J, Ludwig W, Letang J M. *Adv Eng Mater*, 2001; 3: 539
- [19] Banhart J, Borbely A, Dzieciol K, Garcia-Moreno F, Manke I, Kardjilov N, Kaysser-Pyzalla A R, Strobl M, Treimer W. *Int J Mater Res*, 2010; 101: 1069
- [20] Cazaux J, Erre D, Mouze D, Patat J M, Rondot S, Sasov A, Trebbia P, Zolfaghari A. *J Phys IV*, 1993; 3: 2099
- [21] Mayo S C, Stevenson A W, Wilkins S W. *Materials*, 2012; 5: 937
- [22] Abbe S, Honorat P, Vincent M N. In: Nair C G K, Raj B, Nurthy C R L, Jayakumar T eds., *Proc 14th world Conf on Non-Destruct Testing*, Rotterdam: A. A. Balkema, 1996: 1397
- [23] Allen A J. *J Am Ceram Soc*, 2005; 88: 1367
- [24] Andersson L, Jones A C, Knackstedt M A, Bergstrom L. *J Eur Ceram Soc*, 2010; 30: 2547
- [25] Appoloni C R, Macedo A, Fernandes C P, Philippi P C. *X-Ray Spectrom*, 2002; 31: 124
- [26] Atwood R C, Jones J R, Lee P D, Hench L L. *Scr Mater*, 2004; 51: 1029
- [27] Alemdar A, Zhang H, Sain M, Cescutti G, Mussig J. *Adv Eng Mater*, 2008; 10: 126
- [28] Aldica G V, Nita P, Tiseanu I, Craciunescu T, Badica P. *J Optoelectron Adv Mater*, 2008; 10: 929
- [29] Asghar Z, Requena G, Degischer H P, Cloetens P. *Acta Mater*, 2009; 57: 4125
- [30] Dupuy L, Blandin J J. *Acta Mater*, 2002; 50: 3251
- [31] Fabregue D, Deschamps A, Suery M, Proudhon H. *Scr Mater*, 2008; 59: 324
- [32] Gonazalez M, Dominguez G, Bathias C. *J Compos Technol Res*, 2000; 22: 45
- [33] Hamilton R W, Forster M F, Dashwood R J, Lee P D. *Scr Mater*, 2002; 46: 25
- [34] Balla V K, Bose S, Bandyopadhyay A. *Philos Mag*, 2010; 90: 3081
- [35] Benouali A H, Froyen L, Delerue J F, Wevers M. *Mater Sci Technol*, 2002; 18: 489
- [36] Caty O, Buffiere J Y, Maire E, Adrien J. *Adv Eng Mater*, 2011; 13: 194
- [37] Lorthios J, Nguyen F, Gourgues A F, Morgeneyer T F, Cugy P. *Scr Mater*, 2010; 63: 1220
- [38] Puncturebutr C, Lee P D, Hamilton R W, Phillion A B. *JOM*, 2012; 64: 89
- [39] Sinclair R, Preuss M, Maire E, Buffiere J Y, Bowen P, Withers P J. *Acta Mater*, 2004; 52: 1423
- [40] Van Bael S, Kerckhofs G, Moesen M, Pyka G, Schrooten J, Kruth J P. *Mater Sci Eng*, 2011; A528: 7423
- [41] Wang S G, Sun M Y, Song Z Q, Xu J. *Intermetallics*, 2012; 29: 123
- [42] Adrien J, Maire E, Gimenez N, Sauvant-Moynot V. *Acta Mater*, 2007; 55: 1667
- [43] Aroush D R B, Maire E, Gauthier C, Youssef S, Cloetens P, Wagner H D. *Compos Sci Technol*, 2006; 66: 1348
- [44] Babout L, Maire E, Buffiere J Y, Fougères R. *Acta Mater*, 2001; 49: 2055
- [45] Babout L, Marrow T J, Engelberg D, Withers P J. *Mater Sci Technol*, 2006; 22: 1068
- [46] Bareggi A, Maire E, Bouaziz O, Di Michiel M. *Int J Fracture*, 2012; 174: 217
- [47] Bayraktar E, Garza M A G, Bathias C. *J Mater Process Technol*, 2008; 200: 133
- [48] Berek H, Ballaschk U, Aneziris C G. *Adv Eng Mater*, 2011; 13: 1101
- [49] Bernard D, Gendron D, Heintz J M, Bordere S, Etourneau J. *Acta Mater*, 2005; 53: 121
- [50] Terzi S, Salvo L, Suery M, Dahle A K, Boller E. *Acta Mater*, 2010; 58: 20
- [51] Long Y, Fessler J A, Balter J M. *IEEE Trans Med Imaging*, 2010; 29: 1839
- [52] Attix F H. *Radiation Dosimetry*. 2 Ed., Salt Lake City: Academic Press, 1968: 405
- [53] <http://www.nist.gov/pml/data/xraycoef/index.cfm>
- [54] Cloetens P, Ludwig W, Baruchel J, Van Dyck D, Van Landuyt J, Guigay J P, Schlenker M. *Appl Phys Lett*, 1999; 75: 2912
- [55] Cloetens P, Ludwig W, Guigay J P, Baruchel J, Schlenker M, Van Dyck D. In: Baruchel J, Buffiere J Y, Maire E, Merle P, Peix G eds., *X-Ray Tomography in Material Science*. Paris: Hermes Science Publications, 2000: 29
- [56] Beckmann F, Bonse U, Busch F, Gunnewig O. *J Comput Assisted Tomography*, 1997; 21: 539
- [57] Snigirev A, Snigireva I, Kohn V, Kuznetsov S, Schelokov I. *Rev Sci Instrum*, 1995; 66: 5486
- [58] Momose A, Fukuda J. *Med Phys*, 1995; 22: 375
- [59] Takeda T, Momose A, Itai Y, Wu J, Hirano K. *Acad Radiol*, 1995; 2: 799
- [60] Momose A, Takeda T, Itai Y, Hirano K. *Nat Med*, 1996; 2: 473
- [61] Bonse U, Hart M. *Appl Phys Lett*, 1965; 6: 155
- [62] Forster E, Goetz K, Zaumseil P. *Kristall Und Technik*, 1980; 15: 937
- [63] Momose A, Kawamoto S, Koyama I, Hamaishi Y, Takai K, Suzuki Y. *Jpn J Appl Phys*, 2003; 42: L866

- [64] Ando M, Hosoya S. *An Attempt at X-Ray Phase-Contrast Microscopy*. Tokyo: University of Tokyo Press, 1972: 63
- [65] Momose A. *Opt Express*, 2003; 11: 2303
- [66] Cloetens P, Barrett R, Baruchel J, Guigay J P, Schlenker M. *J Phys*, 1996; 29D: 133
- [67] Ingal V N, Beliaevskaya E A. *J Phys*, 1995; 28D: 2314
- [68] Dilmanian F A, Zhong Z, Ren B, Wu X Y, Chapman L D, Orion I, Thomlinson W C. *Phys Med Biol*, 2000; 45: 933
- [69] David C, Nohammer B, Solak H H, Ziegler E. *Appl Phys Lett*, 2002; 81: 3287
- [70] Pfeiffer F, Weitkamp T, Bunk O, David C. *Nat Phys*, 2006; 2: 258
- [71] Wilkins S W, Gureyev T E, Gao D, Pogany A, Stevenson A W. *Nature*, 1996; 384: 335
- [72] Cloetens P, Guigay J P, DeMartino C, Baruchel J, Schlenker M. *Opt Lett*, 1997; 22: 1059
- [73] Talbot H F. *Philos Mag*, 1836; 9: 401
- [74] Gibson L J. *Annu Rev Mater Sci*, 2000; 30: 191
- [75] Maire E. *Annu Rev Mater Sci*, 2012; 42: 163
- [76] Elmoutaouakkil A, Salvo L, Maire E, Peix G. *Adv Eng Mater*, 2002; 4: 803
- [77] Fife J L, Li J C, Dunand D C, Voorhees P W. *J Mater Res*, 2009; 24: 117
- [78] Chaijarwanich A, Lee P D, Dashwood R J, Youssef Y M, Nagaumi H. *Acta Mater*, 2007; 55: 285
- [79] Fonda R W, Lauridsen E M, Ludwig W, Tafforeau P, Spanos G. *Metall Mater Trans*, 2007; 38A: 2721
- [80] Bouchard P O, Bourgeon L, Lachapele H, Maire E, Verdu C, Forestier R, Loge R E. *Mater Sci Eng*, 2008; A496: 223
- [81] Lashkari O, Yao L, Cockcroft S, Maijer D. *Metall Mater Trans*, 2009; 40A: 991
- [82] Youssef Y M, Chaijarwanich A, Hamilton R W, Nagaumi H, Dashwood R J, Lee P D. *Mater Sci Technol*, 2006; 22: 1087
- [83] Link T, Zabler S, Epishin A, Haibel A, Bansal A, Thibault X. *Mater Sci Eng*, 2006; A425: 47
- [84] Weiler J P, Wood J T, Klassen R, Maire E, Berkmortel R, Wang G. *Mater Sci Eng*, 2005; A395: 315
- [85] Khan S, Wilde F, Beckmann F, Mosler J. *Int J Fatigue*, 2012; 38: 92
- [86] Zhang H, Toda H, Qu P C, Sakaguchi Y, Kobayashi M, Uesugi K, Suzuki Y. *Acta Mater*, 2009; 57: 3287
- [87] Li P, Lee P D, Maijer D M, Lindley T C. *Acta Mater*, 2009; 57: 3539
- [88] Hung Y C, Bennett J A, Garcia-Pastor F A, Di Michiel M, Buffiere J Y, Doel T J A, Bowen P, Withers P J. *Acta Mater*, 2009; 57: 590
- [89] Verdu C, Adrien J, Buffiere J Y. *Mater Sci Eng*, 2008; A483-484: 402
- [90] Xue Y, Pascu A, Horstemeyer M F, Wang L, Wang P T. *Acta Mater*, 2010; 58: 4029
- [91] Buffiere J Y, Ferrie E, Proudhon H, Ludwig W. *Mater Sci Technol*, 2006; 22: 1019
- [92] Ludwig W, Buffiere J Y, Savelli S, Cloetens P. *Acta Mater*, 2003; 51: 585
- [93] Buffiere J Y, Savelli S, Jouneau P H, Maire E, Fougères R. *Mater Sci Eng*, 2001; A316: 115
- [94] Marrow T J, Buffiere J Y, Withers P J, Johnson G, Engelberg D. *Int J Fatigue*, 2004; 26: 717
- [95] Clement P, Angeli J P, Pineau A. *Fatigue Frat Eng Mater Struct*, 1984; 7: 251
- [96] Ferrie E, Buffiere J Y, Ludwig W. *Int J Fatigue*, 2005; 27: 1215
- [97] Knight S P, Salazaras M, Trueman A R. *Corros Sci*, 2011; 53: 727
- [98] Eckermann F, Suter T, Uggowitz P J, Afseth A, Davenport A J, Connolly B J, Larsen M H, De Carlo F, Schmutz P. *Corros Sci*, 2008; 50: 3455
- [99] Davenport A J, Padovani C, Connolly B J, Stevens N P C, Beale T A W, Groso A, Stampanoni M. *Electrochem Solid State Lett*, 2007; 10: C5
- [100] Ghahari S M, Davenport A J, Rayment T, Suter T, Tinnes J P, Padovani C, Hammons J A, Stampanoni M, Marone F, Mokso R. *Corros Sci*, 2011; 53: 2684
- [101] Horner D A, Connolly B J, Zhou S, Crocker L, Turnbull A. *Corros Sci*, 2011; 53: 3466
- [102] Fuloria D, Lee P D, Bernard D. *Mater Sci Eng*, 2008; A494: 3
- [103] Dobrich K M, Rau C, Krill C E. *Metall Mater Trans*, 2004; 35A: 1953
- [104] Wang M Y, Williams J J, Jiang L, De Carlo F, Jing T, Chawla N. *Scr Mater*, 2011; 65: 855
- [105] Landron C, Maire E, Adrien J, Suhonen H, Cloetens P, Bouaziz O. *Scr Mater*, 2012; 66: 1077
- [106] Qian L, Toda H, Uesugi K, Kobayashi T, Ohgaki T, Kobayashi M. *Appl Phys Lett*, 2005; 87: 241907
- [107] Scheck C, Zupan M. *Scr Mater*, 2011; 65: 1041
- [108] Biroasca S, Buffiere J Y, Garcia-Pastor F A, Karadge M, Babout L, Preuss M. *Acta Mater*, 2009; 57: 5834
- [109] Buffiere J Y, Maire E, Cloetens P, Lormand G, Fougères R. *Acta Mater*, 1999; 47: 1613
- [110] Beckmann F, Grupp R, Haibel A, Huppmann M, Noethe M, Pyzalla A, Reimers W, Schreyer A, Zettler R. *Adv Eng Mater*, 2007; 9: 939
- [111] Maire E, Carmona V, Courbon J, Ludwig W. *Acta Mater*, 2007; 55: 6806
- [112] Gammage J J, Wilkinson D S, Embury J D, Maire E. *Philos Mag*, 2005; 85: 3191
- [113] Limodin N, Salvo L, Boller E, Suery M, Felberbaum M, Gailliege S, Madi K. *Acta Mater*, 2009; 57: 2300
- [114] Baruchel J, Buffiere J Y, Cloetens P, Di Michiel M, Ferrie E, Ludwig W, Maire E, Salvo L. *Scr Mater*, 2006; 55: 41
- [115] Zhu P P, Wang J Y, Yuan Q X, Huang W X, Shu H, Gao B, Hu T D, Wu Z Y. *Appl Phys Lett*, 2005; 87: 264101
- [116] Wang J Y, Zhu P P, Yuan Q X, Huang W X, Shu H, Chen B, Hu T D, Wu Z Y. *Phys Med Biol*, 2006; 51: 3391
- [117] Huang Z F, Kang K J, Li Z, Zhu P P, Yuan Q X, Huang W X, Wang J Y, Zhang D, Yu A M. *Appl Phys Lett*, 2006; 89: 041124
- [118] Zhu P P, Yuan Q X, Huang W X, Wang J Y, Shu H, Chen B, Liu Y J, Li E R, Wu Z Y. *J Phys*, 2006; 39D: 4142
- [119] Egbert A, Brunke O. In: Medvids As ed., *Int Academia 2010: Global Research and Education*, Zurich: Trans Tech Publications, 2011: 48
- [120] Kastner J, Harrer B, Degischer H P. *Mater Charact*, 2011; 62: 99

- [121] Connolly B J, Horner D A, Fox S J, Davenport A J, Padovani C, Zhou S, Turnbull A, Preuss M, Stevens N P, Marrow T J, Buffiere J Y, Boller E, Groso A, Stampanoni M. *Mater Sci Technol*, 2006; 22: 1076
- [122] Gebert J M, Wanner A, Piat R, Guichard M, Rieck S, Paluszynski B, Bohlke T. *Mech Adv Mater Struct*, 2008; 15: 467
- [123] Jakubek J, Granja C, Dammer J, Hanus R, Holy T, Pospisil S, Tykva R, Uher J, Vykysal Z. *Nucl Instrum Meth*, 2007; 571A: 69
- [124] Engelhardt M, Baumann J, Schuster M, Kottler C, Pfeiffer F, Bunk O, David C. *Appl Phys Lett*, 2007; 90: 224101
- [125] Kashyap Y S, Yadav P S, Roy T, Sarkar P S, Shukla M, Sinha A. *Appl Radiat Isotopes*, 2008; 66: 1083
- [126] Kastner J, Plank B, Requena G. *Mater Charact*, 2012; 64: 79
- [127] Ignatyev K, Munro P R T, Speller R D, Olivo A. In: McNulty I, Eyberger C, Lai B eds., *10th Int Conf on X-Ray Microscopy*, New York: Amer Inst Physics, 2011: 254
- [128] Mayo S C, Davis T J, Gureyev T E, Miller P R, Paganin D, Pogany A, Stevenson A W, Wilkins S W. *Opt Express*, 2003; 11: 2289
- [129] Limodin N, Rethore J, Buffiere J Y, Gravouil A, Hild F, Roux S. *Acta Mater*, 2009; 57: 4090
- [130] Gao D Z, Ma X J, Jia P, Ye C G. *High Power Laser Part Beams*, 2010; 22: 2331
(高党忠, 马小军, 贾鹏, 叶成钢. 强激光与离子束, 2010; 22: 2331)
- [131] Gao H L, Shen Y, Xu J. *J Mater Res*, 2011; 26: 2087
- [132] <http://www.tms.org/Meetings/Specialty/3D2012/home.aspx>
- [133] Ludwig W, King A, Reischig P, Herbig M, Lauridsen E M, Schmidt S, Proudhon H, Forest S, Cloetens P, du Roscoat S R, Buffiere J Y, Marrow T J, Poulsen H F. *Mater Sci Eng*, 2009; A524: 69

(责任编辑: 肖素红)