

М. В. Пугач<sup>1,2</sup>, В. В. Бурдін<sup>3</sup>, М. Кемпбел<sup>4</sup>, О. С. Ковальчук<sup>1</sup>, К. Ллопарт<sup>4</sup>,  
 М. В. Мінаков<sup>3</sup>, В. М. Міліція<sup>1</sup>, О. Ю. Охріменко<sup>1</sup>, Ю. М. Подрезов<sup>3</sup>, С. Поспішіл<sup>5</sup>,  
 В. М. Пугач<sup>1</sup>, Д. І. Сторожик<sup>1</sup>, Л. Тлустос<sup>4</sup>, С. О. Фірстов<sup>3</sup>, А. В. Чаус<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Інститут ядерних досліджень НАН України, Київ

<sup>2</sup> Київський національний університет імені Тараса Шевченка, Київ

<sup>3</sup> Інститут проблем матеріалознавства НАН України, Київ

<sup>4</sup> ЦЕРН, Женева, Швейцарія

<sup>5</sup> Інститут експериментальної та прикладної фізики, Прага, Чехія

## ВИКОРИСТАННЯ МІКРОПІКСЕЛЬНОГО ДЕТЕКТОРА TimePix ДЛЯ СПОСТЕРЕЖЕННЯ ДИНАМІКИ ФАЗОВИХ ПЕРЕХОДІВ У МЕТАЛАХ

Наведено результати дослідження можливості використання позиційно-чутливого мікропксельного детектора TimePix для вимірювання та відображення в реальному часі динаміки фазових перетворень у металах та сплавах при швидкісному нагріванні та охолодженні. Дослідження проводились на установці швидкісного рентгенографування швидкоплинних процесів, розробленій в Інституті проблем матеріалознавства НАН України. При експозиціях від кількох десятків до кількох сотень мілісекунд спостерігали еволюцію положення дифракційних максимумів розсіяних рентгенівських квантів (енергія  $\sim 10$  кеВ) по мірі нагрівання чи охолодження армко-заліза зі швидкістю від 100 до 250 °С/с. Наводяться значення визначених таким чином параметрів кристалічної ґратки альфа- та гамма-фаз у температурному діапазоні від 20 до 1250 °С.

*Ключові слова:* позиційно-чутливі детектори, мікропксельний детектор TimePix, швидкісне рентгенографування, динаміка фазових перетворень.

### Вступ

Сучасне матеріалознавство приділяє все більше уваги матеріалам, структура яких сформована, як правило, у несталих умовах. До таких належать нанокристалічні матеріали, квазікристали, надвисоковуглецеві сталі, а також матеріали, отримані методами порошкової металургії. Великі пластичні деформації в температурних областях фазово-структурної нерівноважності приводять до створення мікронанокристалічної структури в конструкційних матеріалах на основі заліза, титану, цирконію, алюмінію та ін. Ці матеріали мають високу міцність. Для цілеспрямого керування властивостями цих матеріалів як на стадії створення, так і в процесі їхньої експлуатації необхідно досліджувати в реальному часі протікання змін фазово-структурних перетворень. Використання рентгеноструктурного аналізу (РСА) є одним з “прямих” методів таких досліджень. Існуюче стандартне устаткування не дозволяє досліджувати фазово-структурні перетворення в реальному часі, а особливо ті перетворення, що відбуваються в несталих умовах за малий проміжок часу  $\leq 1$  с. Виходячи з вищеведеного, актуальною є розробка методів швидкісного рентгенографування швидкоплинних процесів у реальному часі та відповідного апаратного й програмного забезпечення.

В Інституті проблем матеріалознавства НАН України розробляють рентгенівську техніку для дослідження швидкоплинних процесів [1], таких як фазові та структурні перетворення в матеріалах при екстремальних умовах, термообробці, деформації чи спіканні, з використанням РСА. Розвинута методика дозволила за зміною інтегральної інтенсивності максимумів альфа- і гамма-фаз заліза та сталей у міжкритичному інтервалі температур побудувати об'ємні кінетичні криві перетворення. По уширенню інтерференційних максимумів розглядалась тонка структура фаз, а по взаємному зміщенню ліній гамма-фази - кількісна оцінка густини вірогідності деформаційних дефектів упаковки.

Основним фактором, ускладнюючим побудову систем рентгенографування швидкоплинних процесів у реальному часі, є складність сканування дифракційних максимумів за малий проміжок часу та, у зв'язку з цим, брак інтенсивності джерела рентгенівського випромінювання. Вирішення цієї проблеми можна досягти комплексом технічних рішень: підбором джерела випромінювання, застосуванням ефективної схеми фокусування (з високим коефіцієнтом використання рентгенівського випромінювання) та розробкою спеціальних систем реєстрації дифракційних максимумів у просторі та часі.

© М. В. Пугач, В. В. Бурдін, М. Кемпбел, О. С. Ковальчук, К. Ллопарт, М. В. Мінаков, В. М. Міліція, О. Ю. Охріменко, Ю. М. Подрезов, С. Поспішіл, В. М. Пугач, Д. І. Сторожик, Л. Тлустос, С. О. Фірстов, А. В. Чаус, 2012

У даній роботі наводяться результати випробування позиційно-чутливого мікро-піксельного детектора TimePix [2] для вимірювання та відображення в реальному часі положення дифракційного максимуму рентгенівських квантів при нагріванні ( $V_{\text{наг}} \approx 250 \text{ }^\circ\text{C/c}$ ) та охолодженні ( $V_{\text{ох}} \approx 50 \text{ }^\circ\text{C/c}$ ) зразка армко-заліза. Дослідження проводились на модернізованій установці швидкісного РСА Інституту проблем матеріалознавства НАН України. У попередніх роботах на цій установці положення дифракційного максимуму та розподіл рентгенівських квантів, розсіяних на зразку, вимірювались за допомогою механічного сканування коліматора, встановленого перед сцинтиляційним детектором. Механічне сканування має значні недоліки (похибки за рахунок інерційності механічної системи, різке погіршення якості профілю дифракційного максимуму при частоті сканування більш ніж 20 Гц та нерівноцінність прямого та зворотного ходу коліматора). Обробка експериментальних даних

(від 5000 вимірювань) вимагає тривалого часу, а вказані недоліки не дозволяють автоматизувати вимірювання.

### Експериментальна методика

Установка швидкісного рентгенографування, на якій проведено дослідження, має у своєму складі такі основні елементи (рис. 1):

- 1) блок фокусування рентгенівського випромінювання (S);
- 2) блоки реєстрації (D) для визначення інтенсивності розсіяних фотонів залежно від кута Вульфа - Брегга;
- 3) дилатометр – вимірювач температури, електричного струму, що протікає через зразок, розмірів зразка (DT);
- 4) пристрій нагріву зразка;
- 5) пристрій сполучення з персональним комп'ютером;
- 6) високовольтне джерело ВВП 2-50-60;
- 7) вакуумна система.

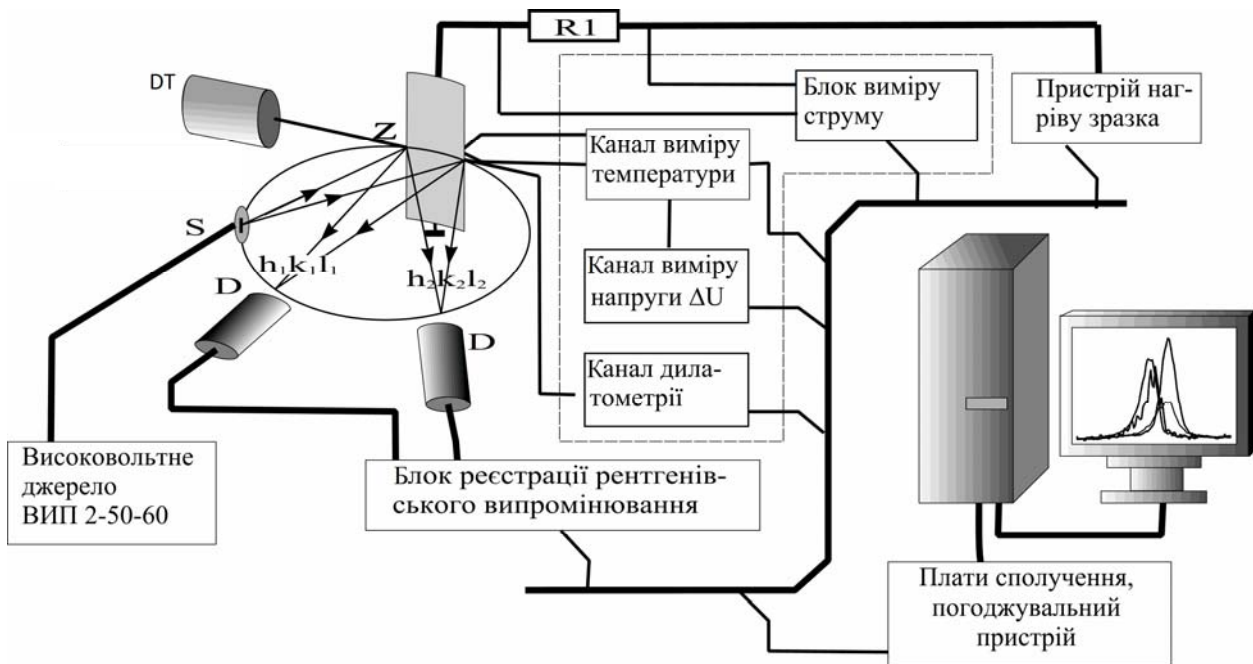


Рис. 1. Блок-схема модернізованої установки швидкісного рентгенографування: S – фокус джерела рентгенівського випромінювання; Z – досліджуваний металевий зразок; DT – дилатометр, D – детектори рентгенівського випромінювання – TimePix.

Згідно з формулою Вульфа - Брегга, зміна кутового положення дифракційного максимуму ( $\theta$ ) розсіяних рентгенівських квантів при нагріванні/охолодженні зразка визначається для певної довжини хвилі ( $\lambda$ ) фотонів зміною постійної кристалічної ґратки ( $d_{hkl}$ ): при нагріванні кут зменшується, при охолодженні – збільшується.

$$\arcsin \theta = \lambda / (2 d_{hkl}), \quad (1)$$

У наших дослідженнях два детектори TimePix

(див. рис. 1, поз. D) були розташовані під такими кутами, щоб одночасно реєструвати дифракційні лінії, відповідні різним фазовим структурам зразка ( $\alpha - h_1 k_1 l_1$  та  $\gamma - h_2 k_2 l_2$ ), та їхню еволюцію при зміні температури.

Детектор TimePix розроблено міжнародною колаборацією MEDIPIX (ЦЕРН, Женева) [2]. Його гібридний варіант складається з 300-мікронного шару кремнієвого напівпровідникового сенсора (питомий опір  $5 \text{ кОм} \cdot \text{см}$ ), сполученого

вкрапленнями індію (“bump-bonding” технологія) із зчитуючим мікропіксельним чіпом, виготовленим за промисловою КМОП-0.25 мкм технологією в шести металевих шарах. Геометрія обох ча-

стин однакова: матриця –  $(256 \times 256)$  пікселів з площею кожного в  $(55 \times 55)$  квадратних мікронів (рис. 2). Тобто чутлива область детектора становить  $(14 \times 14)$  мм<sup>2</sup>.

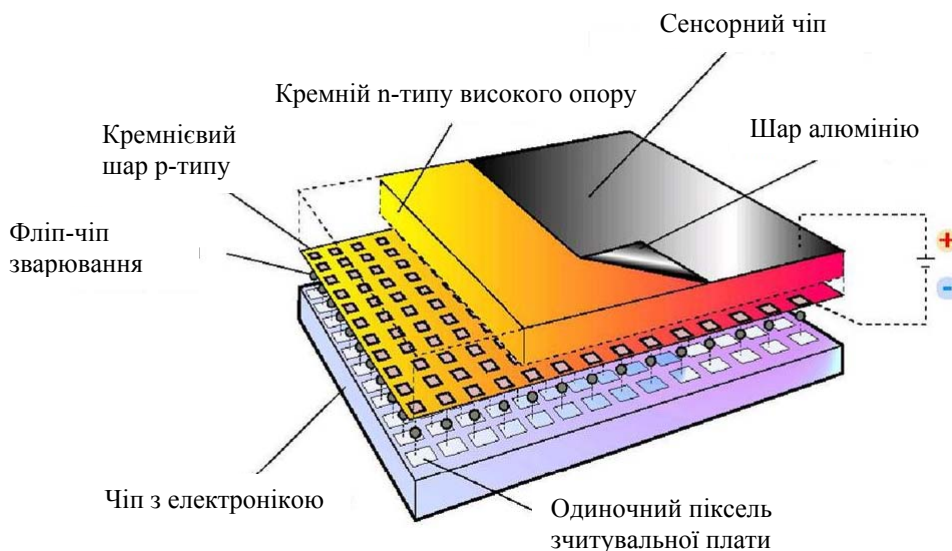


Рис. 2. Схематичне зображення гібридного детектора TimePix.

Верхня частина – напівпровідниковий сенсор з  $(256 \times 256)$ -мікропіксельною структурою, виготовлений із високоомного кремнію n-типу; нижня частина –  $(256 \times 256)$  каналів – зчитувальний мікročіп, виготовлений із низькоомного кремнію та сполучений із сенсорною матрицею.

У кожному пікселі зчитувального мікročіпа (на основі понад 400 транзисторів) є попередній підсилювач, дискримінатор та лічильник (максимальна кількість відліків 11840). Завдяки надзвичайно малій ємності на вході підсилювача ( $\sim 1$  фФ), забезпечений “bump-bonding” технологією сполучення, еквівалентний шум кожного каналу не перевищує 750 електронів. При попаданні в сенсорний шар рентгенівського кванта (енергія 10 кеВ) мікročіп генерує сигнал у вигляді кількості відліків, пропорційній амплітуді за принципом ТоТ – “час сигналу над порогом”. Зчитування даних до персонального комп’ютера здійснювалось через USB-порт за допомогою нового інтерфейсного пристрою FitPix та програмного забезпечення PIXELMAN, створеного в Інституті експериментальної та прикладної фізики (м. Прага) [3]. Новий інтерфейс дозволяє здійснювати експозиції з частотою до 100 Гц. Дослідження виконувались при експозиціях від кількох десятків до кількох сотень мілісекунд. Геометричні розміри чутливої поверхні детектора, забезпечуючи просторову точність визначення положення дифракційного максимуму  $\sim 20$  мк, покривають при цьому  $14^\circ$  кута (у шкалі 4 $\theta$  – по Зеєману - Боліну) при кутовій роздільній здатності  $0,017^\circ$ . TimePix по суті являє собою електронну “фотоплатівку” [4], здатну відображати в реальному часі динаміку структурних та фазових перетворень.

## Результати досліджень

З одержаних за допомогою TimePix двовимірних розподілів інтенсивності рентгенівських квантів, розсіяних на металевому зразку, визначалось положення дифракційного максимуму. Нагрівання зразка зі швидкістю нагріву  $V_{\text{наг}} \approx 250$  °C/c здійснювалось пропусканням через нього електричного струму, охолодження здійснювалось у вакуумі зі швидкістю  $V_{\text{ох}} \approx 50$  °C/c у діапазоні температур від 20 до 1500 °C. Дискретність одержуваних даних задавалась установленим у TimePix часом експозицій, який у різних дослідах варіювався від кількох десятків до кількох сотень мілісекунд. При повному циклі вимірювань протягом 10 - 20 с це означало накопичення кількох сотень числових  $(256 \times 256)$  матриць, кількість відліків у кожній з 65536 комірок відповідає інтенсивності зареєстрованих квантів. Енергія квантів становила 10 кеВ.

На рис. 3 представлено дані для чотирьох послідовних у часі експозицій одного з експериментів. Кожна експозиція відповідає певному часу після старту експерименту, який запускає також систему поступового збільшення електричного струму через зразок, а отже, збільшення температури зразка. Час (у секундах після старту експерименту) позначено великими літерами (10, 12.4, 15.2, 20) над двовимірними розподілами

(“2D data presentation”), в яких осі X, Y мають по 256 градацій відповідно до кількості пікселів у детекторі TimePix. Інтенсивність зареєстрованих у пікселях рентгенівських квантів відображена кольором (на кольорових рисунках: синій колір –

мала інтенсивність: числа відліків від 0 до 5; червоний колір – велика інтенсивність: числа відліків від 20 до 25 чи відповідною градацією співвідношення темно-білого кольору).

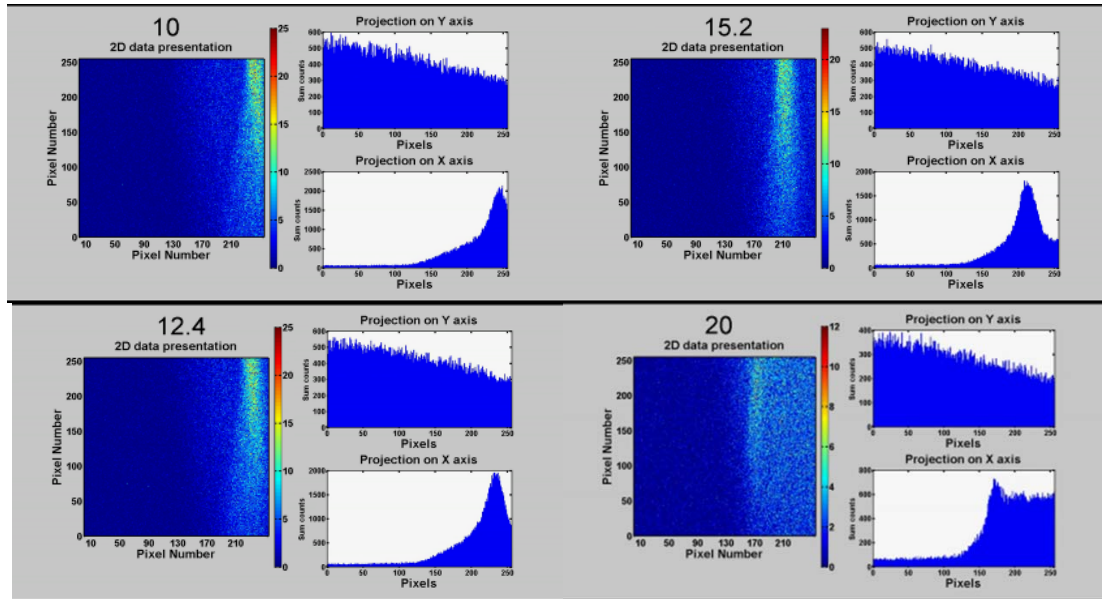


Рис. 3. Детектор TimePix в установці швидкісного рентгенографування. Розподіл інтенсивності рентгенівських квантів, розсіяних на металевому зразку, при його поступовому нагріванні. Чотири експозиції після старту вимірювань - 4 кадри: 10 с – верхній зліва кадр; 12,4 с – нижній зліва; 15,2 с – верхній справа; 20 с – нижній справа. На кожному кадрі: зліва – двовимірні розподіли; справа – проєкції цих розподілів на осі X та Y.

Для одержання даних про еволюцію положення дифракційного максимуму залежно від температури двовимірні розподіли були спроектовані на вісь X (нижній рисунок справа на кожному кадрі). Як видно з рис. 3, при переході від кадру, знятому на 10-й секунді, до кадру – на 20 й секунді, положення дифракційного максимуму переміщується з 250-го пікселя (вісь X) до 180-го пікселя.

Температура зразка зростала при цьому від 400 до 900 °С. Кутове положення дифракційного максимуму для альфа-фази зразка змінилося від 21,5 до 24,7°, при цьому його інтегральна інтенсивність (після віднімання фону, інтерпольованого з-за меж дифракційного піка в його область) знизилася майже в 15 разів, відображаючи практичне зникнення альфа-фази в нагрітому зразку.

Детально опрацьовані дані були одержані для зразка армко-заліза, хімічний склад якого відповідає сталі АРМКО/Е12 у відпаленому стані (домішки міді, марганцю, кремнію не перевищували 0,3 %, а сірки, фосфору та вуглецю – 0,025 %). Ці дані представлені у вигляді температурної залежності параметра альфа- і гамма-фаз у температурному діапазоні від 20 до 1250 °С (рис. 4). Початкові стадії перетворення надійно фіксувались за зміною інтенсивності альфа-фази, що перетворю-

валася, а кінець – за зміною інтенсивності гамма-фази, що утворювалася. Висока часова роздільна здатність методу швидкісної рентгенівської зйомки дозволила з достатньою точністю визначити часовий інтервал альфа-гамма-перетворення (~0,05 с) при швидкостях нагріву  $\approx 250$  °С/с і побудувати кінетичні криві перетворення (див. рис. 4). Точність одержаних даних для альфа- та гамма-параметрів становить  $1,2 \cdot 10^{-3}$  Å.

Константа кристалічної ґратки

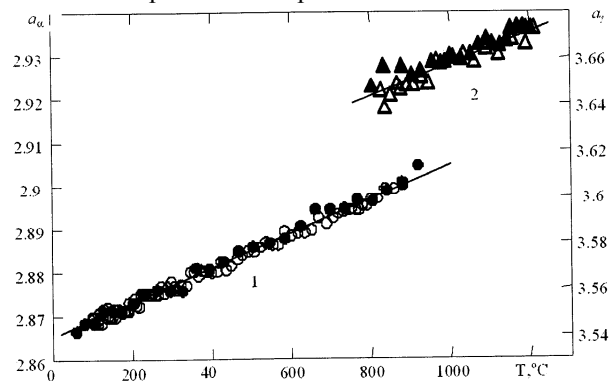


Рис. 4. Параметр альфа-фази (ферит) та гамма-фази (аустеніт) кристалічної ґратки залежно від температури зразка. Темні символи – дані, одержані при нагріванні зразка; світлі – при його охолодженні.

### Висновки

1. Використання гібридного мікропиксельного детектора TimePix на установці швидкісного рентгенографування дало змогу надійно спостерігати в реальному часі фазовий стан досліджуваних металевих зразків.

2. Детально досліджено область фазового переходу від альфа-фази (ферит) до гамма-фази (аустеніт) у діапазоні температур від 20 до 1200 °С. З вимірних положень дифракційних максимумів розсіяних рентгенівських квантів одержано залежність фазових характеристик зразка армко-сталі від температури з точністю  $\sim 1,2 \cdot 10^{-3}$  Å.

3. Результати виконаних досліджень означають можливість вимірювання динаміки фазових переходів у металах при нагріванні/охолодженні в реальному часі з точністю визначення положення дифракційного максимуму  $\sim 20$  мк при дискретності вимірювань до кількох десятків мікросекунд, застосувавши гібридний мікропиксельний детектор TimePix як електронну “фотоплатівку”.

Висловлюємо подяку колаборації MEDIPIX-2 за надану можливість виконати дослідження з детектором TimePix. Дана робота була виконана частково в рамках CNCP (UK) проекту “MicrostripMetalDetectors”.

### СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Бурдин В.В. Фазовые превращения в железе и сталях при скоростных нагревах // *Металлофизика и новейшие технологии*. - 2010. - Т. 31, № 10. - С. 1343 - 1360.
2. Llopart X., Ballabriga R., Campbell M. et al. Timepix, a 65k programmable pixel readout chip // *Nucl. Instr. and Meth.* - 2007. - Vol. A581. - P. 485 - 489.
3. Kraus V., Holik M., Jakubek J., Georgiev V. FITPix – Fast interface for Timepix pixel detectors // *J. of Instrumentation*. - 2011. - Vol. 6, Issue 01. - P. C01079.
4. Pugatch V., Campbell M., Llopart X. et al. Metal and Hybrid TimePix Detectors Imaging Beams of Particles // *Nucl. Instr. and Meth.* - 2011. - Vol. A650. - P. 194 - 197.

**М. В. Пугач, В. В. Бурдин, М. Кемпбэл, А. С. Ковальчук, К. Ллопарт, М. В. Минаков, В. М. Милиция, А. Ю. Охрименко, Ю. В. Подрезов, С. Поспишил, В. М. Пугач, Д. И. Сторожик, Л. Глуост, С. О. Фирстов, А. В. Чаус**

### ИСПОЛЬЗОВАНИЕ МИКРОПИКСЕЛЬНОГО ДЕТЕКТОРА TimePix ДЛЯ НАБЛЮДЕНИЯ ДИНАМИКИ ФАЗОВЫХ ПЕРЕХОДОВ В МЕТАЛЛАХ

Представлены результаты исследования возможности применения детектора TimePix для измерения и отображения в реальном времени динамики фазовых переходов в металлах и их сплавах при нагревании и охлаждении. Исследования проводились на установке скоростного рентгеноструктурного анализа Института проблем материаловедения НАН Украины. При экспозициях от нескольких десятков до нескольких сотен миллисекунд с точностью порядка 20 мк наблюдали эволюцию положения дифракционных максимумов рассеянных рентгеновских квантов (энергия  $\sim 10$  кэВ) по мере нагревания или охлаждения образцов армко-железа со скоростью от 100 до 250 °С/с. Приводятся результаты для определенных таким образом параметров кристаллической решетки альфа- и гамма-фаз в температурном диапазоне от 20 до 1250 °С.

*Ключевые слова:* позиционно-чувствительные детекторы, микропиксельный детектор TimePix, скоростной рентгено-структурный анализ, динамика фазовых переходов.

**M. V. Pugach, V. V. Burdin, M. Campbell, O. S. Kovalchuk, X. Llopart, M. V. Minakov, V. M. Militsiya, O. Yu. Okhrimenko, Yu. V. Podrezov, S. Pospisil, V. M. Pugatch, D. I. Storozhyk, L. Tlustos, S. O. Firstov, A. V. Chau**

### USAGE OF THE MICROPIXEL DETECTOR TimePix FOR OBSERVATION OF THE DYNAMICS OF PHASE TRANSITIONS IN METALS

The results for the test of a TimePix hybrid detector as a tool for measuring and imaging in real time dynamics of phase transitions in metal alloys under heating or cooling are presented. The X-rays ( $\sim 10$  keV) experimental setup explored for the diffraction studies at the Institute for Problems of Material Science NASU (Kyiv) is briefly described. An evolution of the diffraction maxima position ( $\sim 20$   $\mu$ m accuracy) of the scattered X-rays was observed with exposures from a few dozen to a few hundred milliseconds under heating or cooling of the samples of Armco iron at a rate of 100 to 250 °C/s. Data for the phase transitions (alpha-, gamma-phases observed) during heating/cooling (20 - 1250 °C) using the X-ray diffraction were measured.

*Keywords:* position sensitive detectors, micro-pixel detector TimePix, fast X-rays structure analysis, phase transition dynamics.

Надійшла 04.10.2012  
Received 02.10.2012