

同步辐射白光貌相术计算晶体缺陷 三维分布的原理与算法

于万里¹ 田玉莲²

1 (燕山大学材料科学与工程学院 秦皇岛 066004)

2 (中国科学院高能物理研究所 北京 100039)

摘要 晶体缺陷空间方位的确定是晶体缺陷研究中的一个重要问题。前人曾提出多种确定晶体缺陷空间方位的方法,但都是利用单色光,并且需要精确调整晶体的方向,实现条件比较苛刻。作者提出了一种利用同步辐射白光确定晶体缺陷空间走向的方法,比前人提出的方法简便、适用,不必精确调整晶体的方位,实验中容易实现。本文介绍了这种实验方法的具体算法并分析了误差的大小。

关键词 晶体缺陷, 空间方位, 同步辐射

中图分类号 O713

晶体中缺陷的三维分布是晶体结构与缺陷研究的一个基本问题。最早由 Jenkinson 和 Lang^[1,2] 提出了立体对貌相法来确定缺陷的三维分布。它是拍摄(hkl)和(hkl)两张透射投影貌相图,然后借助于立体显微镜来研究其中的缺陷。但是(hkl)照片的获得比较麻烦,它需要在摄取一张(hkl)衍射的貌相图之后,将晶体旋转 2θ 角,再拍摄一张(hkl)的衍射图。由于晶体中的缺陷在两张貌相图上的投影是不同的,这种投影的差别类似于用肉眼从略微有些差角的两个方向观察物体。因此两个投影图形成

景象。Medrano 和 Ohler^[4,5]提出采集一系列距离很近的截面形貌象来确定缺陷三维分布的方法。最近, Ludwig^[6]提出了一种形貌-断面扫描三维呈象方法。以上方法均采用单色光源,需要精确调整样品的方向。作者提出了一种利用同步辐射白光确定晶体缺陷的计算方法^[7,8]。利用此方法一次可以获得多个斑点的形貌象,不必拍摄晶体特殊取向的形貌象,比前人采用的方法效率高,实验中容易实现。本文给出了利用白光形貌术计算晶体中缺陷空间取向的具体计算方法。

1 计算方法

1.1 斑点间的相互关系

假设利用同步辐射白光所拍摄的某一晶体的形貌象如图1所示。图中O点为透射斑, B_1 和 B_2 为其中两个衍射斑,它们的极坐标分别为 $B_1(R_1, \phi_1)$ 和 $B_2(R_2, \phi_2)$,衍射面法线球面坐标分别为 $P_1(\rho_1, \phi_{n1})$ 和 $P_2(\rho_2, \phi_{n2})$,则 B_1 与 P_1 之间的关系为

$$\rho_1 = 90^\circ - \frac{1}{2} \lg^{-1} \frac{R_1}{D} \quad (1)$$

$$\phi_{n1} = \phi_1 - 180^\circ \quad (2)$$

其中 ρ_1 为 P_1 矢量的极距角, R_1 为 B_1 点与投影图中心O点的距离, D 为样品与底片的距离。

利用正弦定理,可以推导出 P_1 、 P_2 二者之间的夹角 α_{12} 为(见图2)

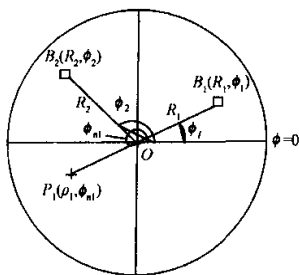


图1 衍射斑点平面位置与衍射晶面法线的极射赤平投影关系示意图

Fig.1 Sketch map showing the relations of the planar position of a diffracted spot and the projection of the normal in its diffracted plane

了一个立体对,可以借助于立体观察镜来研究其中的缺陷。Haruta^[3]采用让样品围绕衍射矢量旋转一小角度拍摄一系列照片的方法来获得样品的立体形

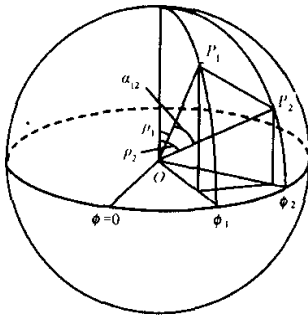


图 2 衍射晶面法线空间关系示意图

Fig.2 Diagram showing the relation between the normals of the diffracted planes

$$\cos \alpha_{12} = \cos \rho_1 \cos \rho_2 + \sin \rho_1 \sin \rho_2 \cos(\phi_{n1} - \phi_{n2}) \quad (3)$$

$$\cos \alpha_{12} = \cos \rho_1 \cos \rho_2 + \sin \rho_1 \sin \rho_2 \cos(\phi_1 - \phi_2) \quad (4)$$

将 (1) 代入 (4), 得

$$\cos \alpha_{12} = \sin\left(\frac{1}{2} \lg^{-1} \frac{R_1}{D}\right) \sin\left(\frac{1}{2} \lg^{-1} \frac{R_2}{D}\right) + \cos\left(\frac{1}{2} \lg^{-1} \frac{R_1}{D}\right) \cos\left(\frac{1}{2} \lg^{-1} \frac{R_2}{D}\right) \cos(\phi_1 - \phi_2) \quad (5)$$

利用式(5)可以求出二斑点之间的夹角 α_{12} 。根据斑点之间的夹角, 可以确定斑点指数。指数标定后, 每一个斑点的空间位置与该斑点衍射面法线的球面坐标 $P(\rho, \phi_n)$ 和衍射斑点的极坐标 $B(R, \phi)$ 一一对应。

1.2 晶体取向的计算

晶体衍射斑点的指数标定出来之后, 事实上晶体的空间取向就已经确定了。但是, 为了计算晶体内部缺陷的方向, 仍然需要将晶轴的空间取向计算出来。

考虑一般情况。设某一矢量 B_0 的方向指数为 $[u_0 v_0 w_0]$ 。任选两个已经标定指数的斑点 $B_1 [u_1 v_1 w_1]$ 和 $B_2 [u_2 v_2 w_2]$, 二者的球面坐标为 $P_1(\rho_1, \phi_{n1})$ 和 $P_2(\rho_2, \phi_{n2})$ 。设 B_0 的球面坐标为 $P_0(\rho_0, \phi_0)$, 根据公式 (3) 可以列出:

$$\cos \alpha_{10} = \cos \rho_1 \cos \rho_0 + \sin \rho_1 \sin \rho_0 \cos(\phi_{n1} - \phi_0) \quad (6)$$

$$\cos \alpha_{20} = \cos \rho_2 \cos \rho_0 + \sin \rho_2 \sin \rho_0 \cos(\phi_{n2} - \phi_0) \quad (7)$$

式中 α_{10} 和 α_{20} 为 B_0 与 B_1 和 B_2 的夹角。分别用晶轴 $[100]$ 、 $[010]$ 和 $[001]$ 代替 B_0 , 利用数值解法可求出三个晶轴的球面坐标 $a(\rho_a, \phi_a)$, $b(\rho_b, \phi_b)$ 和

$c(\rho_c, \phi_c)$ 。实际计算时, 需用 3 个或 3 个以上斑点列出联立方程组来计算晶轴的球面坐标, 因为只用两个斑点计算的晶轴方向具有 180° 不唯一性, 不能唯一确定晶轴的方向。

1.3 斑点投射方向的计算

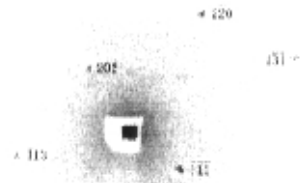
斑点的投射方向指的是衍射束相对于晶轴的取向。对于极坐标为 (R, ϕ) 的衍射斑点 B_i , 其投射方向的球面坐标为 $(\lg \frac{R_i}{D}, \phi_i)$ 。由于晶轴的球面坐标已求出, 因而, 利用公式 (3) 可以求出任一斑点的投射方向与晶轴 a 、 b 、 c 的夹角 α_i 、 β_i 、 γ_i 。与矢量 B_i 垂直的面指数 P_{Bi} 为 $(\cos \alpha_i, \cos \beta_i, \cos \gamma_i)$ 。

1.4 缺陷象在斑点上平面方向的确定

实验中一般使用平板底片, 因此底片上各个斑点的象相当于样品在底片上的正投影。在一个斑点上, 根据某一线性缺陷的象只能定出这个缺陷在该斑点平面上的方向。对于某一缺陷 d , 它在斑点上的极距角 ρ 永远为 90° 。若 d 的象在斑点 1 和斑点 2 上的平面方向分别为 l_1 和 l_2 , 方位角为 ϕ_{n1} 和 ϕ_{n2} , 则它们的球面坐标为 $(90^\circ, \phi_{n1})$ 和 $(90^\circ, \phi_{n2})$ 。将三个晶轴和 l_1 、 l_2 的球面坐标分别代入公式 (3), 可以求出 l_1 、 l_2 与三个晶轴的夹角 l_{11} 、 l_{12} 、 l_{13} 和 l_{21} 、 l_{22} 、 l_{23} 。与 l_1 、 l_2 垂直的面指数分别为

$$P_{l1} = (\cos l_{11}, \cos l_{12}, \cos l_{13}) \quad (8)$$

$$P_{l2} = (\cos l_{21}, \cos l_{22}, \cos l_{23}) \quad (9)$$

图 3 合成金刚石晶体 D_3 的同步辐射衍射斑点图 303-3Fig.3 The synchrotron radiation diffraction photograph 303-3 of synthesized diamond D_3

1.5 缺陷空间走向的计算

如果斑点 1 和斑点 2 投射方向分别为 r_1 、 r_2 , 与二者垂直的晶面指数 P_{r1} 、 P_{r2} 分别为

$$P_{r1} = (\cos r_{11}, \cos r_{12}, \cos r_{13}) \quad (10)$$

$$P_{r2} = (\cos r_{21}, \cos r_{22}, \cos r_{23}) \quad (11)$$

则与 r_1 、 l_1 同时垂直的矢量 n_1 为:

$$n_1 = \left[\begin{array}{cc|cc} \cos r_{12} & \cos r_{13} & \cos r_{13} & \cos r_{11} \\ \cos l_{12} & \cos l_{13} & \cos l_{13} & \cos l_{11} \end{array} \right];$$

$$\left[\begin{array}{cc|cc} \cos r_{11} & \cos r_{12} & \cos r_{12} & \cos r_{13} \\ \cos l_{11} & \cos l_{12} & \cos l_{12} & \cos l_{13} \end{array} \right] \quad (12)$$

同样, 与 r_2 、 l_2 同时垂直的矢量 n_2 为:

$$n_2 = \left[\begin{array}{cc|cc} \cos r_{22} & \cos r_{23} & \cos r_{23} & \cos r_{21} \\ \cos l_{22} & \cos l_{23} & \cos l_{23} & \cos l_{21} \end{array} \right];$$

$$\left[\begin{array}{cc|cc} \cos r_{21} & \cos r_{22} & \cos r_{22} & \cos r_{23} \\ \cos l_{21} & \cos l_{22} & \cos l_{22} & \cos l_{23} \end{array} \right] \quad (13)$$

与缺陷 d 的走向垂直的晶面 P_d 的指数为:

$$P_d = \left(\begin{array}{cc|cc} \cos r_{13} & \cos r_{11} & \cos r_{11} & \cos r_{12} \\ \cos l_{13} & \cos l_{11} & \cos l_{11} & \cos l_{12} \\ \cos r_{23} & \cos r_{21} & \cos r_{21} & \cos r_{22} \\ \cos l_{23} & \cos l_{21} & \cos l_{21} & \cos l_{22} \end{array} \right);$$

$$\left(\begin{array}{cc|cc} \cos r_{11} & \cos r_{12} & \cos r_{12} & \cos r_{13} \\ \cos l_{11} & \cos l_{12} & \cos l_{12} & \cos l_{13} \\ \cos r_{21} & \cos r_{22} & \cos r_{22} & \cos r_{23} \\ \cos l_{21} & \cos l_{22} & \cos l_{22} & \cos l_{23} \end{array} \right);$$

$$\left(\begin{array}{cc|cc} \cos r_{12} & \cos r_{13} & \cos r_{13} & \cos r_{11} \\ \cos l_{12} & \cos l_{13} & \cos l_{13} & \cos l_{11} \\ \cos r_{22} & \cos r_{23} & \cos r_{23} & \cos r_{21} \\ \cos l_{22} & \cos l_{23} & \cos l_{23} & \cos l_{21} \end{array} \right) \quad (14)$$

平面 P_d 的法线方向即为缺陷 d 的走向。

2 实例

图3和图4为合成金刚石晶体D303的同步辐射衍射斑点图。图4晶体取向相对于图3绕直立轴逆时针旋转 180° 。D303 主要由立方体{100}、八面体{111}、菱形十二面体{110}和四角三八面体{311}组成。实验在北京正负电子对撞机同步辐射实验室形貌站完成。实验采用透射劳厄装置, 图3、图4样品与底片距离分别为 36.9mm 和 30.3mm。曝

光时间 4s。免双面成像造成的影象重叠, 采用了单面显影技术。

将图3、图4各个斑点放大, 即可得到晶体的形貌相。图5为图3、图4中部分衍射斑点的放大象。图5(a)为图3中 $\bar{1}\bar{1}\bar{1}$ 斑点的放大象, 衍射矢量 $g = [\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$; 图5(b)为图4中 220 斑点的放大象, 衍射矢量 $g = [220]$; 图5(c)为图4中 $\bar{2}\bar{2}0$ 斑点的放大象, 衍射矢量 $g = [\bar{2}\bar{2}0]$ 。从图中可见由晶体中心向上有一束黑色的线状缺陷象, 记为 d_1 。根据缺陷象的特征可以确定, 这是一组位错象。我们以这一束位错走向的计算为例, 说明晶体缺陷的具体计算方法和步骤。

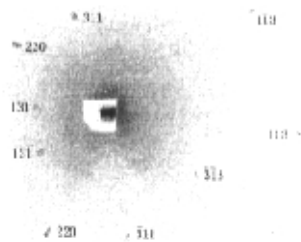


图4 合成金刚石晶体 D_3 的同步辐射衍射斑点图 303-6

Fig.4 The synchrotron radiation diffraction photograph 303-6 of synthesized diamond D_3

衍射图 303-3 和 303-6 中各衍射斑点的极坐标 (ϕ, R) 、衍射面法线球面坐标 (ρ_m, ϕ_m) 、衍射斑点投射方向球面坐标 (ρ, ϕ) 如表1所示。分别将两个衍射图各衍射斑点的晶面夹角和球面坐标代入式(6)、(7), 采用数值解法求解此联立方程组, 解出晶轴的球面坐标如表2所示。利用公式(5), 计算出 d_1 在图5中各个斑点中的平面方向 (ρ, ϕ) 如表3所示。



图5 衍射图 303-3、303-6 中部分衍射斑点的放大象

Fig.5 Parts of magnified spots in diffracted photographs 303-3 and 303-6

表 1 衍射斑点的极坐标、面法线的球面坐标和斑点投射方向的球面坐标

Table1 Polar coordinates of the diffracted spots in Fig.3 and spherical coordinates of their normal and the spots projecting directions

斑点图号 Name of diffracted topograph	面指数 Index of diffracted plane	极坐标 Polar coordinates		法线球面坐标 Spherical coordinates of the diffracted plane's normal		投射方向球面坐标 Spherical coordinates of the projecting direction of diffracted spots	
		ϕ	R	ρ_n	ϕ_n	ρ_t	ϕ_t
303-3	$\overline{111}$	-35.3	1.8	77.00	144.7	26.00	-35.3
	$\overline{113}$	-168	3.35	68.88	12.0	42.24	-168.0
	202	123.0	2.24	74.37	303.0	31.26	123.0
	$\overline{220}$	59.7	4.05	66.17	239.7	47.66	59.7
	$\overline{131}$	25.1	5.27	62.50	205.1	55.00	25.1
303-6	220	142.4	3.62	64.96	322.4	50.07	142.4
	311	108.5	3.29	66.32	288.5	47.36	108.5
	$\overline{131}$	174.9	2.27	71.58	354.9	36.84	174.9
	$\overline{131}$	-148.5	2.43	70.64	31.5	38.73	-148.5
	$\overline{311}$	-80.0	4.03	63.47	100.0	53.06	-80.0
	$\overline{220}$	-115.6	4.26	62.71	64.4	54.57	-115.6
	$\overline{313}$	-34.1	3.44	65.69	145.9	48.63	-34.1
	$\overline{113}$	36.3	5.63	59.14	216.3	61.71	36.3
	$\overline{113}$	-5.4	6.08	58.24	174.6	63.51	-5.4

表 2 303-3、303-6 衍射图晶轴的球面坐标

Table 2 Spherical coordination of crystal axis of diffracted photographs 303-3 and 303-6

衍射图号 Name of diffracted topograph	303-3		303-6	
	ρ	ϕ	ρ	ϕ
球面坐标 Spherical coordinates				
[100]	102.22	267.80	91.67	284.07
[010]	141.29	12.95	51.91	13.29
[001]	53.51	348.70	38.16	196.07

选择图 5 中的三个斑点计算 d_1 的空间取向。先利用公式 (5) 求出各衍射斑点投射方向与晶轴的夹角, 计算结果如表 4 所示。将各斑点的投射方向和 d_1 在斑点上的平面方向与晶轴的夹角带入公式 (14), 可以得到 d_1 在晶体中的空间走向, 计算结果如表 5 所示。

实际计算时, 采用了多对斑点进行计算, 表 5 只列出了其中两对。计算结果表明, d_1 与 a 、 b 、 c 三个晶轴的夹角分别为 0° 、 90° 、 90° , 即平行于 [100] 方向。利用不同的斑点对计算的结果误差在 1° 以内, 说明这种计算方法在计算晶体内部缺陷走向时精度能够满足要求。

表 3 d_1 在图 303-3、303-6 中的平面方向计算

Table 3 Calculation of the planar direction of d_1 in diffracted photographs 303-3 and 303-6

d_1 的平面方向 Planar direction of d_1	球面坐标 Spherical coordinates		与晶轴夹角 Angles to the crystal axis		
	ρ	ϕ	α	β	γ
在 111 中的取向 Direction on spot $\overline{111}$	90	92.4	-13.04	83.43	-79.02
在 220 中的取向 Direction on spot 220	90	103.9	-1.68	-89.52	-88.66
在 $\overline{220}$ 中的取向 Direction on spot $\overline{220}$	90	103.2	-1.89	89.93	-88.23

表 4 图 5 中各斑点的投射方向计算

Table 4 Calculation of the emission direction of diffracted spots in Fig.5

斑点指数 Index of the spots	斑点投射方向与晶轴夹角 Angles between the emission direction of the diffracted spots and the axes		
	α	β	γ
$\overline{111}$	-13.04	83.43	-79.02
220	-1.68	-89.52	-88.66
$\overline{220}$	-1.89	89.93	-88.23

表 5 d_1 在晶体中的空间走向计算

Table5 Calculation of the directions of d_1 in the crystal D303

参与计算的斑点 Diffracted spots used in the calculation	d_1 与晶轴夹角($^\circ$) Angles between d_1 and the axes (in degree)		
	α	β	γ
303-3 中的 $\overline{111}$ 与 303-6 中的 $\overline{220}$	0.047	-89.97	89.96
303-3 中的 $\overline{111}$ 与 303-6 中的 220	0.98	89.53	89.14

致谢 本文得到北京正负电子对撞机 (BSRF) 国家实验室重点课题、燕山大学博士基金和河北省教育厅博士基金资助，在此表示感谢。

参考文献

1 Jenkinson A E. Phil Tech Rev, 1961/62, 23: 82—88
2 Jenkinson A E, Lang A R. Direct Observation of Imperfections. New York: Interscience, 1962.471
3 Haruta K. J Appl Phys, 1965, 36: 1789—790
4 Medrano C, Rejmankova P, Ohler M, *et al.* Il Nuovo Cimento, 1997, 19D: 195—203
5 Ohler M, Sanchez del Rio M, Tuffanelli A, *et al.* J Appl

Phys, 2000, 33: 1023—1030
6 Ludwig W, Cloetens P, Hartwig J, *et al.* J Appl Cryst, 2001,34: 602—607
7 于万里, 罗永安, 王明智, 等. 高能物理与核物理, 2001,25(增刊):110—115
YU Wanli, LUO Yongan, WANG Mingzhi, *et al.* High Energy Physics and Nuclear Physics, 2001, 25(Supp): 110—115
8 YU Wanli, ZHENG Qiuju, TIANG Yulan, *et al.* Nuclear Instruments and Methods in Physics A, 2002, 491(1-2): 302—306

Calculation of crystal defects direction with white synchrotron radiation

YU Wanli¹ TIAN Yulian²

1 (*College of Material Science and Engineering, Yanshan University, Qinhuangdao 066004*)

2 (*Institute of High Energy Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100039*)

Abstract Calculating the direction of crystal defects is an essential task in the crystal research. Some previously used methods need monochromatic X-ray radiation, and the crystal orientation should be adjusted precisely. The authors proposed a new method not long ago, in which white synchrotron radiation was used instead of the monochromatic radiation and the crystal orientation needn't to be adjusted. The calculating method is introduced in detail and the calculation error is estimated.

Key words Crystal defect, Orientation, Synchrotron radiation

CLC O713