

晶体衍射的非完整 Kossel 线利用

张 建 中

(南京大学物理系)

1988 年 1 月 12 日收到

在发散束 X 射线晶体衍射中,大量出现的非完整 Kossel 线通常是无用的.利用双元素辐射方法可从这些不完整的线条获取晶面间距、晶面倾角、底片位移等信息,从而能从一次实验的衍射花样上同时完成衍射指标化、单晶定向和点阵常数的精密测定.

一、引 言

X 射线晶体衍射的发散束方法(即 Kossel 法^[1])是研究结构、相变、缺陷等十分有用的手段.它能把单晶定向和点阵常数的测定合为一体.在一张衍射花样照片上,能把同一晶形 $\{hkl\}$ 中各等效衍射分开.这是其它的方法难以办到的.和透射法相比,背射法简便易行,它不破坏样品,有大量衬度好的衍射线(称为 Kossel 线),能带来丰富的信息.近年来,这个方法已用于薄膜、界面、外延^[2]等方面的研究.

然而,因衍射几何的原因,如靶管遮挡及底片中心孔的影响,一张背射照片上不可避免会有许多 Kossel 线不完整.严重时甚至所有的线条都不完整(图 1).传统的办法如多次曝光法^[3]、曲线拟合法^[4]不能利用这些非完整的线条去测点阵常数或定向.它们毫无用处.因此背射法的衍射线虽多,真正能利用的很少.由于这个因素,多年来发散束技

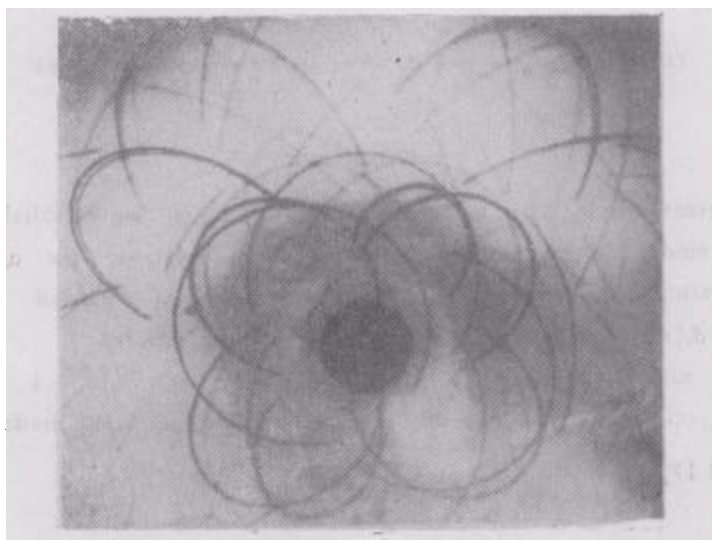


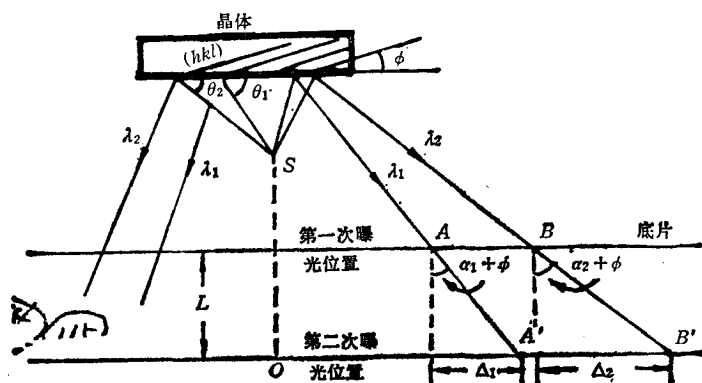
图 1 红宝石晶体的不完整 Kossel 线 (Cu 靶,背射,一次曝光)

术在晶体衍射的应用上受到限制,优点未能真正发挥。

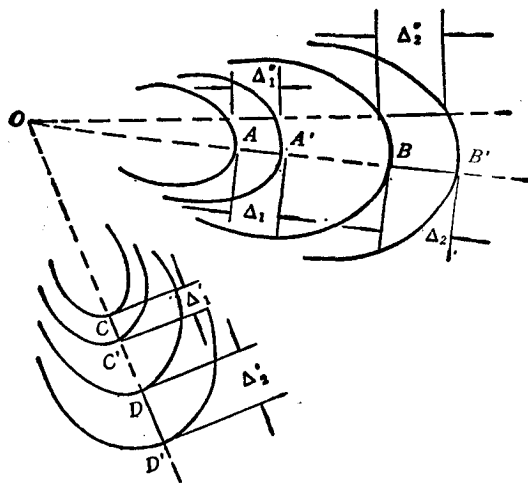
本文探讨用双元素辐射的方法去解决非完整膜 Kossel 线的利用问题。近年来,获得这种双辐射的 X 射线靶的研制有了进展。Schutz 等人^[5]为研究样品应变随深度的分布,利用不同波长 X 射线的不同穿透特性,报道了双元素靶的研制;范得培等人^[6]改进了制靶技术,使双元素发散束 X 射线的获得不再困难。由于有两个已知波长的射线可同时满足 Bragg 条件,求解非完整衍射锥的问题有了可能。

二、由非完整的膜 Kossel 线测量晶面间距和倾角

图 2(a) 是双元素 X 射线发散束背射膜 Kossel 衍射的示意图。S 是点 X 射线源,它由聚焦的电子束轰击双元素靶产生,能激发两种元素的 K_{α} 特征谱线并形成发散的 X 射线束(发散角约 2π 球面度)投向晶体。由于入射光中有各种倾角的射线,能迎合所有 (hkl) 晶面的衍射条件。可以想像,一张照片上将出现大量的膜 Kossel 线条。它们很像



(a) 背射膜 Kossel 衍射几何 (双辐射,两次曝光)



(b) 不完整膜 Kossel 线示意图 (A, A'; B, B'; O; Δ₁, Δ₂ 与图 2(a) 中的对应)

图 2

椭圆,实为四次曲线^[7].又由于入射光中含有两种特征波长,每一 hkl 衍射将由双重的赝 Kossel 线组成.如图 2(b) 中的 A, B 两条不完整的赝 Kossel 线属于同一 hkl 衍射. (A 由 λ_1 引起, B 由 λ_2 引起). 当底片经一次曝光后平移 L 距离再曝光一次 (二次曝光法), A, B 线条将分别移到 A', B' 位置. 设 Δ_1, Δ_2 分别为 A, B 线沿公共长轴方向的位移, 根据图 2(a) 的衍射几何及 Bragg 条件, 可建立以下方程组:

$$\tan(\alpha_1 + \phi) = \frac{\Delta_1}{L} \quad (1)$$

$$\tan(\alpha_2 + \phi) = \frac{\Delta_2}{L}, \quad (2)$$

$$2d \cos \alpha_1 = \lambda_1, \quad (3)$$

$$2d \cos \alpha_2 = \lambda_2 \quad (\lambda_1 > \lambda_2), \quad (4)$$

式中 ϕ 为 (hkl) 晶面对样品表面的倾角, d 为晶面间距, $\alpha_i = \pi/2 - \theta_i$ ($i = 1, 2$); θ_i 为与 λ_i 有关的 Bragg 角. 联解上方程组, 并令

$$A \equiv \alpha_2 - \alpha_1 = \arctan\left(\frac{\Delta_2}{L}\right) - \arctan\left(\frac{\Delta_1}{L}\right), \quad (5)$$

可得到

$$d = \frac{1}{2 \sin A} [\lambda_1^2 + \lambda_2^2 - 2\lambda_1\lambda_2 \cos A]^{1/2}, \quad (6)$$

$$\phi = \arctan\left(\frac{\Delta_i}{L}\right) - \arccos\left(\frac{\lambda_i}{2d}\right) \quad (i = 1, 2), \quad (7)$$

式中 Δ_1 和 Δ_2 可在底片上直接测量. L 是两次曝光中底片的位移, 通常由精密块规控制. 由 (6) 式一旦求得 d 值, 相应的赝 Kossel 线的衍射指数 hkl 便可确定下来. 因此用这个方法还能顺利解决衍射指标化的问题. 由 (7) 式, 当求得几个重要衍射面对样品表面的倾角 ϕ 后, 晶体的取向便能确定. 值得一提的是, 由于非完整的赝 Kossel 线可以利

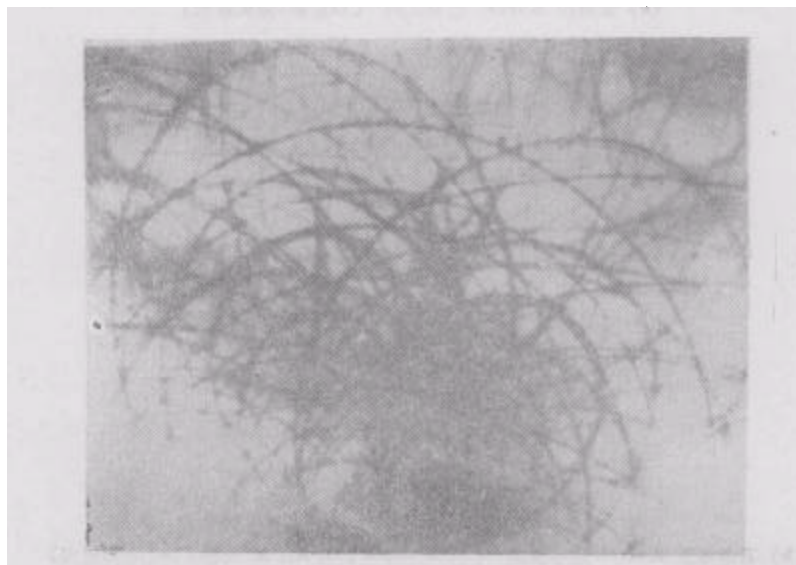


图 3 Si 单晶的两组 620 不完整赝 Kossel 线 (Ni-Cu 靶, 背射, 两次曝光)

用,从一张衍射照片(或一次实验)就可得到大量 d 值,因而可进行单晶的点阵常数精密测定并能得到消除系统误差的外推值. 其它的单晶方法不能做到这一点.

图 3 是一张 Si 单晶的两组 620 层 Kossel 线衍射花样照片,用 Ni-Cu 辐射,两次曝光. 每一组的 Ni K_{α_1} 和 Cu K_{α_1} 双线经两次曝光后变成了 4 条曲线. 因光源焦点很细,它们的 K_{α_1} 和 K_{α_2} 都能分开. 由于靶管的遮挡,这两组层 Kossel 线都是不完整的. 现作为实例,用其中一组(长轴方向向上的)不完整的层 Kossel 线进行定向和点阵常数测定. 有关数据如下:

波长 $\lambda_1 = \lambda_{\text{Ni}K_{\alpha_1}} = 1.65784 \text{ \AA}$, $\lambda_2 = \lambda_{\text{Cu}K_{\alpha_1}} = 1.5405981 \text{ \AA}$;

样品 区熔本征 Si 单晶, $\langle 111 \rangle$ 切片;

底片移动距离 $L = 15.620 \text{ mm}$ (精密块规厚度);

底片上层 Kossel 线移动距离(经收缩校正) $\Delta_1 = 16.7962 \text{ mm}$; $\Delta_2 = 25.1629 \text{ mm}$;

测量仪器 比长仪(读数精度 $1 \mu\text{m}$);

测试温度 $24 \pm 0.5^\circ\text{C}$;

实验仪器 理学 CN4180E1 微焦点 X 射线机;管电压 40 kV;靶电流 $50 \mu\text{A}$.

由(5),(6),(7)式可计算出

$$d_{620} = 0.85871 \text{ \AA}; \quad \phi = 31.9^\circ.$$

从 d 的数值可求得 Si 单晶的点阵常数为

$$a = 5.43096 \text{ \AA},$$

与 Bond 方法^[6]测得的 $a = 5.430935 \text{ \AA}$ 值相近. 又根据样品表面的名义法向为 $\langle 111 \rangle$; $\langle 620 \rangle$ 和 $\langle 111 \rangle$ 之间的夹角为 43.1° , 现测出 $\langle 620 \rangle$ 方向和样品表面法向的夹角为 31.9° , 可定出 $\langle 111 \rangle$ 方向偏离表面法向 11.2° (沿该 620 长轴方向).

三、用非完整的层 Kossel 线计算底片移动的距离

由以上的实例可看出,两次或多次曝光法可自动消除样品和底片到光源距离的误差. 这两个量很难测准,但并不出现在 d 和 ϕ 的计算公式中,所以精度较高. 尽管如此,仍有一个误差源没有消除——底片移动的距离. 迄今所有这类实验均用精密块规厚度表示它. 而块规本身的误差及底片架和块规的接触误差是不可避免的,特别是后者无法计算. 另外,受块规尺寸的限制,底片位置不能任意调节,难以满足特殊需要而且很不方便. 现可用两组,甚至一组不完整的层 Kossel 线把底片移动的距离 L 计算出来. 传统的块规不再需要,它的误差得以避免.

1. 两组非完整的层 Kossel 线法

如图 2 (b)所示,在底片上选同一晶形 $\{hkl\}$ 的任两组层 Kossel 线,如 A, B 和 C, D 两组. 其中 A, C 由 λ_1 引起; B, D 由 λ_2 引起. 经两次曝光后, A, B 移至 A', B' ; C, D 移至 C', D' . 分别量出它们在公共长轴方向的移动距离 $\Delta_1, \Delta_2; \Delta'_1, \Delta'_2$. 由图 2 (a) 的衍射几何,并注意同一晶形中各等效晶面的 Bragg 角相同,但它们的倾角不同,可以建立以下方程组:

$$\tan(\alpha_1 + \phi_1) = \frac{\Delta_1}{L}, \quad (8)$$

$$\tan(\alpha_2 + \phi_1) = \frac{\Delta_2}{L}, \quad (9)$$

$$\tan(\alpha_1 + \phi_2) = \frac{\Delta'_1}{L}, \quad (10)$$

$$\tan(\alpha_2 + \phi_2) = \frac{\Delta'_2}{L}. \quad (11)$$

联解上方程组可得到以下关系:

$$\arctan\left(\frac{\Delta_2}{L}\right) - \arctan\left(\frac{\Delta_1}{L}\right) = \arctan\left(\frac{\Delta'_2}{L}\right) - \arctan\left(\frac{\Delta'_1}{L}\right). \quad (12)$$

上式可写成

$$\frac{\Delta_2 - \Delta_1}{L^2 + \Delta_2\Delta_1} = \frac{\Delta'_2 - \Delta'_1}{L^2 + \Delta'_2\Delta'_1}. \quad (13)$$

由此可解得底片移动的距离

$$L = \left[\frac{\Delta_2\Delta_1(\Delta'_2 - \Delta'_1) - \Delta'_2\Delta'_1(\Delta_2 - \Delta_1)}{(\Delta_2 - \Delta_1) - (\Delta'_2 - \Delta'_1)} \right]^{1/2} \quad (\Delta_2 \neq \Delta'_2; \Delta_1 \neq \Delta'_1). \quad (14)$$

2. 一组非完整的赝 Kossel 线法

如果不能找到同一晶形的两组等效衍射, 可以用一组不完整的赝 Kossel 线计算 L . 例如用图 2 (b) 中的 A, B 组线条. 此时除量出距离 Δ_1 和 Δ_2 以外, 还需量出 Δ'_1 和 Δ'_2 , 它们是两次曝光中 A, B 线沿底片上另一方向移动的距离. 注意到不同方向上晶面倾角 ϕ 不同, 但 Bragg 角相同 (因为同一衍射), 可建立以下方程组:

$$\tan(\alpha_1 + \phi_1) = \frac{\Delta_1}{L}, \quad (15)$$

$$\tan(\alpha_2 + \phi_1) = \frac{\Delta_2}{L}, \quad (16)$$

$$\tan(\alpha_1 + \phi_2) = \frac{\Delta'_1}{L} \quad (17)$$

$$\tan(\alpha_2 + \phi_2) = \frac{\Delta'_2}{L}. \quad (18)$$

它们和方程组 (8)–(11) 的形式完全一样, 可得到和 (14) 式相同的解, 只是 Δ'_1, Δ'_2 分别取代了 Δ'_1, Δ'_2 .

利用双辐射两次曝光法可从各种赝 Kossel 线 (完整的和非完整的) 获得底片移动数据, 从而可用统计平均减少测量的偶然误差, 得到准确度很高的 L 值.

[1] H. Yakowitz, *Advances in Electronics and Electron Physics, Suppl.* **6** (1969), 361.

[2] O. Igarashi, *Japan. J. Appl. Phys.*, **15** (1976), 1435.

[3] T. Ellis *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **35** (1964), 3364.

- [4] H. M. Berg *et al.*, *Advances in X-Ray Analyses*, **18** (1974), 454.
- [5] R. J. Schutz *et al.*, *J. Appl. Cryst.*, **14** (1981), 352.
- [6] 范得培、张建中、丘第荣, *物理*, **15**(1986), 59.
- [7] B. A. Newman, *J. Appl. Cryst.*, **3**(1970), 191.
- [8] W. L. Bond, *Acta Cryst.*, **13**(1960), 814.

THE UTILIZATION OF INCOMPLETE PSEUDO-KOSSEL LINES IN CRYSTAL DIFFRACTION

ZHANG JIAN-ZHONG

(Department of Physics, Nanjing University)

ABSTRACT

The great number of incomplete pseudo-Kossel lines, which can not be avoided and are normally useless in divergent-beam X-ray diffraction, can be used for obtaining the information about interplanar spacings, inclination angles of diffraction planes and the film shifts in multiple exposures with the dual-element radiation method. Therefore, those problems such as the identification of diffraction indices, the determination of crystal orientation and the precise measurement of lattice constants etc. can be solved by the use of diffraction patterns in one experiment.