

邻苯二甲酸氢钾(KAP)的同步辐射 截面形貌术¹⁾

赵 庆 兰

(中国科学院福建物质结构研究所)

1987年3月19日收到

本文叙述邻苯二甲酸氢钾(KAP)晶体内部不完整性(滑移位错等)的同步辐射截面形貌图的衬度研究工作。有关缺陷象衬度随波长增加而提高的实验事实同引用均匀畸变动力学的理论所引入的平均应变梯度参数 β 和 β_{eff} 的理论计算结果,相当符合,它为应用同步辐射源来清晰显示单晶中有关缺陷,提供一个波长选择的依据。

同步辐射源(SRS)为X射线衍射形貌术提供了一种高亮度(2.0GeV和200mA以上)、高准直性(发散度小于 10^{-4} — 10^{-3} rad)、波长可调和偏振(σ , π , $\sigma + \pi$)输出的特征光源,对本技术领域的应用和发展创造了极为有利的条件。本实验目的着重在观测波长变化对缺陷象衬度的影响,为选用同步辐射源的相应波长,进行单晶内部有关不完整性的衬度观测,提供一个选择途径。

实 验 观 测

本实验工作系在英国 Daresbury 同步辐射实验中心和 Bristol 大学 H.H. Wills 物理实验室完成的。其同步辐射源,在水平孔径角为 1mrad,束流 1000mA 和谱线宽度 0.1% 时,峰值强度为 5×10^{13} photon/s。白光形貌相机离光源距离是 80m,若以所测量的最大光斑的水平尺寸 14.8mm (最小的只有 0.4mm) 进行估计,对于水平狭缝为 1mm 宽度的相机系统,出射光束的水平角发散度仅为 $0.09 \text{ rad} \cdot \text{s}$,因而拍摄一张水平尺寸达到 10mm 的同步辐射截面形貌图,光束的水平发散度与常规形貌相机上第二狭缝宽度为 0.1mm 的相比大体相同,而曝光时间却由实验室常规的几个或几十个小时缩短到秒或分的数量级。

实验样品是 KAP 单晶的(001)解理晶片。样品在乙醇和水的混合液中进行化学抛光后,经过光学技术、截面形貌技术、立体对视差技术和 pendellösung 条纹级数等方法测量和核对后,晶片的实际厚度为 0.671mm。经实验室常规形貌术鉴定,于晶片左部入射面一侧附近存在以(001)为滑移面和 Burgers 矢量 $\mathbf{b} = [1\bar{1}1]$ 的滑移位错,在右部大区域还有更多而间距较小的同类滑移位错和笔直的滑移带。

1) 本实验系作者在英国 Daresbury 同步辐射实验中心完成的。

表 1 X 射线流量随能量和波长变化

$\lambda(\text{\AA})$	$E = 1.5$	1.6	1.7	1.8	1.9	2.0(GeV)
	$\lambda_c = 9.198$	7.580	6.320	5.324	4.527	3.882
1.0	0.0015	0.0075	0.0262	0.0695	0.1531	0.2891
1.5	0.0275	0.0796	0.1822	0.3503	0.5914	0.9041
2.0	0.1132	0.2511	0.4672	0.7633	1.132	1.558
2.5	0.2600	0.4920	0.8090	1.199	1.645	2.127
3.0	0.4476	0.7622	1.155	1.605	2.091	2.594
3.5	0.6550	1.034	1.478	1.962	2.465	2.969
4.0	0.8667	1.294	1.770	2.271	2.775	3.269

λ_c 为临界波长, 根据实验的要求, 同步辐射源的有效波长范围允许扩充到 $\frac{1}{4} \lambda_c$.

无扭摆磁铁的同步辐射源, X 射线流量随能量和波长变化的情况列于表 1, 并以 10^{10} photon/(mrad · mA · s · 0.1% 带宽) 为单位.

考虑有机物单晶较易发生辐照损伤, 而且曾在 2.0 GeV 和 80 mA 以上条件下所出现的严重损伤现象, 实验工作选择了这样的波长范围, 它既具有最大的峰值强度, 又有最小的 X 射线流量(参照表 1). 对于本单晶, 在 1.0 和 1.5 $\text{\AA}$ 波长范围, 当辐射源在 2.0 GeV 运转时, 实验的束流为 50—30 mA.

原常规的透射扫描形貌图的证据表明, 上述缺陷均位于原入射面一侧附近, 为了提高缺陷象的清晰度, 样品入射面调换为出射面后, 安装在形貌台的白光相机(TOP1)上. 在这种相机上, 实验晶片待测的衍射平面的法线方向可以方便地以光束方向为轴任意转动, 当平面法线方向平行或垂直于入射光束的电矢量方向时, 分别获得 π 和 σ 偏振, 如果在其他角度位置, 可获得不同混合组份的 σ 和 π 偏振. 本实验的入射光束的电矢量方向平行于 Borrmann 三角形(π 偏振).

一个比较性的实验工作, 除了应该控制底板具有相同的曝光量和显影密度外, 还有底板的乳剂厚度的选择问题. 底板的切割、装拆、曝光、显影和定影等处理, 应当十分细心不得有任何外部引入的损伤, 否则它们都会影响所显示缺陷象的衬度. 乳剂的感光密度取决于在该波长下乳剂的吸收系数, 不同的乳剂厚度也直接影响了它的吸收效率. 就 Ilford-L₄ 核乳剂底板系列而言, 几种乳剂厚度对几个常用波长的吸收系数列于表 2. 表 2 中那些量直接量度了底板的感光密度, 显然, 就应用 1.0—1.5 $\text{\AA}$ 波长范围的同步辐射源而言, 最佳条件是利用厚度 25 μm 的乳剂来记录截面形貌图. 在实验过程中, 选用形貌图水平方向的象畸变为最小的 (1 $\bar{1}\bar{1}$) 衍射晶面, 以厚度 25 μm 的 Ilford-L₄ 高分辨率核乳剂底板分别记录波长为 1.00、1.25 和 1.50 $\text{\AA}$ 的衍射, 并且与常规的 MoK α (0.709 $\text{\AA}$) 形貌图组成波长系列, 用来观测缺陷象的衍射衬度变化.

对感光乳剂进行充分和均匀显影, 都会提高缺陷象的清晰度和逼真性, 一般推荐 L₄ 核乳剂底板在低温(0° 或 0℃ 以下)进行显影处理, 这样就能控制显影过程中显影剂在感光乳剂中的扩散速度与显影速度大体相同, 以保证充分和均匀显影, 如果显影速度远大于扩散速度, 势必引起分层显影, 甚至表层乳剂颗粒因显影过度而颗粒增粗, 以至降低本来具有的分辨率. 因条件限制, 本显影处理只在 13℃ 下进行.

表 2 Iford-L₄ 核乳胶底板的吸收系数

射线类型 \ 吸收系数 \ 乳胶厚度(μm)	100	50	25
AgK_α (0.5608 Å)	0.438	0.662	0.813
MoK_α (0.7107 Å)	0.209	0.457	0.676
CuK_α (1.5418 Å)	0.00468	0.0684	0.262

综合实验结果表明,上述诸类缺陷象的衬度均随波长的增加而提高,图 1—4 (见图版 I) 分别示出 $\lambda = 0.71(\text{MoK}_\alpha)$, $\lambda = 1.00, 1.25$ 和 1.50 Å (SRS) 的同步辐射截面形貌图。

结 果 讨 论

Lang 等人^[1]曾应用同步辐射源研究金刚石晶片由离子注入等引入的缺陷衬度时,观测到有关缺陷象衬度均随波长增加而单调下降,我们在离子型有机单晶 KAP 的同类实验工作中,却观测到相反的实验现象。根据位错核心区周围的远程弹性畸变范围的理论计算结果,基本上适用于下面的理论。

由 X 射线衍射动力学有关理论和畸变晶体的 Penning 和 Polder^[2] 理论知道,均匀畸变晶体的平均应变梯度参数 β 为

$$\beta = \frac{2 \tan \theta}{c \chi_h} \left(\cos^2 \theta \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} - \sin^2 \theta \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} \right).$$

这里 x 和 z 为分别垂直和平行于布喇格平面的坐标, $\frac{\partial^2 u}{\partial z^2}$ 为平面的平均曲率, $\frac{\partial^2 u}{\partial x^2}$ 为平面的间距变化梯度, θ 为布喇格角度, $c = |\cos 2\theta|$ (π 偏振因子), $\chi_h = -\frac{r_e \lambda^2 F_h}{\pi V} \times$ ($r_e = 2.8179 \times 10^{-13} \text{ cm}$, 为经典电子半径, λ 为 X 射线波长, F_h 为结构因子和 V 为单胞体积)。在一般情况下,透射形貌术的 θ 角度是小的,如果 $\frac{\partial^2 u}{\partial x^2}$ 的值与 $\frac{\partial^2 u}{\partial z^2}$ 相比,其值不大,那么

$$\beta \approx \frac{\sin 2\theta}{c \chi_h} \cdot \frac{\partial^2 u}{\partial z^2}.$$

事实上,根据螺型位错的形成机制和形貌图中那些滑移带的取向,那些 (001) $[1\bar{1}0]$ 螺型位错沿着大约与 $[1\bar{1}0]$ 成 45° 方向滑移时,垂直于位错线走向的点阵平面将发生晶面间距变化和晶面弯曲,而且使晶面扭曲范围扩大,但是其间距变化梯度仍保持大体不变,故有 $\frac{\partial^2 u}{\partial z^2} > \frac{\partial^2 u}{\partial x^2}$ 。

Borrmann 三角形在晶体中沿入射线一侧的边长,即 $t_{\text{eff}} = t_0 / \cos(\alpha - \theta)$, t_0 为晶片厚度,衍射平面和晶片表面法线的夹角 $\alpha = 21.2^\circ$,因而

$$\beta t_{\text{eff}} \approx \frac{t_{\text{eff}} \sin 2\theta}{c \chi_h} \cdot \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} \approx k \cdot t_{\text{eff}} \cdot \tan 2\theta / |F_h|,$$

其中 k 为常数。

图中那些晶体不完整性,经 X 射线形貌术鉴定^[3],那些滑移位错属纯螺型位错。螺型位错的象宽度估值^[4]为 $W_s \approx g \cdot b / 2\pi D$, 其中 g 为衍射矢量, b 位错的 Burgers 矢量, 而 $D = \frac{r_c F_h c \lambda}{\pi V \cos \theta}$ 为色散面的直径。

从衍射光束的截面形貌图强度剖面的理论计算结果表明,对理想无吸收的晶体,边缘效应十分显著,随着晶体的线性吸收系数 μ_1 和实际厚度 t_{eff} 的乘积 $\mu_1 t_{\text{eff}}$ 增大,边缘效应逐渐减弱,甚至消失^[5]。表 3 列出有关理论计算的结果^[2]。

表 3 点阵畸变与缺陷象衬度等关系表

βt	边缘效应	积分强度	条纹间距	衍射衬度
0	110	1.571	1.000	100
1	83	1.844	0.898	67
2	37	2.086	0.707	17
3	17	2.308	0.555	8
4	8	2.510	0.447	6
5	4	2.696	0.371	4
10	≈ 0	3.493	0.196	≈ 0
20	≈ 0	4.708	0.099	≈ 0

依据上述的相应理论, KAP 晶体的(111)晶面衍射的有关晶体学和动力学等参数的计算值均列于表 4 中。

从表 4 所列的数据,并参照截面形貌图上衍射光束强度的空间分布计算曲线和表 3, 不难推断,同步辐射截面形貌图上缺陷象的衬度高低是多种原因所致,其衬度随波长增加而提高,主要有以下几个原因:

1. 波长增加时, βt_{eff} 减小,而积分强度又随 βt_{eff} 减少而下降,周围完整区的积分衍射强度降低,提高了缺陷象形成的信噪比。

2. 随着波长增加,消光距离 $\xi_g (= 1/D)$ 值减小,从而位错线(象)的宽度 w_s 变窄,波长增加各为 $1/4 \text{ \AA}$ 时,位错象宽度减少了 20—30%,而波长从 $0.71 \text{ \AA}$ 变化到 $1.50 \text{ \AA}$ 时,宽

表 4 KAP 单晶 (111) 晶面衍射的晶体学和动力学参数计算值 (晶面间距 $d = 5.00 \text{ \AA}$, (001) 晶片, 晶片厚度 $t_0 = 0.671 \text{ mm}$, 结构因子的计算值 $F_c = 67.7$)

λ ($\text{\AA}$)	θ ($^\circ$)	μ_1 (cm^{-1})	$1/D$ (μm)	W_s (μm)	t_{eff} (mm)	$\mu_1 t_{\text{eff}}$	βt_{eff}^*
0.71	4.07	6.15	201.3	64.1	0.702	0.43	1.00
1.00	5.74	16.04	144.0	45.8	0.696	1.12	0.71
1.25	7.18	30.16	116.2	37.0	0.692	2.09	0.57
1.50	8.63	50.35	97.9	31.2	0.687	3.46	0.48

* 将最大的 βt_{eff} 值归一。

度值竟减小一半,从而提高了象的清晰度。

3. 波长增大时, $\mu_t t_{\text{eff}}$ 值提高, 缺陷象翼区散射的杂散波适当被吸收, 同时在一定范围内, 边缘效应有所减弱。

4. t_{eff} 值的轻微缩小, 减少了缺陷区衍射光束在晶体中的行程和散射作用, 对提高缺陷象的衬度都会有贡献。显然, βt_{eff} 因子的影响是主要的。

图 5 示出 βt_{eff} 随波长 λ 的变化情况。看来当波长不断增加时, βt_{eff} 趋近某一个值, 即缺陷象的衬度基本上保持不变, 换句话说, 以较高衬度显示缺陷象的波长存在一个临界值 λ_c , 当波长进一步增加, 既对衍射衬度无多大改善, 又可能大大增加晶体的吸收作用。

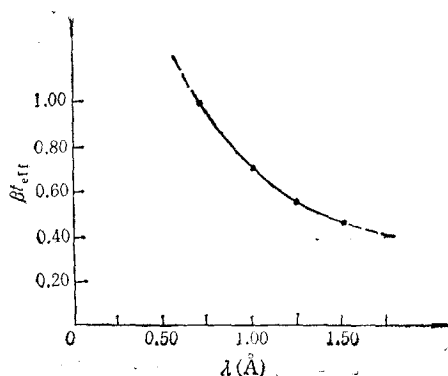


图 5

作者对 A. R. Lang 教授和英国 Daresbury 同步辐射实验中心提供的实验条件和资助, 表示衷心感谢。

- 1 A. R. Lang, A. P. W. Makepeace, M. Moore and W. G. Machado, *J. Appl. Cryst.*, **16**(1983), 113.
- 2 P. Penning and D. Polder, *Philips Res. Rep.*, **16**(1961), 419.
- 3 赵庆兰, 全国第三届固体缺陷会议论文集, 武汉, (1985).
- 4 A. R. Lang, *Diffraction and Imaging Techniques in Material Science*, eds. S. Amelinckx, R. Gevers and J. van Landuyt, North-Holland Publishing Company, (1978), p. 623.
- 5 N. Kato, *J. Phys. Soc. Japan*, **19**(1963), 971.

THE SECTION TOPOGRAPHY OF SYNCHROTRON RADIATION (SST) ON THE CRYSTAL OF POTASSIUM ACID PHTHALATE (KAP)

ZHAO QING-LAN

(Fujian Institute of Research on the Structure of Matter, Academia Sinica, Fuzhou)

ABSTRACT

The defect imaging contrast on the section topographs for the crystal of potassium acid phthalate (KAP) has been studied, using the synchrotron radiation. The experimental results show that the diffraction contrast due to defects in the crystal is considerably increased with the wavelength increasing in a certain range. The dynamical theory of X-ray diffraction for homogeneously deformed crystals with average values of the strain gradient parameter β is taken to interpret the experimental results, for which the factor βt_{eff} plays an important role in the defect imaging contrast formation. We propose that it is possible to choose an appropriate wavelength of synchrotron radiation which could give out higher diffraction contrast for defects in crystals.