

# 近完美晶体 X 射线统计动力学

李明 麦振洪 崔树范

中国科学院物理研究所, 北京 100080

1992年10月19日收到; 1993年7月13日收到修改稿

将 Takagi-Taupin 方程的一种新的表述形式应用于近完美晶体中, 得到存在随机分布的微小晶格畸变时, 近完美晶体的衍射统计动力学方程。引出静态 Debye-Waller 因子表征晶体的完美性, 并得到 Laue 衍射条件下一束窄的入射 X 射线在晶体中激发的波场的强度分布表达式; 讨论了该表达式在研究晶体中 nm 数量级点状微缺陷方面的应用。

**PACC:** 6110D; 7870B

## 一、引言

描述畸变晶体 X 射线动力学衍射的 Takagi-Taupin 方程<sup>[1,2]</sup>原则上可以应用于解决任意畸变场的晶体衍射问题。但是, 当晶体中存在大量无规分布的畸变时, 要严格计算晶体中的 X 射线波场是不可能的, 必须用统计方法处理。1973 年, Kato<sup>[3]</sup> 根据散射矩阵理论, 导出一个与 Takagi-Taupin 方程等价的方程组, 该方程组直接地表述了晶格畸变对晶体中波场相互作用的影响, 并且可以由此十分方便地引入统计描述。本文用一种更直接的方式导出 Takagi-Taupin 方程的 Kato 表述, 通过引入静态 Debye-Waller 因子, 将其推广到存在随机晶格畸变的近完美晶体中, 得到 X 射线衍射的统计动力学方程。作为方程应用的一个特例, 作者推导了在 Laue 透射条件下, 一束窄的入射 X 射线在晶体中激发的波场的表达式, 并探讨了应用该表达式研究晶体中 nm 数量级点状微缺陷的可能性。

## 二、基本方程

X 射线在晶体中的传播满足如下方程:

$$\nabla^2 D^T + 4\pi K^2 D^T + \nabla \times \nabla \times (\chi D^T) = 0, \quad (1)$$

式中  $K$  为 X 射线在真空中的波矢,  $\chi$  为电极化率。对完美晶体,  $\chi$  为实空间的三维周期函数, 方程(1)的解为 Bloch 波,

$$D^T(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{g}} D_{\mathbf{g}}^T \exp(2\pi i \mathbf{K}_{\mathbf{g}} \cdot \mathbf{r}), \quad (2a)$$

式中  $\mathbf{K}_{\mathbf{g}} = \mathbf{K}_0 + \mathbf{g}$ ,  $\mathbf{K}_0$  为晶体中波矢,  $\mathbf{g}$  为倒易空间矢量。当晶格有畸变时, (2a) 式

不再严格成立,但如果此时作一修正,认为(2a)式等号右端指数项前面的系数是实空间的缓变函数,即

$$D^T(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{g}} D_{\mathbf{g}}^T(\mathbf{r}) \exp(2\pi i \mathbf{K}_{\mathbf{g}} \cdot \mathbf{r}), \quad (2b)$$

则当  $D_{\mathbf{g}}^T(\mathbf{r})$  满足 Takagi-Taupin 方程时, (2b) 式可以作为方程(1)的一个近似解<sup>[1,2]</sup>. 下面推导  $D_{\mathbf{g}}^T(\mathbf{r})$  应满足的方程.

当晶格轻微畸变时,在  $\mathbf{r}$  点附近的电极化率  $\chi(\mathbf{r})$  可以近似地取为  $\mathbf{r}_0$  点未畸变时的  $\chi(\mathbf{r}_0)$  值. 设晶格的畸变场为  $\mathbf{u}(\mathbf{r})$ , 则  $\mathbf{r} = \mathbf{r}_0 + \mathbf{u}(\mathbf{r})$ , 这样可以将  $\chi(\mathbf{r})$  展开成

$$\chi(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{g}} \chi_{\mathbf{g}} \exp[2\pi i \mathbf{g} \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{u})]. \quad (3)$$

将(2b), (3)式代入(1)式中,略去二阶以上无穷小量,并取双光束近似,有

$$(\mathbf{s}_0 \cdot \nabla) D_0^T = -i\pi \left( \frac{K_0^2 - K^2 - \chi_0 K_0^2}{K_0} \right) D_0^T - i\pi \chi_{-} K_0 \exp(2\pi i \mathbf{g} \cdot \mathbf{u}) D_{\mathbf{g}}^T, \quad (4a)$$

$$(\mathbf{s}_{\mathbf{g}} \cdot \nabla) D_{\mathbf{g}}^T = -i\pi \left( \frac{K_{\mathbf{g}}^2 - K^2 - \chi_0 K_{\mathbf{g}}^2}{K_{\mathbf{g}}} \right) D_{\mathbf{g}}^T - i\pi \chi_{\mathbf{g}} K_{\mathbf{g}} \exp(2\pi i \mathbf{g} \cdot \mathbf{u}) D_0^T, \quad (4b)$$

式中  $\mathbf{s}_0, \mathbf{s}_{\mathbf{g}}$  为  $\mathbf{K}_0, \mathbf{K}_{\mathbf{g}}$  方向的单位矢量.  $D_{\mathbf{g}}^T$  和  $D_0^T$  分别记  $D_{\mathbf{g}}^T$  和  $D_0^T$  在垂直于  $\mathbf{K}_0, \mathbf{K}_{\mathbf{g}}$  方向的分量.

引入偏振因子

$$\begin{aligned} C &= 1 && \sigma \text{ 偏振态;} \\ C &= \cos 2\theta_{\mathbf{g}} && \pi \text{ 偏振态.} \end{aligned}$$

(4)式可以写成标量形式

$$\frac{\partial D_0^T}{\partial s_0} = -i\pi \frac{K_0^2 - K^2 - \chi_0 K_0^2}{K_0} D_0^T - i\pi K_0 C \chi_{-} \exp(2\pi i \mathbf{g} \cdot \mathbf{u}) D_{\mathbf{g}}^T, \quad (5a)$$

$$\frac{\partial D_{\mathbf{g}}^T}{\partial s_{\mathbf{g}}} = -i\pi \frac{K_{\mathbf{g}}^2 - K^2 - \chi_0 K_{\mathbf{g}}^2}{K_{\mathbf{g}}} D_{\mathbf{g}}^T - i\pi K_{\mathbf{g}} C \chi_{\mathbf{g}} \exp(-2\pi i \mathbf{g} \cdot \mathbf{u}) D_0^T. \quad (5b)$$

作数学变换

$$D_0 = D_0^T \exp \left( i\pi \frac{K_0^2 - K^2 - \chi_0 K_0^2}{K_0} s_0 + i\pi \frac{K_{\mathbf{g}}^2 - K^2 - \chi_0 K_{\mathbf{g}}^2}{K_{\mathbf{g}}} s_{\mathbf{g}} \right), \quad (6a)$$

$$D_{\mathbf{g}} = D_{\mathbf{g}}^T \exp \left( i\pi \frac{K_0^2 - K^2 - \chi_0 K_0^2}{K_0} s_0 + i\pi \frac{K_{\mathbf{g}}^2 - K^2 - \chi_0 K_{\mathbf{g}}^2}{K_{\mathbf{g}}} s_{\mathbf{g}} \right). \quad (6b)$$

该变换的物理意义在文献[4]中有详细论述. 在此变换下, (5)式变成

$$\frac{\partial D_0}{\partial s_0} = i\kappa_{-} \exp(2\pi i \mathbf{g} \cdot \mathbf{u}) D_{\mathbf{g}}, \quad (7a)$$

$$\frac{\partial D_{\mathbf{g}}}{\partial s_{\mathbf{g}}} = i\kappa_{\mathbf{g}} \exp(2\pi i \mathbf{g} \cdot \mathbf{u}) D_0, \quad (7b)$$

式中取(5a)和(5b)式  $K_{\mathbf{g}} \approx K_0$ , 并令

$$\kappa_{\mathbf{g}} = i\pi K_0 \chi_{\mathbf{g}} = \frac{\lambda C}{V} \frac{e^2}{mc^2} F_{\mathbf{g}}, \quad (8)$$

$V$  为晶胞体积,  $C$  为偏振因子, 其余常数按惯常用法。

方程(7)与通常使用的 Takagi-Taupin 方程相比, 更加直接地反映了晶格畸变对晶体

中直射波(以下简称O波)与衍射波(以下简称G波)相互作用的影响。它表明(见图1), 从晶体表面进入的人射光束, 经过不断的 Bragg 反射, 形成曲曲折折的路径, 而整个晶体中的波场就是由这些路径组合而成。其中指数项  $\exp(2i\pi\mathbf{g} \cdot \mathbf{u})$  揭示出晶格的畸变在每一次反射时都对波场的相位进行一次修正。这样方程(7)便将晶格畸变场与 X 射线波场的相互作用显含地表达出来, 因而包含了更加直接而丰富的物理内容。

当晶体中畸变场随机分布时, 可取(7)式的平均值,

$$\frac{\partial \langle D_0 \rangle}{\partial s_0} = i\kappa_{-g} \langle \exp(2i\pi\mathbf{g} \cdot \mathbf{u}) D_g \rangle, \quad (9a)$$

$$\frac{\partial \langle D_g \rangle}{\partial s_g} = i\kappa_g \langle \exp(-2i\pi\mathbf{g} \cdot \mathbf{u}) D_0 \rangle. \quad (9b)$$

图1 构成晶体中 X 射线波场的曲折路径  
实心圆点代表 Bragg 反射

在畸变场高度随机而晶体又接近完美的条件下, 晶格畸变对 X 射线的散射十分微弱且是非相干的, 晶格畸变只对其最近邻的 X 射线波场产生显著影响, 因此可以认为, 方程(9)中的  $\exp(2i\pi\mathbf{g} \cdot \mathbf{u})$  与  $D_0$  和  $D_g$  是统计无关的。于是晶体中的平均波场满足如下方程:

$$\frac{\partial \langle D_0 \rangle}{\partial s_0} = i\kappa_{-g} \langle \exp(2i\pi\mathbf{g} \cdot \mathbf{u}) \rangle \langle D_g \rangle, \quad (10a)$$

$$\frac{\partial \langle D_g \rangle}{\partial s_g} = i\kappa_g \langle \exp(-2i\pi\mathbf{g} \cdot \mathbf{u}) \rangle \langle D_0 \rangle. \quad (10b)$$

以上推导没有考虑吸收, 若计入吸收效应, 并将漫散射也归于其中, 令  $E = \langle \exp(2i\pi\mathbf{g} \cdot \mathbf{u}) \rangle$ , 并将其定义为静态 Debye-Waller 因子, 则有

$$\frac{\partial \langle D_0 \rangle}{\partial s_0} = i\kappa_{-g} E \langle D_g \rangle - \frac{1}{2} \mu_e \langle D_0 \rangle, \quad (11a)$$

$$\frac{\partial \langle D_g \rangle}{\partial s_g} = i\kappa_g E \langle D_0 \rangle - \frac{1}{2} \mu_e \langle D_g \rangle, \quad (11b)$$

式中  $\mu_e = \mu_0 + \mu_{sc}$ ;  $\mu_0$  为光电吸收因子,  $\mu_{sc}$  为与漫散射对应的吸收。

这样, 就得到了近完美晶体中存在随机分布的微畸变时的 X 射线衍射统计动力学方程, 由耦合偏微分方程组(11)所示。

### 三、无限窄入射光束在晶体中激发的波场

在不同条件下求解方程组(11)可以得到各种情况下晶体中波场的分布<sup>[5]</sup>。这里, 作

为一个特例, 考虑在 Laue 反射条件下, 一束窄的人射光在晶体中激发的波场的强度分布.

将(11)式写成差分形式

$$\langle D_0(n+1, m) \rangle = \left(1 - \frac{1}{2} \mu_e a\right) \langle D_0(n, m) \rangle + i\kappa_g E a \langle D_g(n, m) \rangle, \quad (12a)$$

$$\langle D_g(n, m+1) \rangle = \left(1 - \frac{1}{2} \mu_e a\right) \langle D_g(n, m) \rangle + i\kappa_g E a \langle D_0(n, m) \rangle, \quad (12b)$$

其中  $(n, m)$  为斜坐标系中的坐标点  $(na, ma) \equiv (s_0, s_g)$  的简写,  $a$  为差分步长, 在最后的表达式中将令  $a$  趋近于零. 各量之间的关系以及反射结点类型的定义示于图 2 中.

设入射波为  $D_e(s_0, s_g) = A\delta(s_g)$ , 则在分立变量形式下, 方程(12)的边界条件可以写成

$$\langle D_0(0, m) \rangle = \begin{cases} A/a & m = 0; \\ 0 & m \neq 0. \end{cases} \quad (13a)$$

$$(13b)$$

因为没有  $G$  方向的反射光达到  $TO$ , 即直线( $m=0$ )上(见图 1), 固有

$$\langle D_g(n, 0) \rangle = 0. \quad (13c)$$

(13)式即为方程(12)的边界条件.

晶体中的波场从入射点  $(0, 0)$  开始, 每一次  $a$  型反射都由  $O$  波分出一部分振幅给  $G$  波, 其大小为  $O$  波的  $i\kappa_g E a$  倍; 而每一次  $b$  型反射都由  $G$  波分出一部分振幅给  $O$  波, 大小为  $G$  波的  $i\kappa_g E a$  倍. 一条路径(用  $R$  标记)从  $(0, 0)$  点出发到达  $(N, M)$  点并由  $O$  方向射出, 共经历  $r$  次  $b$  型反射 (它必须也经历  $r$  次  $a$  型反射), 于是  $(N, M)$  点的振幅为

$$d_0^R(N, M) = \frac{A}{a} (-\kappa_g \kappa_g)^r E^{2r} a^{2r}, \quad (14a)$$

扣除到吸收后, 有

$$d_0^R(N, M) = \frac{A}{a} (-\kappa_g \kappa_g)^r E^{2r} a^{2r} e^{-\frac{\mu_e}{2}(N+M)a}. \quad (14a)$$

同理,

$$d_g^R(N, M) = \frac{A}{a} (i\kappa_g)(-\kappa_g \kappa_g)^r E^{2r+1} a^{2r+1} e^{-\frac{\mu_e}{2}(N+M)a}. \quad (14b)$$

式中多出一项的理由是,  $d_g$  共有  $r+1$  次  $a$  型反射.

波场总振幅为

$$\langle D_0(N, M) \rangle = \sum_R d_0^R(N, M), \quad (15a)$$

$$\langle D_g(N, M) \rangle = \sum_R d_g^R(N, M); \quad (15b)$$

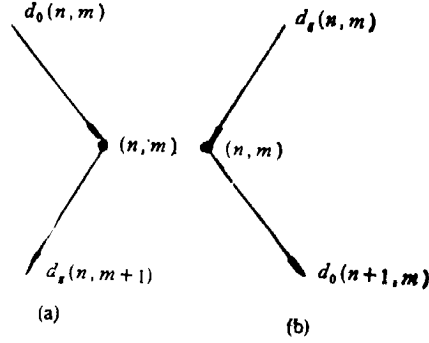


图 2 路径中两种类型的 Bragg 反射 (a),(b) 分别定义为  $a$  型和  $b$  型反射

强度为

$$I_0(N, M) = \sum_R \sum_{R'} (d_0^R)^* d_0^{R'}, \quad (16a)$$

$$I_g(N, M) = \sum_R \sum_{R'} (d_g^R)^* d_g^{R'}; \quad (16b)$$

求和对所有路径  $R, R'$  进行。注意到(14)式只与结点数  $r$  有关,故

$$I_0(N, M) = \left| \frac{A}{a} \right|^2 e^{-\mu_c(N+M)a} \quad (M=0) \quad (17a)$$

$$= \left| \frac{A}{a} \right|^2 \left| \sum_{r=1}^{\infty} \alpha_r (-\kappa_{-g} \kappa_g)^r E^{2r} a^{2r} \right|^2 e^{-\mu_c(N+M)a} \quad (M>0) \quad (17b)$$

$$I_g(N, M) = \left| \frac{A}{a} \right|^2 |\kappa_g|^2 E^2 \left| \sum_{r=0}^{\infty} \beta_r (-\kappa_{-g} \kappa_g)^r a^{2r+1} E^{2r} \right|^2 e^{-\mu_c(N+M)a}, \quad (17c)$$

式中  $\alpha_r$  为包含  $a$  型反射和  $b$  型反射的可能的路径数,若  $r$  次  $a$  型反射分布在  $G$  方向的  $N$  条线上,则  $r-1$  次  $b$  型反射分布在  $O$  方向的  $M-1$  条线上(最后一次反射总在第  $M$  条线上),所以,

$$\alpha_r = \frac{N!}{r!(N-r)!} \frac{(M-1)!}{(r-1)!(M-r)!}. \quad (18a)$$

同样

$$\beta_r = \frac{N!}{r!(N-r)!} \frac{M!}{r!(M-r)!}. \quad (18b)$$

以  $(s_0, s_g) = (Na, Ma)$  替换上式中的  $(N, M)$  并令  $a$  趋近于 0, 那么

$$\alpha_r = \frac{(s_0/a)^r (s_g/a)^{r-1}}{r! (r-1)!}, \quad (19a)$$

$$\beta_r = \frac{(s_0/a)^r (s_g/a)^r}{r! r!}. \quad (19b)$$

(19)式代入(17)式中,

$$I_0(s_0, s_g) = e^{-\mu_c(s_0+s_g)} |A|^2 \left| \sum_{r=1}^{\infty} \frac{1}{r!(r-1)!} (-\kappa_{-g} \kappa_g)^r E^{2r} s_0^r s_g^{r-1} \right|^2, \quad (20a)$$

$$I_g(s_0, s_g) = e^{-\mu_c(s_0+s_g)} |A|^2 E^2 |\kappa_g|^2 \left| \sum_{r=0}^{\infty} \frac{1}{r! r!} (-\kappa_{-g} \kappa_g)^r E^{2r} s_0^r s_g^r \right|^2. \quad (20b)$$

注意到 1 阶和 0 阶 Bessel 函数的定义,有

$$I_0(s_0, s_g) = e^{-\mu_c(s_0+s_g)} |A|^2 E^2 |\kappa_{-g} \kappa_g| \frac{s_0}{s_g} |J_1(2E \sqrt{\kappa_{-g} \kappa_g} \sqrt{s_0 s_g})|^2, \quad (21a)$$

$$I_g(s_0, s_g) = e^{-\mu_c(s_0+s_g)} |A|^2 E^2 |\kappa_g|^2 |J_0(2E \sqrt{\kappa_{-g} \kappa_g} \sqrt{s_0 s_g})|^2. \quad (21b)$$

当  $E=1$  时,即晶体是完美时,此式与 Kato 用球面波理论计算得到的 Pendellösung 条纹的强度分布完全相同。

这样,从方程组(11)出发,得到了 Laue 衍射条件下,一束窄的人射光在存在大量随

机微畸变的近完美晶体中,所激发的波场的强度分布解析表达式,即(21)式。此式可以用来拟合截面形貌图中 Pendellösung 条纹的强度分布,从而找出一种定量分析晶体完美性的方法。

## 四、讨 论

本文针对近完美晶体中存在随机分布畸变场的情形,通过引入一个假设,即畸变场相因子  $\exp(2i\pi\mathbf{g}\cdot\mathbf{u})$  与晶体中 X 射线波场  $D_0$  和  $D_g$  在畸变十分微弱且高度无序时是统计无关的,从而导出 X 射线衍射统计动力学理论的基本方程组,并求得窄入射光束在晶体中所激发波场强度的解析表达式,即(21)式。(21)式在晶体极端完美时与 Kato 用球面波近似得到的表达式完全相同,说明了本文结论的合理性。从(11)式可以看出,本文只处理了波场的相干部分,而将非相干部分归于吸收系数  $\mu_{\text{ac}}$  中。这种处理隐含地假定了非相干部分的空间结构十分简单,这在晶体中无层错并且位错密度十分低时是成立的。我们在对 X 射线截面形貌图中 Pendellösung 干涉条纹强度的分析中发现,用(21)式再加上一个简单多项式就可以非常精确地拟合实验数据,这也证明了本文假设的合理性以及结论的正确性。

文中定义的静态 Debye-Waller 因子  $E$  为晶体的长程序参量,

$$E = \langle e^{2i\pi\mathbf{g}\cdot\mathbf{u}} \rangle = e^{-L_g} \quad (22)$$

根据固体理论<sup>[6]</sup>,当晶体中微缺陷浓度  $c$  很低,而且缺陷周围第  $j$  个原子的位移  $\mathbf{u}_j$  又很小时,(22)式中的  $L_g$  可以近似表示为

$$L_g = \frac{1}{2} c \sum_j (2\pi\mathbf{g}\cdot\mathbf{u}_j)^2 \quad (23)$$

可见,  $E$  表征晶体的完美性,  $0 < E \leq 1$ 。对完美晶体,  $E = 1$ 。本文讨论的是  $E$  接近于 1 的情况。(21)式说明,晶体中随机畸变场的存在,一方面使波场强度降低  $E^2$ ,同时使波场的空间振荡周期增加  $E^{-1}$ ,这种效应能使近完美晶体 X 射线衍射截面形貌图的 Pendellösung 干涉条纹发生变化。反之,可以从 X 射线截面形貌图的 Pendellösung 干涉条纹强度和周期的变化求得静态 Debye-Waller 因子  $E$ ,从而可以根据(23)式得到近完美晶体中无规分布的尺度为  $nm$  数量级的微缺陷团尺寸、缺陷密度等方面的信息,而这种信息是远远超出 X 射线截面形貌术的分辨能力的。这方面的工作将另文发表。

- [1] S. Takagi, *Acta Cryst.*, **15**(1962), 1311.
- [2] D. Taupin, *Bull. Soc. Franc. Miner. Cryst.*, **87**(1964), 469.
- [3] N. Kato, *Z. Naturforsch.*, **28A** (1973), 604.
- [4] 贺楚光、麦振洪、崔树范, *物理学报*, **39** (1990), 778.
- [5] N. Kato, *Acta Cryst.*, **A32** (1976), 453.
- [6] P. H. Dederichs, *Solid State Physics* Vol. 27, eds. H. Ehrenreich, F. Seitz and Turnbull (Academic Press, New York, 1972), p. 136.

# STATISTICAL DYNAMICAL DIFFRACTION IN NEARLY PERFECT CRYSTALS

LI MING    MAI ZHEN-HONG    CUI SHU-FAN

*Institute of Physics, Academia Sinica, Beijing 100080*

(Received 19 October 1992; revised manuscript received 13 July 1993)

## ABSTRACT

A new expression of Takagi-Taupin equations is applied to nearly perfect crystals with statistical lattice distortion, with which a formalism of the dynamical diffraction is proposed. A static Debye-Waller factor  $E$  is introduced to characterize the crystal. A solution of the equations is presented which describe the intensity distribution due to a narrow incident wave in the topography of a statistically homogeneous crystal. The application of this theory to the measuring of the micro-defects in crystals is discussed.

**PACC:** 6110D; 7870B