

# 标定超高压电子显微镜中菊池线的一种有效方法

杨 奇 斌

(中国科学院金属研究所)

1981 年 10 月 26 日收到

## 提 要

用电子计算机标定菊池线的困难在于实验误差。误差的来源有二：一是菊池线位置测量的误差；二是仪器常数的误差。本文用最小二乘法拟合菊池线及自动校正仪器常数的办法减少了实验误差，并用点阵平面几何学的方法进行标定，大大地提高了标定的可靠性。本方法具有普遍的适用性，但更适合于超高压电镜中菊池线的标定。

## 一、引 言

电子显微镜中的菊池线得到了十分广泛的应用<sup>[1]</sup>，如晶体相对于电子束的取向<sup>[2]</sup>、两相的取向关系<sup>[3]</sup>、电子波长<sup>[4]</sup>、点阵常数<sup>[5,6]</sup>、原子散射因子的精确测量<sup>[7-9]</sup>，相鉴定<sup>[10]</sup>及位错柏氏矢量的测定等<sup>[11,12]</sup>，而菊池线指数的标定是这些应用的基础。由于超高压电镜的电压极高，穿透本领很强，极易产生黑白分明的菊池线对，对于某些密排面甚至产生五级以上的高级菊池线，这些都十分有利于菊池线对的寻找及测量。遗憾的是：1. 超高压电镜的有效镜筒长度大约在 900—6000mm 之间，而照相底板的面积为 100×70mm<sup>2</sup>，在通常的使用条件下（2000mm 左右的有效镜筒长度），照相底板只能接收从一个很小的角度范围内（2—3°）发射出来的菊池线。与一般电镜的有效镜筒长度（200—1200mm）比较起来，超高压电镜的平均有效镜筒长度是一般电镜的五倍。虽然超高压电镜的底板线度是一般电镜的一点五倍，但它所对应的张角还是只有普通电镜的三分之一。因此在超高压电镜中一张底板上接收到的菊池线只是一张极图中一个很小的区域。在极图的一个很小的区域内不可能同时包含两个低指数的菊池极，也就是说最多只能有一个低指数的菊池极，而其他菊池极的指数都是相当高，相应地大多数菊池线的指数也是相当高。2. 超高压电镜和普通电镜一样，在同一使用条件下，长期测量的仪器常数的统计平均值波动较大，不同测量次数之间仪器常数波动 2—3% 是常见的，5% 以上的波动也时有之。由于仪器常数带来的误差，再加上菊池线的测量误差使得晶面间距的误差更大。由于非立方晶系的高指数晶面间距相差甚小，如果面间距误差太大将无法予以指标化。本文采用最小二乘法拟合菊池线及自动校正仪器常数的措施大大地减少了实验误差，并采用点阵平面几何学的方法进行标定，提高了标定的可靠性。在此原理的基础上编写了电子计算机程序。

## 二、标定原理

### 1. 由菊池线对测量倒易矢量

如图 1, 实线表示菊池线的黑线, 虚线表示菊池线的白线. 将它们置于  $xy$  坐标系中, 由坐标原点作菊池线的法线交菊池线于  $C, D$  两点, 测量  $C, D$  两点的坐标值即可求出该菊池线的倒易矢量. 然而这样作误差较大, 一则由于菊池线有一定宽度, 二则在作法线时难免产生  $2-3^\circ$  的误差, 故  $C, D$  两点的位置不易测准. 我们采用最小二乘法拟合菊池线的办法, 求得  $A_1B_1$  及  $A_2B_2$  两直线, 再通过计算求得  $C, D$  两点的坐标值, 即可获得更为准确的结果.

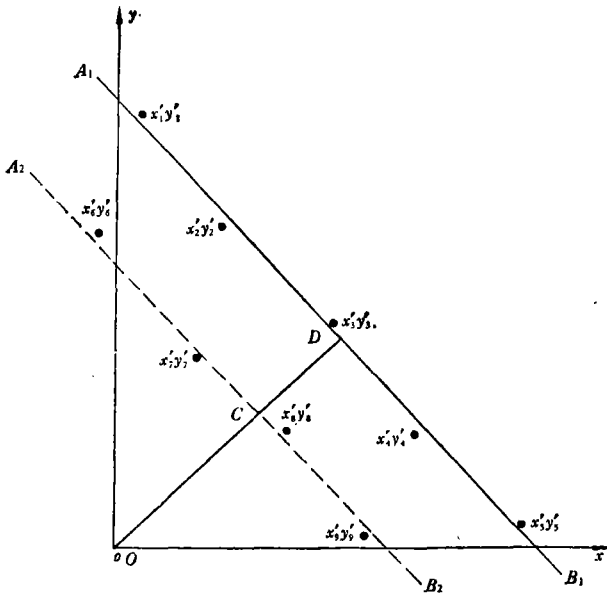


图 1 测量菊池线位置的示意图

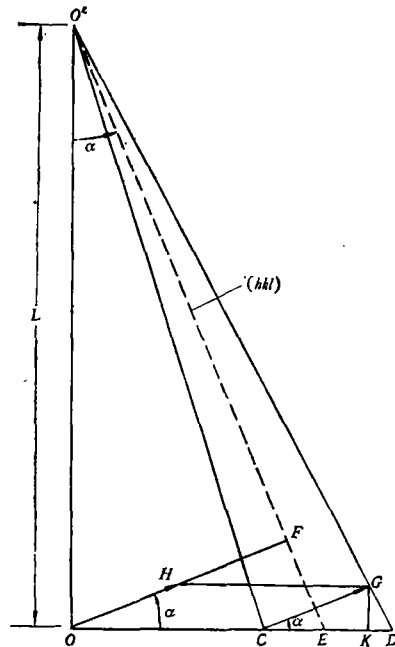


图 2 与菊池线对应的倒易矢量位置图

如图 1, 在  $A_1B_1$  上及  $A_2B_2$  上取两个以上的点, 譬如说在  $A_1B_1$  上取五个点, 在  $A_2B_2$  上取四点, 然后测量它们的坐标值  $x_1, y_1; x_2, y_2; \dots, x_9, y_9$ . 设直线  $A_1B_1$  上的坐标值  $x, y$  有如下关系:

$$y = ax + b_1 \tag{1a}$$

或

$$y_i = ax_i + b_1 \tag{1b}$$

令  $y_i$  为测量值<sup>1)</sup>, 由最小二乘法可得

1) 以下凡带上撇者为实验测量值, 不带上撇者则是由点阵常数计算所得.

$$\begin{bmatrix} a \\ b_1 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \sum_i x_i^2 & \sum_i x_i \\ \sum_i x_i & r \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} \sum_i x_i y_i' \\ \sum_i y_i' \end{bmatrix}, \quad (2)$$

式中的  $r$  为测量时所选点的数目. 同样用最小二乘法求得  $A_2B_2$  的方程式为

$$y = ax + b_2. \quad (3)$$

由(1a)式及(3)式求得  $C, D, E$  三点(见图 2)之坐标值为

$$[x'_C, y'_C] = [-ab_2/(a^2 + 1), b_2/(a^2 + 1)]$$

$$[x'_D, y'_D] = [-ab_1/(a^2 + 1), b_1/(a^2 + 1)]$$

$$[x'_E, y'_E] = [-a(b_1 + b_2)/(2(a^2 + 1)), (b_1 + b_2)/(2(a^2 + 1))]$$

以及

$$\operatorname{tg} \alpha = OE/OO' = \sqrt{x_E'^2 + y_E'^2}/L = \lambda \sqrt{x_E'^2 + y_E'^2}/(L\lambda).$$

倒易矢量

$$g_{hkl} = CG/(L\lambda) = OH/(L\lambda),$$

$H$  点的坐标值即为  $(hkl)$  面倒易矢量的坐标值. 由图 2 可以看出, 因  $\alpha$  极小故可近似认为

$$x'_H = x'_D - x'_C, \quad g'_x = x'_H/(L\lambda),$$

$$y'_H = y'_D - y'_C, \quad g'_y = y'_H/(L\lambda),$$

$$z'_H = CD \operatorname{tg} \alpha, \quad g'_z = z'_H/(L\lambda),$$

显然

$$g' = \sqrt{g_x'^2 + g_y'^2 + g_z'^2} = r'/(L\lambda),$$

其中

$$r' = \sqrt{x_H'^2 + y_H'^2 + z_H'^2}$$

## 2. 仪器常数的校正

设待标定的晶体的点阵常数为  $a, b, c$ , 则倒易单胞体积为

$$V^* = 1/(a \cdot (b \times c)).$$

设有任意三对菊池线所对应的倒易矢量分别为  $g'_i, g'_j, g'_k$ , 由该三倒易矢量所构成的平行六面体的体积为

$$V_g^* = g'_i \cdot (g'_j \times g'_k) = r'_i \cdot (r'_j \times r'_k)/(L\lambda)^3 = k_g V^*.$$

如果  $L\lambda$  及  $r'_i, r'_j, r'_k$  无误差, 则  $k_g$  应为整数. 由  $m$  对菊池线取三对的组合为  $P = m(m-1)(m-2)/6$ , 设  $m = 7$ , 则  $P = 35$ , 这可以得到 35 种  $V_g^*$ . 如  $k_g$  系统地偏离整数值, 说明  $L\lambda$  有误差, 适当地选择  $L\lambda$  可使  $k_g$  值与整数之差最小, 这样的  $L\lambda$  为校正后的仪器常数.

由于倒易矢量的  $z$  分量

$$g'_z \propto z'_H/(L\lambda), \quad \text{而 } z'_H \propto \operatorname{tg} \alpha \propto 1/(L\lambda).$$

所以

$$g'_z \propto 1/(L\lambda)^2,$$

故

$$V_g^* \propto 1/(L\lambda)^4.$$

令

$$\Delta k_g = k_g / \operatorname{INT}(k_g + 0.5) - 1^0$$

1)  $\operatorname{INT}(a)$  表示  $a$  的整数部分.

及

$$S = \left( \sum_g \Delta k_g \right) / P,$$

则校正后的仪器常数为

$$(L\lambda)' = (1 - S)^{1/4} L\lambda.$$

### 3. 计算 $g_{hkl}$

由晶体学可知

$$g_{hkl} = \left( [hkl] G^* \begin{bmatrix} h \\ k \\ l \end{bmatrix} \right)^{1/2}. \quad (4)$$

根据实验数据确定  $hkl$  的上限, 根据(4)式计算  $\pm hkl$  范围内的  $g_{hkl}$  的长度, 但要作到

- 1) 只要计算独立的  $hkl$  的倒易矢量长度;
- 2) 但要包括所有的倒易矢量, 不能有一个遗漏.

### 4. 实验值与计算值比较

选择两对实测的倒易矢量适当地短且夹角适当地大的菊池线作为标定的基础, 设它们的倒易矢量长度分别为  $g'_1$  及  $g'_2$ , 将它们与计算值对比. 对比时允许  $g'_1$  及  $g'_2$  有  $\pm \Delta g$  ( $\Delta g$  对应于照片上 1mm) 的误差. 设处于  $g'_1 - \Delta g \rightarrow g'_1 + \Delta g$  之间的倒易矢量指数有  $N_1$  个, 它们是  $\{h_1^{(1)}k_1^{(1)}l_1^{(1)}\}$ ,  $\{h_2^{(1)}k_2^{(1)}l_2^{(1)}\}$ ,  $\dots$ ,  $\{h_{N_1}^{(1)}k_{N_1}^{(1)}l_{N_1}^{(1)}\}$ , 处于  $g'_2 - \Delta g \rightarrow g'_2 + \Delta g$  之间的倒易矢量指数有  $N_2$  个, 它们是  $\{h_1^{(2)}k_1^{(2)}l_1^{(2)}\}$ ,  $\{h_2^{(2)}k_2^{(2)}l_2^{(2)}\}$ ,  $\dots$ ,  $\{h_{N_2}^{(2)}k_{N_2}^{(2)}l_{N_2}^{(2)}\}$ . 以上给出的指数仅仅是晶面族, 对于每一个  $\{hkl\}$  面族还要扩展成所有等价的  $(hkl)$  晶面(这些等价的晶面通过对称操作联系起来). 但是对于两组晶面族中的第一组可以只取其中一晶面, 而对于第二组面族则要取遍所有等价的晶面.

我们选择第一组的  $(h_1^{(1)}k_1^{(1)}l_1^{(1)})$  和第二组的  $(h_{N_2}^{(2)}k_{N_2}^{(2)}l_{N_2}^{(2)})$  构成倒易面(其中  $(h_{N_2}^{(2)}k_{N_2}^{(2)}l_{N_2}^{(2)})$  是  $\{h_1^{(2)}k_1^{(2)}l_1^{(2)}\}$  面族中的第七个晶面). 设该二晶面的倒易矢分别为  $g_1$  及  $g_2$ , 由  $g_1$  及  $g_2$  的端点连线可构成一新的倒易矢  $g_{12}$ ,  $g_{12}$  的指数为  $(h^{(12)}k^{(12)}l^{(12)})$ , 由其指数可算出  $g_{12}$  的长度, 将其长度与实验的  $g'_{12}$  ( $g'_{12} = g'_2 - g'_1$ ) 相对比. 若  $g'_1$ ,  $g'_2$  及  $g'_{12}$  与  $g_1$ ,  $g_2$  及  $g_{12}$  的长度之差绝对值的总和超过  $2\Delta g$ , 则摒弃这一组解, 若小于  $2\Delta g$ , 则进行下列计算.

### 5. 利用点阵平面几何学的方法进行标定<sup>[3]</sup>

设由  $(h_1^{(1)}k_1^{(1)}l_1^{(1)})$  及  $(h_{N_2}^{(2)}k_{N_2}^{(2)}l_{N_2}^{(2)})$  所构成的倒易面为  $(UVW)^*$ , 用欧几里德算法求  $hkl$ , 使得<sup>[3]</sup>

$$hU + kV + lW = 1.$$

则  $(hkl)$  为一级  $(UVW)^*$  倒易面上的倒易点. 令  $g = ha^* + kb^* + lc^*$ , 则  $g$  在零级  $(UVW)^*$  倒易面上的投影为<sup>[3]</sup>

$$g_{11} = mg_1 + ng_2.$$

令

$$M_f = INT(fm + 0.5), \quad N_f = INT(fn + 0.5),$$

$$\Delta M_f = fm - M_f, \quad \Delta N_f = fn - N_f,$$

则

$$\Delta g_i = \Delta M_i g_{i1} + \Delta N_i g_{i2}$$

为第  $f$  级( $UVW$ )\*倒易面上的倒易点集合中离原点最近的那个倒易点在第零级( $UVW$ )\*倒易面上的投影,那末该倒易点的指数为

$$h_f = fh - M_i h_i^{(1)} - N_i h_i^{(2)},$$

$$k_f = fk - M_i k_i^{(1)} - N_i k_i^{(2)},$$

$$l_f = fl - M_i l_i^{(1)} - N_i l_i^{(2)}.$$

当  $f$  值由 1 循环至  $N_3$  时,则可求出  $N_3$  级倒易面上离原点最近的倒易点的指数.

设第三对菊池线的倒易矢为  $g'_3$  且有

$$(g'_1 \times g'_2) \cdot g'_3 = f_3 V^*,$$

$$F = INT(f_3 + 0.5).$$

说明  $g'_3$  是第  $F$  级( $UVW$ )\*倒易面上的倒易矢. 设  $g'_3$  在零级( $UVW$ )\*倒易面上的投影为

$$g'_{11} = pg'_1 + qg'_2,$$

令

$$P = INT(p - \Delta M_F + 0.5), Q = INT(q - \Delta N_F + 0.5),$$

那末  $g'_3$  的指数为

$$h'_3 = h_F + Ph_i^{(1)} + Qh_i^{(2)},$$

$$k'_3 = k_F + Pk_i^{(1)} + Qk_i^{(2)},$$

$$l'_3 = l_F + Pl_i^{(1)} + Ql_i^{(2)}.$$

依次对第四、五、...对菊池线进行标定,即可求出所有菊池线的指数.

6. 设有  $m$  对菊池线,它们对应  $m$  个  $g$  矢,有  $m$  个端点,连同原点在一起共  $m + 1$  个点. 这些点的任意二点之间的连线也构成一倒易矢量,这样共有  $(m + 1)m/2$  个倒易矢量. 将这些倒易矢量的计算长度与实测长度相对比,求出它们误差的总和. 在对  $i, j, t$  进行循环时可以求出很多套解,在这些解中误差最小的标定结果即为正确的标定.

### 三、结果与讨论

1. 本程序采用最小二乘法密合菊池线,然后通过计算求菊池线的倒易矢量,提高了数据的精度.

2. 用大量的由三倒易矢量构成的平行六面体体积来校正仪器常数,可使仪器常数的误差小于 0.5%. 我们在标定超高压电镜中拍摄的  $\alpha$ -Ti 的菊池线时给定的仪器常数由 12.5mm Å 变化到 15.5mm Å 时都被校正为同一的仪器常数 13.81mm Å,可见采用自动校正仪器常数办法以后,对用来进行试算的仪器常数的精度要求很低了,只要误差不超过  $\pm 10\%$  都可以自动地校正过来.

3. 用点阵平面几何学的方法进行标定,提高了标定的可靠性. 由于超高压电镜中的菊池线对应于高指数的倒易矢量,由此二倒易矢量构成的倒易面单胞面积则很大,这样由于实验误差使得高级倒易面上的倒易点在零级倒易面上的投影由一个单胞跑到另一个单胞中去的可能性就很小. 本来超高压电镜中菊池线的指数高给标定带来困难,但用点阵平面几何学的方法以后使不利因素变成了有利因素.

表 1 对  $\alpha$ -Ti 菊池线标定的结果<sup>1)</sup>

$(h_2k_2l_2)$ - $(h_1k_1l_1)$	$(h_1k_1l_1)$	(000)	(023)	(231)	(252)	(445)	(436)	(325)
(023)		1.012 {1.03 $\bar{1}$ } (023)						
(231)		1.057 {1.077} (231)	1.759 {1.796} (252) [1164]					
(252)		1.759 {1.756} (252)	2.668 {2.682} (275) [1164]	1.012 {0.991} (023) [1164]				
(445)		1.895 {1.917} (445)	2.115 {2.146} (462) [1164]	1.091 {1.103} (2 $\bar{1}$ 4) [1164]	1.819 {1.821} (217) [3318 $\bar{1}$ 2]			
(436)		1.905 {1.900} (436)	2.385 {2.393} (419) [21128]	2.784 {2.791} (667) [1586]	2.949 {2.942} 684 [18107]	3.775 {3.790} (87 $\bar{1}$ 1) [944]		
(325)		1.488 {1.477} (325)	1.475 {1.472} (342) [1696]	1.091 {1.092} (114) [1375]	2.056 {2.046} (137) [2916 $\bar{1}$ 1]	0.6780 {0.7042} (120) [1054]	3.391 {3.373} (7511) [321]	
(137)		2.056 {2.070} (137)	3.052 {3.082} (1510) [532]	2.073 {2.098} (308) [24139]	1.488 {1.523} (325) [2916 $\bar{1}$ 1]	3.128 {3.170} (51 $\bar{1}$ 2) [4323 $\bar{1}$ 6]	2.045 {2.023} (361) [3922 $\bar{1}$ 5]	3.128 {3.143} (4112) [291611]

1) 除第一列以外,表中每一格包含四个数据,其中圆括弧中的数据为倒易矢量的指数,大括弧中的数据为实验测量的该倒易矢量的长度,不带括弧的数据是由点阵常数计算的倒易矢量长度,其单位都为  $\text{\AA}^{-1}$ ,方括弧中的数据为菊池极的指数。

4. 用比较所有倒易矢量长度误差总和的方法进一步提高了标定的可靠性。因为这样作使得几十个倒易矢量之间相互自洽。从表 1 可以看出不仅被标定的菊池线本身的倒易矢量长度与计算值相符合(最大误差为  $0.022 \text{\AA}^{-1}$ )而且任意二倒易矢量的端点间的距离亦与计算值相符合(如误差最大的  $(51\bar{1}2)$  倒易矢量误差为  $0.042 \text{\AA}^{-1}$ ),故认为标定结果是十分可靠的。从表 1 还可看出所有菊池极的指数都特别地高,一般指数在 10 以上,最高指数达到 43,对于如此高指数的菊池极,若不采取上述有效措施是难以正确标定的。

5. 由于立方晶系的对称性高于六角晶系,而四方晶系的对称性与六角晶系相当,故从  $\alpha$ -Ti 的标定结果可以看出,该程序至少适用于立方、六角及四方三个晶系。从原理上来

看该程序适用于任意晶系,但由于正交晶系,三角晶系、单斜晶系及三斜晶系的对称性都低于六角晶系,该程序是否能正确地标定这些晶系还有待于实践检验,但由于我们日常碰到的都是一些对称性较高的晶系,故该程序对于大多数情况是可用的。

张立德等同志提供了现成的菊池线照片,作者表示衷心的感谢。

### 参 考 文 献

- [1] G.Thomas, *Modern Diffraction and Imaging Techniques in Materials Science*, ed. S. Amelinckx, North-Holland Publishing Company, (1970). 159.
- [2] J. W. Christian, *J. Inst. Metals*, **84**(1956), 349.
- [3] C. T. Young, J. H. Steele, Jr., J. L. Lytton, *Met. Trans.*, **4**(1973), 2081.
- [4] P. H. Pumphery, *Proceedings, Vth European Congress of Electron Microscopy*, (1972), 466.
- [5] R. Hoier, *Acta Cryst. A*, **25**(1969), 516.
- [6] A. Olsen, *J. Appl. Cryst.*, **9**(1976), 9.
- [7] O. Terasaki and D. Watanabe, *Acta Cryst. A*, **35**(1979), 895.
- [8] D. Watanabe, R. Uyeda and A. Fukuhara, *Acta Cryst. A*, **25**(1969), 133.
- [9] D. Watanabe and R. Uyeda, *Acta Cryst. A*, **24**(1968), 580.
- [10] G. Thomas, *Trans. AIME*, **233**(1965), 1608
- [11] P. R. Okamoto, E. Levine and G. Thomas, *J. Appl. Phys.*, **38**(1967), 289.
- [12] E. Levine, W. L. Bell and G. Thomas, *J. Appl. Phys.*, **37**(1966), 2141.
- [13] 杨奇斌、叶恒强, *物理学报*, **29**(1980), 1033.

## AN EFFECTIVE METHOD FOR INDEXING KIKUCHI LINES FROM UHVEM

YANG QI-BING

(*Institute of Metal Research, Academia Sinica*)

### ABSTRACT

The difficulty of automatic indexing of Kikuchi lines by computer lies in experimental errors in the measurements of Kikuchi line positions and the camera constant. These errors were minimized by adopting a least square method to fit Kikuchi lines and correcting camera constant automatically. In addition, the geometry of lattice planes was used to aid the indexing of Kikuchi lines. Consequently, the reliability of correct indexing has been greatly improved. This method is universally applicable, however, it is, in particular, suitable to the case of Kikuchi lines from UHVEM.