

## ДИФРАКЦИЯ И РАССЕЯНИЕ ИОНИЗИРУЮЩИХ ИЗЛУЧЕНИЙ

УДК 548.73

### ИССЛЕДОВАНИЕ ВНУТРЕННЕЙ СТРУКТУРЫ МОНОКРИСТАЛЛА ФТОРИДА ЛИТИЯ МЕТОДОМ РЕНТГЕНОВСКОЙ ТОПО-ТОМОГРАФИИ В ЛАБОРАТОРНЫХ УСЛОВИЯХ

© 2011 г. Д. А. Золотов, А. В. Бузмаков, В. Е. Асадчиков, А. Э. Волошин,  
В. Н. Шкурко, И. С. Смирнов\*

*Институт кристаллографии РАН, Москва*

*\*Московский государственный институт электроники и математики*

*E-mail: zolotovden@ns.crys.ras.ru*

Поступила в редакцию 06.12.2010 г.

Представлены результаты исследования дефектов в синтетическом кристалле LiF с использованием метода рентгеновской топо-томографии на лабораторных рентгеновских источниках с пространственным разрешением ~10 мкм. Для восстановления дефектной трехмерной структуры кристалла на основании дифракционных данных применялся алгебраический метод реконструкции. Представленные в работе результаты хорошо согласуются с данными топографических исследований, проведенных по методу Ланга.

#### ВВЕДЕНИЕ

Рентгеновская дифракционная топография занимает особое место среди других методов интроскопии, применяемых при исследованиях реальной структуры монокристаллов и изделий из них. Преимущества этого метода тем более очевидны, когда речь идет об исследовании объектов, непрозрачных в оптическом диапазоне. Важно также отметить, что данный метод обеспечивает возможность изучения больших по толщине (~10 мм) и площади (~10<sup>3</sup> мм<sup>2</sup>) образцов. Эти обстоятельства и обуславливают его широкое применение в различных областях науки и техники [1, 2].

С учетом особенностей методики эксперимента на рентгеновских топограммах можно выявить границы блоков, единичные дислокации, включения, дефекты упаковки, неоднородности распределения примеси [3]. Однако рентгеновская топография обладает существенным недостатком – позволяет получать лишь двумерные сечения распределения дефектов в объеме кристалла.

На сегодняшний день известно несколько возможностей для получения трехмерного представления о внутренней структуре исследуемого объекта на базе топографических подходов. Наиболее простым является метод дифракционной томографии [4]. Исследуемый объект сканируется узкой щелью (~10 мкм), что позволяет получить набор секционных топограмм от всего кристалла. Затем эти топограммы складываются как слои, что и обеспечивает получение объемной картины распределения кристаллических дефектов. Заметим, что общее поглощение в исследуе-

мом кристалле не должно превышать 60% от интенсивности падающего излучения.

Другим активно развивающимся подходом является рентгеновская абсорбционная микротомография. Известно, что в интервале длин волн 0.71–2.4 Å с применением монохроматического излучения этот метод перспективен для неразрушающего исследования внутренней трехмерной структуры биологических объектов [5] и для геологических исследований природных алмазов и их включений [6, 7]. Методика рентгеновской микротомографии основана на поглощении рентгеновского излучения и состоит из регистрации большого количества рентгеновских абсорбционных изображений, полученных при вращении образца в диапазоне углов от 0° до 180°. На основе полученных серий теневых проекций с использованием известных алгоритмов обработки данных [8] удается восстановить трехмерное распределение линейного коэффициента поглощения  $\mu$  в исследуемом объекте.

В последнее время широкое развитие получила так называемая топо-томография. Данный метод отличается достаточно высоким разрешением, что позволяет проводить анализ структуры даже индивидуальных дислокаций внутри слабо поглощающих монокристаллов, например синтетических алмазов [9]. Основная его методическая особенность состоит в следующем. В процессе эксперимента при получении проекционных изображений ось вращения образца не может быть выбрана произвольно, она должна оставаться параллельной вектору обратной решетки одной из отражающих плоскостей кристалла. В результате на детекторе фиксируются соответствующие

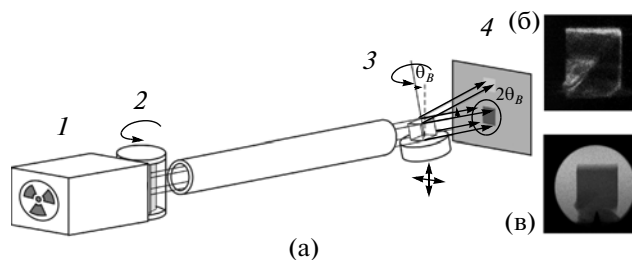
ющие брэгговские отражения (топограммы) в процессе вращения кристаллического образца, для которых можно применить те же алгоритмы реконструкции, как и в случае традиционной томографии [10].

Следует отметить, что перечисленные выше топо-томографические методы в основном применяются на синхротронных источниках 3-го поколения, таких как ESRF [11] и Spring-8 [12]. Между тем с практической точки зрения весьма важным была бы их адаптация для лабораторных источников рентгеновского излучения. Настоящая работа посвящена реализации такой возможности.

### ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

При проведении экспериментов по топо-томографии в лабораторных условиях актуальным является вопрос выбора образцов для исследования. Изучаемый кристалл должен обладать линейным коэффициентом поглощения, меньшим единицы. В нем должны присутствовать кристаллографические плоскости, обеспечивающие брэгговское отражение с углом около  $10^\circ$  в диапазоне длин волн  $0.5\text{--}2.4 \text{ \AA}$ . В данной работе для исследования выбрали синтетический кристалл фтористого лития (LiF). Этот материал, содержащий атомы легких элементов, вследствие очень высокой прозрачности используется в ультрафиолетовой и инфракрасной оптике, а также для изготовления высокоэффективных лазеров на центрах свободной окраски. Таким образом, вопрос о совершенстве его внутренней структуры является актуальным.

Эксперименты проводились на созданной лабораторной экспериментальной установке, схема которой представлена на рис. 1а. Ее особенности заключаются в следующем. Во-первых, можно проводить обычные томографические исследования с применением кристалла-монокроматора. Отметим, что целесообразность монохроматизации зондирующего излучения в томографических экспериментах подробно обсуждалась в [5]. Во-вторых, в конструкции прибора применяется гониометр для обеспечения наклона оси вращения образца по отношению к падающему рентгеновскому пучку с точностью  $\sim 10''$ , как показано на рис. 1а. Прецизионная юстировка оси вращения исследуемого объекта для выполнения условий Брэгга во всем интервале углов поворота осуществляется с использованием гониометрической головки. Отметим, что предложенная конструкция позволяет осуществлять одновременную регистрацию прошедшего и отраженного пучков (рис. 1б, 1в). Укажем также на возможность проведения эксперимента без кристалла-монокроматора, что позволяет проводить сравнительный анализ получаемых экспериментальных



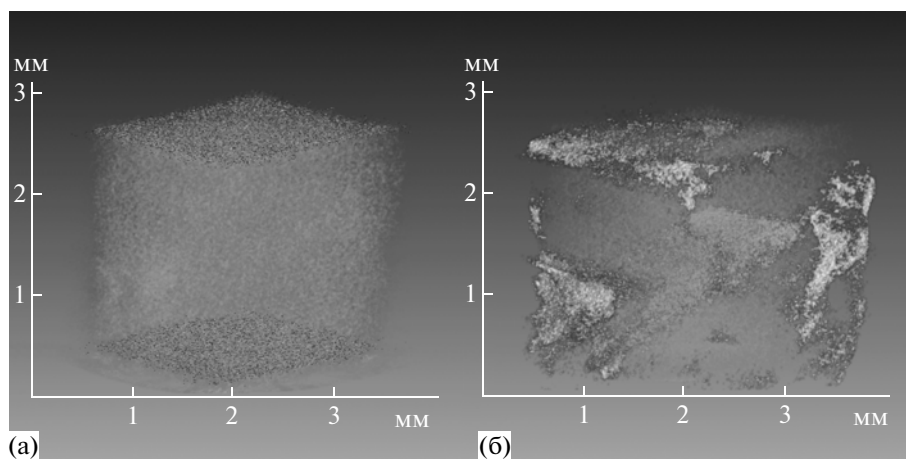
**Рис. 1.** Схема эксперимента: 1 – рентгеновская трубка с размером фокуса  $0.4 \times 0.4 \text{ мм}$ , 2 – приставка для кристалла-монокроматора, 3 – образец, закрепленный на гониометре, 4 – ПЗС-матрица (а). Проекция кристалла в отраженном пучке (б). Проекция кристалла в прямом пучке (в).

данных с полученными методом проекционной топографии Ланга.

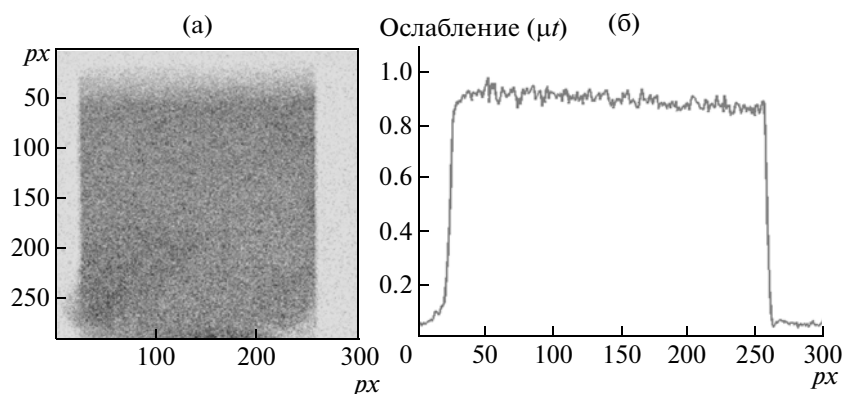
Для исследования был отобран синтетический кристалл LiF кубической формы с характерными размерами 3 мм и кристаллографической ориентацией (100) (второй порядок отражения). Исследуемый кристалл крепился на гониометре и освещался монохроматическим рентгеновским излучением с возбужденной характеристической  $K_{\alpha 1}$ -линией молибдена ( $\lambda = 0.71 \text{ \AA}$ ). На этой длине волны линейный коэффициент поглощения составляет  $0.29 \text{ мм}^{-1}$ . В качестве монокроматора использовался пирографит. Ось вращения гониометра была наклонена относительно пучка на угол Брэгга  $10.14^\circ$ . Каждый раз при повороте гониометра на двумерном детекторе регистрировались проекции, аналогичные представленным на рис. 1б, 1в. Время экспозиции одного кадра составляло 10 с. При этом расстояние источник–образец – 800 мм, расстояние образец–детектор – 20 мм, ширина выходной щели – 0.5 мм.

### РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

По сравнению с обычной абсорбционной томографией изображения, полученные при  $0^\circ$  и  $180^\circ$ , не являются идентичными вследствие наклона оси вращения образца относительно рентгеновского пучка. Поэтому автоматическое вращение образца осуществлялось в диапазоне углов от  $0^\circ$  до  $360^\circ$ . Для трехмерной реконструкции образца по набору брэгговских рефлексов был модифицирован алгоритм восстановления Simultaneous Algebraic Reconstruction Technique (SART) [13]. В модели учтено, что эти рефлекссы являются изображениями кристалла от виртуального источника, лучи от которого смещены на двойной угол Брэгга от реального источника. В результате были получены реконструкции трехмерной структуры объекта как в прямом (рис. 2а), так и в дифрагированном пучках (рис. 2б).



**Рис. 2.** Реконструкции кристалла LiF по томографическим (а) и топографическим данным (б). Пространственное разрешение  $\sim 45$  мкм.



**Рис. 3.** Томографические экспериментальные данные: а – проекция кристалла, б – ослабление в кристалле ( $\mu$  – линейный коэффициент поглощения,  $t$  – толщина кристалла). Видно, что образец практически однороден по поглощению. Масштаб изображений представлен в пикселях ( $px$ ) детектора: 1  $px$  соответствует 13 мкм.

На представленном рисунке видно, что геометрические размеры объекта хорошо передаются при использовании обоих методов. Однако абсорбционная томография слабо чувствительна к особенностям реальной кристаллической структуры объекта. В то же время дифракционная томография значительно более чувствительна к наличию дефектных областей кристалла, где происходит формирование сильного экстинкционного контраста. Полученные дифракционные отражения носят скорее кинематический характер, а поверхность кристалла состоит из сильно разориентированных блоков (ориентационный контраст), от которых и происходит отражение.

Отметим также, что в объеме кристалла обнаружен клиновидный скол, образованный в результате приготовления образца. Выше отмечалось, что отражающей является плоскость (100). Угол между этой плоскостью и плоскостью (111) составляет  $54^\circ 44'$ . Измеренный на основании

экспериментальных данных угол между плоскостью (100) и плоскостью скола (трещины) близок к этой величине. Поэтому логично предположить, что данный дефект расположен в кристаллографической плоскости (111).

Можно ожидать, что области, от которых происходит дифракционное отражение части прошедшего через кристалл излучения, на абсорбционных томографических проекциях должны были бы отличаться большим поглощением. Иными словами эти области на абсорбционных томограммах могли бы выглядеть как дефекты внутри кристалла, отличающиеся повышенной плотностью. Тогда для восстановления таких квазидефектов можно было бы ограничиться лишь набором теневых проекций, полученных в прямом пучке. Однако в описываемом эксперименте такой эффект не наблюдался (рис. 3). Это может быть обусловлено малым временем экспозиции и/или тем, что дифракционное отражение от кри-

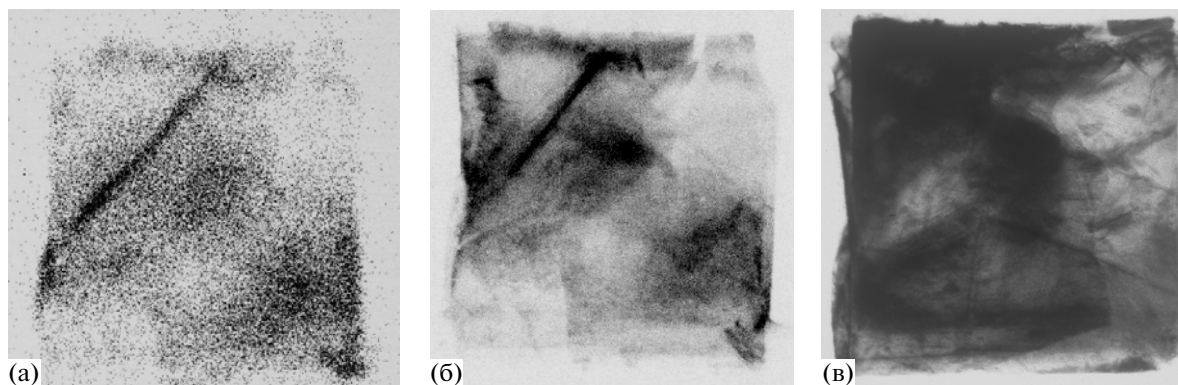


Рис. 4. Топограммы кристалла LiF с использованием (а), без использования кристалла-монокроматора (б), по методу Ланга (в). Результаты получены на длине волны рентгеновского излучения  $\text{MoK}_\alpha$  ( $\lambda = 0.71 \text{ \AA}$ ).

сталла не является максимально возможным ввиду дефектов настройки кристалла.

Для повышения контраста полученных изображений был повторен эксперимент с большим временем экспозиции (30 с) и использованием полихроматического (“белого”) излучения, что в значительной степени облегчает юстировку кристалла. При этом на двумерном детекторе регистрировался только отраженный сигнал (рис. 4а). Полученные результаты сравнивались с данными топографического эксперимента по методу Ланга, которые представлены на рис. 4б.

Вследствие относительно невысокого пространственного разрешения по топо-томографическим экспериментальным данным не удается выявить малоразмерные кристаллические дефекты. Очевидно, что для изучения более тонких дифракционных эффектов требуется использование детектора с меньшим размером чувствительного элемента. Но в данном случае этот метод позволяет обнаружить более крупные структурные несовершенства (рис. 5).

Видно, что полученные топограммы практически совпадают. Следует отметить, что “белое” излучение слабо чувствительно к ориентационному контрасту. Это позволяет уменьшить размеры изображений мощных дефектов типа трещин, включений и повысить пространственное разрешение метода.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Впервые метод топо-томографии реализован на лабораторном источнике. На примере синтетического кристалла LiF с малым коэффициентом поглощения получена восстановленная трехмерная структура кристаллических дефектов. Отмечена возможность растрескивания этого кристалла вдоль плоскости (111) при его механической обработке.

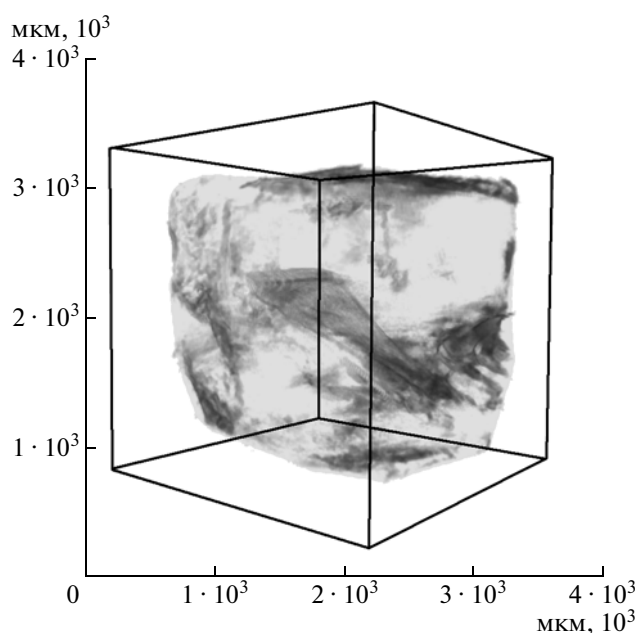


Рис. 5. Трехмерное строение дефектных областей кристалла LiF.

Таким образом, с одной стороны, показана возможность использования лабораторного источника для проведения топо-томографических экспериментов, а с другой – возможность применения известных томографических алгоритмов для реконструкции внутреннего строения кристаллических дефектов по дифракционным данным. Такой подход был реализован с применением алгебраического метода реконструкции SART для случая параллельного пучка с учетом наклона оси вращения.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Black D.R., Long G.G. X-Ray Topography. Mater. Sci. Eng. Laboratory, 2004. 53 p.

2. *Authier A.* Dynamical Theory of X-Ray Diffraction / 2-nd ed. Oxford University Press, 2003. 696 p.
3. *Боуэн Д.К., Таннер Б.К.* Высокорастворимая рентгеновская дифрактометрия и топография / Пер. с англ. Шульпиной И.Л., Аргуновой Т.С. СПб.: Наука, 2002. 274 с.
4. *Schetinkin S.A., Podurets K.M., Kvardakov V.V. et al.* // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. 2007. V. 575. P. 140.
5. *Асадчиков В.Е., Бузмаков А.В., Золотов Д.А. и др.* // Кристаллография. 2010. Т. 55. № 1. С. 167.
6. *Kuper K.E., Zedgenizov D.A., Ragozin A.L. et al.* // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A. 2007. V. 575. P. 255.
7. *Золотов Д.А., Бузмаков А.В., Ширяев А.А. и др.* // Поверхность. Рентген., синхротрон. и нейтрон. исслед. 2009. № 9. С. 3.
8. *Kak A.C., Slaney M.* Principles of Computerized Tomographic Imaging. New York: IEEE Press, 1988.
9. *Ludwig W., Cloetens P., Hartwig J. et al.* // J. Appl. Cryst. 2001. V. 34. P. 602.
10. *Feldkamp L.A., Davis L.C., Kress J.W.* // J. Opt. Soc. Am. A. 1984. V. 1. № 6. P. 612.
11. *Baruchel J., Hartwig J., Pernot-Rejmankova P.* // J. Synchrotron Rad. 2002. V. 9. P. 107.
12. *Kawado S., Taishi T., Iida S. et al.* // J. Synchrotron Rad. 2004. V. 11. P. 304.
13. *Mueller K.* Fast and accurate three-dimensional reconstruction from cone-beam projection data using algebraic methods. Dissertation. The Ohio State University, 1998.