

# 晶体位错处理对 X 射线衍射性能的影响

王洪建<sup>1,3</sup> 李泽仁<sup>1</sup> 肖沙里<sup>2</sup> 叶 雁<sup>1</sup> 阳庆国<sup>1</sup>

<sup>1</sup>中国工程物理研究院流体物理研究所冲击波物理与爆轰物理重点实验室, 四川 绵阳 621900  
<sup>2</sup>重庆大学光电技术及系统教育部重点实验室, 重庆 400030  
<sup>3</sup>重庆工商大学重庆市发展信息管理工程技术研究中心, 重庆 400067

**摘要** 为提高晶体对波长为 0.1~20 nm 的 X 射线的衍射效率,通过特殊工艺对特定晶体表面进行位错处理。将云母、 $\alpha$ -石英和 LiF 晶体劈成 80 mm×10 mm 的晶体薄片,其中 LiF 晶体厚度研磨到 1 mm,其余三种晶体厚度为 0.2 mm。将 LiF 晶体加热到 400 °C,然后用椭圆型折弯机进行多次弯曲,自然冷却降到室温,使晶格发生位错现象。在波长为 0.154 nm 的 Cu 靶 X 射线衍射仪上进行衍射试验,经晶体后利用成像板或 X 射线 CCD 获得衍射谱线,其中 Mica 球弯晶获得多级衍射谱线,经过表面处理的 LiF 晶体获取的 X 射线光子数比未处理的高 2 倍。结果表明晶体表面经过位错处理后提高了衍射效率,更适合 X 射线诊断研究。

**关键词** 衍射;晶体分光计;位错处理;X 射线衍射;衍射率

**中图分类号** O43 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/CJL201239.s115001

## Influence on X-ray Diffraction by Crystal's Surface Dislocation Treatment

Wang Hongjian<sup>1,3</sup> Li Zeren<sup>1</sup> Xiao Shali<sup>2</sup> Ye Yan<sup>1</sup> Yang Qingguo<sup>1</sup>

<sup>1</sup>National Key Laboratory of Shock Wave and Detonation, Physics Institute of Fluid Physics, China Academy of Engineering Physics, Mianyang, Sichuan 621900, China

<sup>2</sup>The Key Laboratory of Optoelectronic Technology and System, Ministry of Education, Chongqing University, Chongqing 400030, China

<sup>3</sup>Chongqing Engineering Technology Research Center for Information Management in Development, Chongqing Technology and Business University, Chongqing 400067, China

**Abstract** To improve the crystal X-ray diffraction efficiency in wavelength range of 0.1~20 nm, it is processed that crystal surface is dealt with specific technique. Those crystals, such as mica,  $\alpha$ -quartz and LiF, are cleaved slice of 80 mm×10 mm, with LiF crystal thickness of 1 mm, other crystals thickness of 0.2 mm. LiF crystal is heated up to about 400 °C, then bended by curved-machine time after time and cooled to room temperature by natural, resulting in a so-called dislocation phenomenon which leads to enhance diffractive efficiency. The experience is carried on a Cu target X-ray diffractometer (XRD) with wavelength of 0.154 nm. Muti-diffractive phenomenon happens on mica spherical surface crystal. Double intensity is achieved on processed LiF crystal surface compared to original crystal. The experimental results show that it is more suitable to diagnose soft X-ray after treating the crystal surface for improving dislocation.

**Key words** diffraction; crystal spectrometer; dislocation process; X-ray diffraction; diffraction rate

**OCIS codes** 050.1970; 340.7480; 300.6490

## 1 引言

强激光驱动金属材料或低密度气体靶辐射出大

量的 X 射线,具有吸收系数高、焦斑小、脉宽短、光子能量高等特点<sup>[1,2]</sup>,是很好的光源,能用于惯性约

**收稿日期**: 2012-02-01; **收到修改稿日期**: 2012-03-01

**基金项目**: 中国工程物理研究院发展基金(2010B0401050)、重庆市科委自然科学基金计划(CSTC,2010BB4250)和重庆工商大学博士启动基金(2011-56-04)资助课题。

**作者简介**: 王洪建(1976—),男,博士后,主要从事光学精密仪器、X 射线诊断方面的研究。E-mail: whj\_cqu@163.com

束核聚变(ICF)、Z 箍缩电磁内爆以及冲击压缩材料等实验诊断。晶体谱仪作为高能 X 射线光谱诊断的有效工具,其晶体色散器件是谱仪的关键部件,对 X 射线的衍射效率将直接影响光谱诊断结果,也是 X 射线晶体学的主要研究内容之一。X 射线晶体学将 X 射线与晶体学联系在一起,从而可以对各类晶体结构进行研究,特别是蛋白质晶体结构。针对测量 X 射线点光源的空间分辨率、时间分离率以及能谱分辨不同,常根据几何结构分为平面晶体<sup>[3]</sup>、椭圆弯晶<sup>[4,5]</sup>、球面弯晶<sup>[6,7]</sup>、柱面弯晶<sup>[8]</sup>和圆锥面弯晶<sup>[9]</sup>等。Clothiaux 等<sup>[10]</sup>利用球面和平面  $\alpha$ -石英晶体( $2d=0.851$  nm),通过旋转方式测量了 Al 等离子体极化光谱。Hitoki 等<sup>[11]</sup>利用 KAP 平面晶体在皮秒 KrF 激光器上测量 CF<sub>2</sub> 靶产生的 X 射线。Henke 等<sup>[12]</sup>通过大量实验标定了常用晶体的衍射效率和积分反射率,并测定了晶体内部反射系数之比。

针对衍射晶体的消光效应,本文根据不同晶体特性,在特定温度下,采用机械弯曲工艺使云母、LiF、 $\alpha$  石英晶体发生位错现象,提高了其衍射效率,以便更好地应用于高温等离子体 X 射线的动态试验诊断。利用波长为 0.154 nm 的 X 射线进行衍射,表明上述晶体经过位错工艺处理后,提高了衍射率。

## 2 表面位错处理

晶体内部结构中的质点(原子、离子、分子)有规则地在三维空间呈周期性重复排列,组成一定形式的晶格,外形上表现为一定形状的几何多面体,常用  $hkl$  表示。当用其作为 X 射线色散元件时,在表面常产生俄歇电子跃迁。如果发射的电子越多,散射能力就越强<sup>[13]</sup>。决定晶体衍射性能的四个基本参数是晶格常数、半峰全宽(FWHM)、峰值衍射率( $P$ )和积分反射系数( $R_p$ )。而通过对晶体表面进行解理、研磨和腐蚀等特殊工艺处理,能够改变晶体的半峰全宽、峰值衍射率和积分反射率系数,如表 1 所示<sup>[14]</sup>。表中晶体参数,除 KAP 晶体外,均以 Cu 的  $K_\alpha$  辐射测定;KAP 晶体的参数用 Al 的  $K_\alpha$  辐射测定。EDDT 为酒石酸乙二胺;KAP 为邻苯二甲酸氢钾。

表 1 中参数是在双晶分光计上测定的<sup>[14]</sup>,表面研磨过的 LiF 晶体,其积分反射系数  $R_p$  值比未研磨时高 10 倍。可见对晶体表面进行处理,能够提高其

衍射强度,这是由于研磨造成的边缘位错促使完整晶体镶嵌块化,减弱了消光效应,增大了反射强度的缘故。但是,除碱金属卤素晶体外,大多数晶体都不能以这种简单的处理办法来提高衍射强度。

表 1 表面处理对晶体性能的影响

Table 1 Influence on crystal performance by surface treatment

Crystal material	State	$\omega$ / s	$P$ / %	$R_p$ / rad
LiF	New cleavage	14	40	$3 \times 10^{-5}$
LiF	Abrasive	110	50	$4 \times 10^{-4}$
Calcite	Cleavage	14	45	$4 \times 10^{-5}$
Topaz	Wheted and Abrasive	10	57	$4 \times 10^{-5}$
EDDT	Leaved	125	20	$2 \times 10^{-4}$
KAP	Leaved	70	30	$5 \times 10^{-5}$

增加位错的实验中,可充分利用 LiF 晶体的这种良好特性。图 1 显示了劈开、研磨和弯曲处理过的 LiF 晶体的积分反射系数与 X 射线波长( $\lambda$ )之间的关系,并与理想晶体和镶嵌晶体的理论曲线作了比较。把 LiF 晶体加热至 400 °C 左右,将它弯成曲率半径为 200 mm 的柱面,然后再成平直状,反复两次,这样的弯曲使位错蔓延到整个晶体。对晶体表面进行研磨,只能使位错扩展到表面以下大约 0.05 mm 的深度<sup>[14]</sup>,故对于能穿过这种深度的短波辐射,有必要采用弯曲方式来提高积分反射系数。

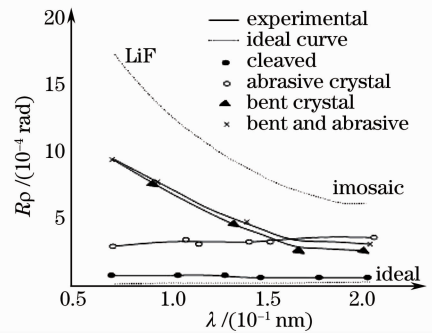


图 1 晶体处理对积分反射系数的影响

Fig. 1 Influence on the integrated reflectivity by crystal treatment

适用于 X 射线谱仪分光计的最佳晶体,显然应当具备较理想的镶嵌块,即镶嵌晶体或者完美晶体。为了减少对衍射强度的吸收,晶体还应尽可能由一些原子序数较低的元素组成。而对有些晶体而言,随积分反射系数增加,会导致光谱半峰全宽增加,分辨率降低,与设计期望相反。寻找分光晶体最理想的标准,应确保晶体积分反射系数最佳而半峰全宽应在允许的分辨率范围内,犹如脉冲波形。

### 3 晶体位错实验

晶体必须具有相当大的有效尺寸,目前国内能够使用的最大尺寸约为 80 mm。晶体本身具有一定的塑性变形能力,但在  $0.35^\circ$  的镶嵌延伸下易损坏。运用现代制造工艺加工弯晶,可以完好地保持

表 2 四种自然晶体布拉格衍射特性

Table 2 Bragg diffraction characteristics for four natural crystals

Line	$E/eV$	$R_m$	$R_p/mr$	$R_\pi/R_o$	$P_\pi/\%$	$P_o/\%$	$\omega_\pi/mr$	$\omega_o/mr$	$E/\Delta E_\pi$	$E/\Delta E_o$	$\lambda/nm$
LiF(200)	8048	1.160	0.0310	0.702	98.60	100.0	0.021	0.0300	19400	13800	0.154
PET(002)	8048	2.090	0.0352	0.937	99.30	99.4	0.028	0.0298	6420	6020	0.154
Mica(002)	930	0.016	0.0143	0.012	0.05	3.9	0.467	0.5040	1920	1780	0.133
$\alpha$ -quartz	8048	0.279	0.0379	0.868	92.70	94.2	0.032	0.0362	7960	7010	0.154

比如, LiF 晶体属于立方晶系,密度为  $2.64\text{ g/cm}^3$ ,熔点为  $870^\circ\text{C}$ ,莫氏硬度为 3 级,很难解理。聚对苯二甲酸乙二醇酯(PET)晶体易脆,难弯曲,易潮解。云母晶体属于单斜晶系,容易解理,弹性较好,容易弯曲,衍射级数多。石英晶体弹性较好。相对云母、石英等晶体制作工艺, LiF 晶体制作工艺要困难一些,更具代表性。LiF 可以通过加热到数百摄氏度弯曲成型,以适应晶体分析器所需半径。

实验选用 PET、云母、 $\alpha$ -石英和 LiF 晶体材料,先将它们切割成  $80\text{ mm} \times 10\text{ mm}$  的晶片,由于 PET、云母、 $\alpha$ -石英三种晶体容易解理,所以将它们剥开成厚度为  $0.2\text{ mm}$  的薄片。由于 LiF 晶体的硬度大、并且脆性也很大,不能解理成厚度为  $0.2\text{ mm}$

物质的原始结构性能。而且晶体的布拉格衍射特性与自身各向异性有关,如表 2 所示<sup>[12]</sup>。云母晶体试验用铜的  $L_\alpha$  线试验,其余晶体均是按铜的  $K_\alpha$  线进行试验。

的薄片,所以将其研磨成厚度为  $1\text{ mm}$  的晶片。而且 LiF 晶体因只有塑性而没有弹性,在常温下不能弯曲,故将 LiF 晶片加热到  $400^\circ\text{C}$ ,然后用特殊的晶体压弯工具进行弯曲,再缓慢冷却到室温时为止<sup>[15]</sup>。由于 PET 晶体的塑性大,弹性较差,如果将其加热后再弯曲会出现炸裂现象,所以不能采取加热弯曲的工艺。而云母和  $\alpha$ -石英晶体因弹性较好,能够在常温下直接弯曲。将弯曲后的晶片用慢固化率的环氧树脂平整粘贴在椭圆形或球面型不锈钢基底上,完成的椭圆弯晶分析器和球面晶体分析器如图 2 所示(其中椭圆离心率为  $0.9480$ ,焦距为  $1348\text{ mm}$ ;球面半径为  $250\text{ mm}$ )<sup>[15,16]</sup>。

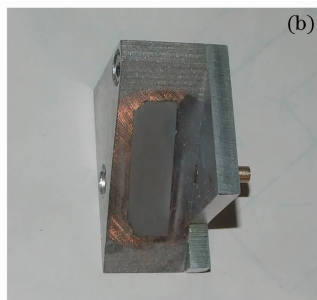
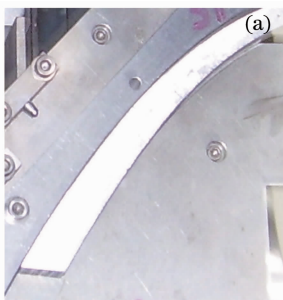


图 2 两种典型弯晶分析器。(a)椭圆弯曲分析器;(b)球面晶体分析器

Fig. 2 Two typical curved crystal analyzer. (a) Elliptical bent analyzer; (b) spherical crystal analyzer

利用 X 射线衍射仪产生波长为  $0.154\text{ nm}$  的铜  $K_\alpha$  射线,以及用 Cr 产生波长为  $0.230\text{ nm}$  的  $K_\alpha$  线,对晶体谱仪备选晶体进行衍射实验,获得 Cr 的衍射谱线如图 3 所示,其中云母和  $\alpha$ -石英球面弯晶获取的衍射强度如图 4 所示。经过一次弯晶工艺处理实现 LiF 晶格发生位错现象,其获得的 X 射线衍射强度与未处理的 LiF 晶体衍射试验结果如图 5 所示。



图 3 Cr 靶 X 射线衍射照片

Fig. 3 X-ray diffraction photo of Cr target

### 4 实验结果

在 PET、云母、 $\alpha$ -石英和 LiF 晶体的衍射实验

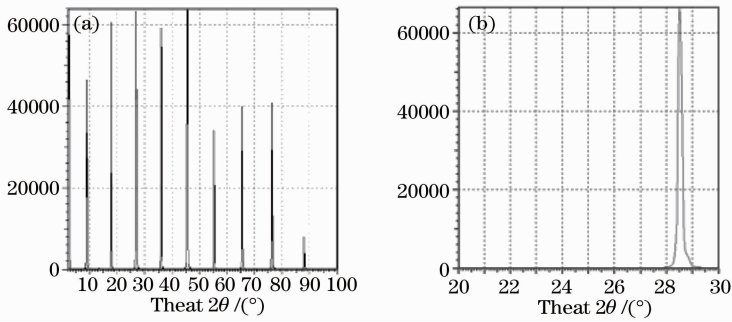


图 4 晶体衍射强度图。(a)云母(002); (b)  $\alpha$ -石英(1011)

Fig. 4 Diffraction intensity of crystal. (a) Mica(002); (b)  $\alpha$ -quartz(1011)

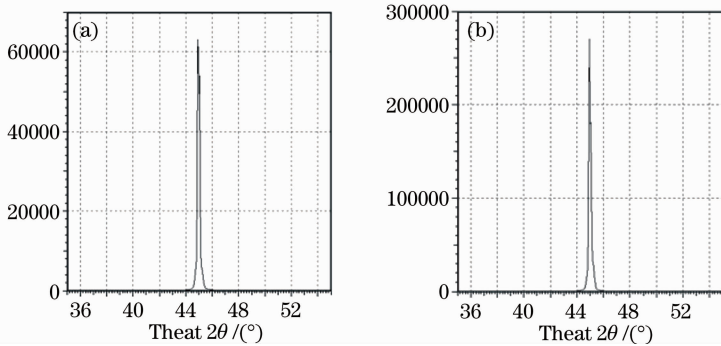


图 5 两种 LiF(200)的晶体衍射强度图。(a)处理过的晶体; (b)未处理过的晶体

Fig. 5 Measured diffraction intensity of abrasive and unsettled LiF(200) crystals. (a) Processed crystal surface; (b)original crystal

中,云母得到了多阶衍射信号,而且半峰全宽窄,阶次分别是  $n=1, 2, \dots, 9$ ,各阶衍射的布拉格角数据如表 3 所示。从实验图 4(a)所知,云母的第 3、5 阶次的衍射光谱最强,其次是第 2、4 阶衍射。当  $n \geq 6$  后,随衍射阶次增加,衍射的效率降低,故选用云母作为分光计晶体时,常选用第 2、3 阶作为设计的基础<sup>[14,16]</sup>。但是当硬 X 射线强度非常强时,可以利用云母的更高阶数进行衍射试验。甚至在布拉格角接近  $70^\circ$  时,仍能获取特征谱线。在图 4(b)图中, $\alpha$ -石英衍射峰值较好,但半峰全宽比云母的衍射峰值宽<sup>[12]</sup>。

表 3 云母(002)在波长为 0.154 nm 的各级布拉格角数据  
Table 3 Bragg angle data of mica(002) with wavelenth of 0.154 nm

Rank	1	2	3	4	5	6	7	8	9
$\theta / (^\circ)$	4.5	8.9	13.4	17.8	22.3	26.7	31.2	35.6	40.1

X 射线经表面处理过的 LiF 晶体衍射后得到了衍射线,谱线强度高,达到了约 64 万个计数值;而未经处理的 LiF 晶体,表面粗糙,晶体分子排列不完全规则,衍射线强度低,谱线强度计数值只有 27 万。前者是后者的 2.4 倍,主要因为前者经过表面处理,然后通过弯曲工艺,提高了晶格排列位错率。此外,

由于冷却时间、弯曲幅度、弯曲频率等关键工艺,实验获得 X 射线的衍射效率还未达到理论值。

## 5 结 论

作为各类晶体谱仪的关键元件,晶体对 X 射线的衍射性能极为重要。对晶体进行表面处理可以改变半峰全宽、峰值衍射率和积分反射率等参数,有利于提高晶体衍射性能。因为晶体衍射强度跟衍射晶面的面积有密切关系,通过解理、研磨、弯曲晶体,改善了晶格位错排布结构,提高晶体衍射强度。如对 LiF(200)晶体进行表面研磨处理,在衍射仪上实验,得到的衍射强度是未处理 LiF(200)晶体的 2.4 倍。试验结果表明,对 LiF 晶体进行位错改变,能够提高晶体的衍射效率,为其应用到高温等离子体诊断中提供了良好的技术基础。晶体表面处理的温度、弯曲应力等分析将在以后的工作中继续深入研究,以便进一步提高 X 射线衍射性能,适合高能 X 射线能谱、成像等诊断。

## 参 考 文 献

1 Wang Ganchang. Inertial Confinement Fusion[M]. Shijiazhuang: Hebei Education Press, 2004  
王淦昌. 惯性约束核聚变[M]. 石家庄: 河北教育出版社, 2004

- 2 Suman Bagchi, P. Prem Kiran, K. Yang *et al.*. Bright, low debris, ultrashort hard X-ray table top source using carbon nanotubes[J]. *Phys. Plasmas*, 2011, **18**(1): 014502
- 3 Fan Pinzhong, E. Fill, Guan Tietang. Soft X-ray crystal spectrograph[J]. *Acta Optica Sinica*, 1995, **15**(7): 923~926  
范品忠, E. Fill, 关铁堂. 软 X 射线晶体谱仪[J]. 光学学报, 1995, **15**(7): 923~926
- 4 Wang Hongjian, Xiao Shali, Shi Jun *et al.*. Elliptical crystal spectrometer researched for Z-pinch plasma X-ray by using Au-wire arrays[J]. *Chinese J. Lasers*, 2010, **37**(3): 685~688  
王洪建, 肖沙里, 施 军等. 金丝 Z 箍缩等离子体 X 射线椭圆弯晶谱仪研究[J]. 中国激光, 2010, **37**(3): 685~688
- 5 B. L. Henke, P. A. Jaanimagi. Two-channel elliptical analyzer spectrograph for absolute time-resolving time-integrating spectrometry of pulsed X-ray sources in the 100~10000 eV region [J]. *Rev. Sci. Instrum.*, 1985, **56**(8): 1537~1545
- 6 Shali Xiao, Hongjian Wang, Jun Shi *et al.*. High resolution X-ray spherically bent crystal spectrometer for laser-produced plasma diagnostics[J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2009, **7**(1): 92~94
- 7 T. A. Shelkovenko, S. A. Pikuz, D. A. Hammer. Use of spherically bent crystals to diagnose wire array z pinches [J]. *Rev. Sci. Instrum.*, 2004, **75**(10): 3681~3683
- 8 Wang Hongjian, Xiao Shali, Shi Jun *et al.*. Convex crystal spectrometer for Z-pinch plasma X-ray diagnosis[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2011, **23**(2): 403~406  
王洪建, 肖沙里, 施 军等. Z 箍缩等离子体 X 射线凸晶谱仪 [J]. 强激光与粒子束, 2011, **23**(2): 403~406
- 9 Yang Qingguo, Li Zeren, Peng Qixian *et al.*. Theoretical calculation and design for cylindrical and conical bent crystal spectrograph[J]. *Acta Optica Sinica*, 2009, **29**(2): 382~387  
阳庆国, 李泽仁, 彭其先等. 圆柱面和圆锥面弯晶谱仪的理论计算及设计[J]. 光学学报, 2009, **29**(2): 382~387
- 10 E. J. Clothiaux, E. Oks, J. Weinheimer *et al.*. Measurement of the polarization of line profiles in the X-ray region and the diagnostic possibilities [J]. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 1997, **58**(4-6): 531~536
- 11 Hitoki Yoneda, Noboru Hasegawa, Shu-ichi Kawana *et al.*. Large anisotropy of the electron distribution function in the high-density plasma produced by an ultrashort-pulse UV laser [J]. *Phys. Rev. E*, 1997, **56**(1): 998~991
- 12 B. L. Henke, E. M. Gullikson, J. C. Davis. X-ray interactions: photoabsorption, scattering, transmission, and reflection at  $e=50-30000$  eV,  $z=1-92$ [J]. *At. Data & Nucl. Data Tables*, 1993, **54**(2): 181~342
- 13 Liang Dongcai. Fundamentals of X-Ray Crystallography [M]. Beijing: Science Press, 1991. 355~356  
梁栋材. X 射线晶体学基础 [M]. 北京: 科学出版社, 1991. 355~356
- 14 Sun Jingwen. High Temperature Plasma X-ray Spectroscopy [M]. Beijing: National Defence Industry Press, 2003  
孙景文. 高温等离子体 X 射线谱学 [M]. 北京: 国防工业出版社, 2003
- 15 Wang Hongjian. Polarization Spectral Diagnosing in Laser-Produced Plasma [D]. Chongqing: Chongqing University, 2010  
王洪建. 激光等离子体极化光谱诊断研究 [D]. 重庆: 重庆大学, 2010
- 16 Wang Hongjian, Xiao Shali, Shi Jun *et al.*. Spherically bent crystal spectroscopy in laser-produced plasma [J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2008, **20**(2): 251~254  
王洪建, 肖沙里, 施 军等. 激光等离子体球面晶体光谱成像 [J]. 强激光与粒子束, 2008, **20**(2): 251~254

栏目编辑: 韩 峰