

УДК 548.4:539.26

**Высокоскоростная рентгеновская лабораторная система
распознавания ориентации монокристаллов и оценки
структурного совершенства**

Поляков С.Н.¹, к.ф.-м.н.; Аксененков В.В.¹; Жолудев С.И.¹;
Мартюшов С.Ю.¹; Денисов В.Н.¹, к.ф.-м.н.; Дрынкин В.А.¹;
Тренингов И.А.², к.т.н.; Бланк В.Д.¹, д.ф.-м.н.

spolyakov@phys.msu.ru, s.i.zholudev@gmail.com

¹ ФГБНУ ТИСНУМ, Россия, г. Москва, г. Троицк, ул. Центральная д.7а,

² Федеральное государственное унитарное предприятие «Всероссийский
научно-исследовательский институт авиационных материалов»
Государственный научный центр Российской Федерации

Аннотация:

Продemonстрировано высокое быстродействие и высокая эффективность экспериментальной лабораторной установки под управлением единого программного модуля, включающего в себя систему распознавания изображений двумерной картины Лауэ-дифракции от монокристаллов.

Ключевые слова

Метод Лауэ, определение ориентации монокристаллов.

Abstract:

We have demonstrated a high speed of operation and an efficiency of the experimental laboratory setup under control of the software module including a system of recognition of the single-crystal Laue diffraction pattern.

Keywords:

Laue method, determination of a single-crystal orientation

Реферат

Разработаны и экспериментально протестированы три возможные схемы регистрации лауэграмм и эпиграмм. Выработана оптимальная стратегия сбора данных для обеспечения максимального быстродействия получения качественного изображения картины Лауэ-дифракции, пригодного для последующей обработки. Разработана программа с использованием языка программирования LabView, позволяющая дистанционно управлять осями гониометра, т. е. устанавливать исследуемый кристалл в заданное положение, управлять работой источника рентгеновского излучения, считывать информацию с детектора, проводить юстировочные работы, а также строить теоретические лауэграммы и эпиграммы для кристаллов с известной кристаллической структурой. Разработан алгоритм очистки двумерной картины дифракции (изображения) от различных шумов и определения центров тяжести дифракционных рефлексов, что обеспечивает приведение изображения к виду, пригодному для сравнения с теоретическими лауэграммами, содержащимися в базе данных [1]. Проведены тестовые эксперименты по регистрации картин Лауэ-дифракции от монокристаллов кремния и алмаза. Продемонстрирована универсальность и высокая эффективность автоматизированной системы в экспериментах по определению взаимной ориентации блоков бикристалла лейкосапфира, выращенного методом двойной затравки (патент RU 2107358 C1). Проведены эксперименты по оценке быстродействия системы с использованием совершенного монокристалла кремния. Установлено, что картина дифракции отчетливо наблюдается даже при частоте 100 кадров/сек. Высокое качество картины

Лауэ-дифракции при частоте 2 кадра/сек пригодно для проведения дальнейшей обработки сигналов, т.е. выполнения процедуры распознавания образов. Таким образом, реализован режим наблюдения картины дифракции в реальном времени.

Вводная часть

Получение картин дифракции от монокристаллов по методу Лауэ, экспериментально гораздо проще, чем в монокристалльной дифрактометрии на монохроматическом излучении и даже проще, чем в методе порошковой дифрактометрии. Например, чтобы получить полную картину дифракции, в монокристалльной дифрактометрии требуется выполнение операции сканирования образца с помощью специализированных гониометров, на что уходит довольно много времени. В методе Лауэ полная картина дифракции получается от неподвижного монокристалла при облучении его рентгеновским пучком с непрерывным спектром. Благодаря такой специфике получения дифракционной картины, метод Лауэ является самым быстрым методом сбора дифракционных данных. Поэтому для создания быстродействующего устройства получения изображения полной картины дифракции этот метод является наиболее подходящим. При использовании пучков яркого синхротронного излучения методом Лауэ можно собирать достаточный для рентгеноструктурного анализа набор данных с наносекундной экспозицией. Однако, для решения рутинных задач рентгенодифракционного анализа, таких как определение ориентации поверхности монокристаллических пластин или слитков, углов отклонения поверхности относительно кристаллографических плоскостей и индцирование лауэграмм, на синхротронах ввиду высокой стоимости и ограниченности доступа проводить нецелесообразно. В настоящее время, благодаря использованию новых сверхвысокочувствительных

полупроводниковых детекторов, элементов рентгеновской оптики нового поколения и источников рентгеновского излучения с вращающимся анодом наблюдение картины дифракции в реальном времени можно реализовать и в лабораторных условиях. В этом случае проведение лабораторных экспериментов по наблюдению Лауэ – дифракции в режиме реального времени становится сравнимо с экспериментами на синхротронных источниках. Преимущество в этом случае будет заключаться в том, что эти эксперименты можно проводить регулярно в течение длительного периода времени.

В настоящее время на практике широко используются программы распознавания образов или так называемые системы технического зрения. Эти программы были использованы нами для решения задач обработки изображений картин дифракции (лауэграмм и эпиграмм), регистрируемых с помощью лабораторной автоматизированной системы [2] с целью распознавания ориентации монокристаллов. Реализация в полном объеме поставленной задачи позволит создать систему технического зрения для проведения научных исследований, включающих в себя определение формы элементарной ячейки, группы симметрии и оценки структурного совершенства кристаллов в реальном времени. Эта система привлекательна для проведения фундаментальных исследований структурных изменений, происходящих в реальном времени с миллисекундным временным разрешением.

Данные о методике исследования

Стандартно регистрация лауэграмм в лабораторных условиях осуществляется с помощью фотографического метода, требующего больших временных затрат. Лучший вариант – использование IP (Imaging Plate) пластин, т. е. пластин с оптической памятью. Однако, регистрация

картины рассеяния и ее считывание с помощью специализированного оборудования, основанное на использовании сканирования лазерным лучом, также потребует значительных временных затрат. Таким образом, реализовать режим реального времени можно только с помощью высокочувствительных детекторов. Стандартные рентгеновские детекторы на основе приборов с зарядовой связью (ПЗС) обладают слишком низкой чувствительностью и большим уровнем шумов, что не позволяет их использовать для регистрации Лауэ – картины в лабораториях. В настоящее время рядом фирм – изготовителей разработаны предельно чувствительные и высокоразрешающие пространственные полупроводниковые рентгеновские детекторы прямого преобразования. Такими детекторами комплектуются современные дифрактометры, но, к сожалению, они адаптированы для работы только с характеристической K_α - линией излучения медного анода ($E \sim 8\text{кэВ}$) и имеют небольшую входную апертуру. Для регистрации же полной картины Лауэ – дифракции требуется большая апертура и возможность работы с жестким рентгеновским излучением. Высокая стоимость рентгеновских детекторов с большой апертурой, используемых в синхротронных центрах делает их недоступными для использования в лабораториях. Для визуализации картины дифракции нами разработана система регистрации, основанная на использовании оптической ПЗС камеры Andor Neo, обладающим рекордной чувствительностью и малым уровнем шумов, в сочетании с высокоразрешающим флуоресцентным экраном большого размера и светосильным оптическим объективом. Обработка изображений двумерных изображений картин дифракции (лауэграмм и эпиграмм) проводилась с помощью библиотеки OpenCV. Для построения теоретических лауэграмм и эпиграмм использовалась программа Laue Pattern [3].

Разработка и выбор оптимальной конструкции автоматизированной системы

Наиболее оптимальной с точки зрения высокой чувствительности была выбрана схема на отражение. В этом варианте коллиматор для формирования узкого рентгеновского пучка диаметром 1 мм, высокоточный дистанционно-управляемый пятиосевой гониометр с установленным на нем кристаллом, флуоресцентный экран $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S}(\text{Tb})$ и детектор Andor Neo с оптическим объективом размещаются внутри изолированного от видимого света кожухе. Оптическая схема представлена на рис. 1. Тестовые эксперименты по регистрации лауэграмм для различных кристаллов проводили с использованием «белого» излучения вольфрамового анода в следующем режиме работы 9 кВт источника излучения с вращающимся анодом: напряжение на аноде $U=50\text{кВ}$, ток $I=100\text{мА}$. В качестве активного слоя для флуоресцентного экрана был выбран $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S}(\text{Tb})$, обладающий наилучшими характеристиками для работы с жестким рентгеновским излучением. Данный материал характеризуется высокой радиационной стойкостью и высокой эффективностью преобразования рентгеновского излучения в видимый спектральный диапазон. Был подобран экран с толщиной активного слоя ~ 120 мкм, при которой поглощается большая часть рентгеновского излучения, что обеспечивает наилучшую яркость преобразованного излучения. В качестве оптического детектора была выбрана высокочувствительная и высокоскоростная камера Andor Neo. Матрица этого детектора имеет размер 2560×2160 пикселей размером 6 мкм и охлаждается до температуры -40°C с целью уменьшения темнового тока, что позволяет детектировать даже крайне слабые сигналы. Низкое количество шумов позволяет работать также в режиме накопления

(несколько десятков минут). Максимальная скорость съемки зависит от размера задействованной области матрицы и представлена в таблице 1.

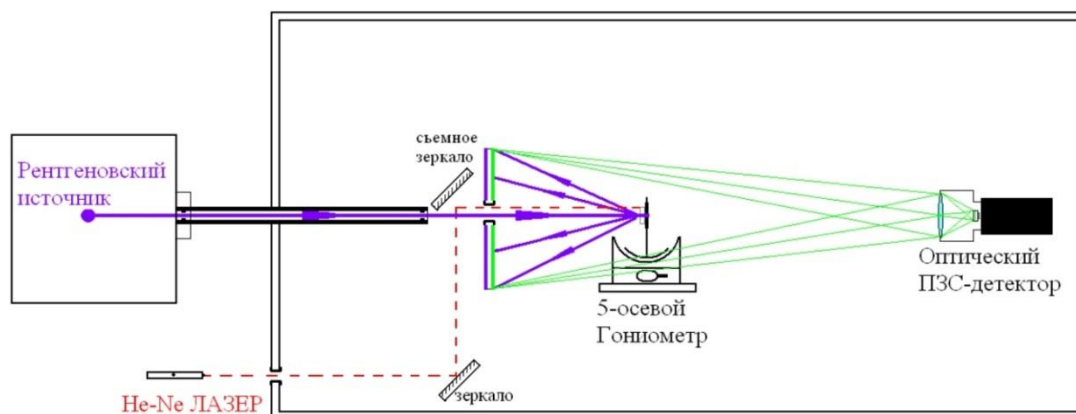


Рис. 1 – Оптическая схема автоматизированной системы

Таблица 1

Быстродействие камеры Andor Neo

Используемая область детектора	Максимальная частота съемки, кадров/сек
2560x2160	100
2048x2048	105
1920x1080	199
1392x1040	206
512x512	419
128x128	1639

Для прецизионного ориентирования образцов был собран пятиосевой гониометр на основе двух линейных и трех вращательных подвижек фирмы Newport с точностью поворотов по углам ~ 1 угл.сек и абсолютных линейных перемещений с точностью ~ 1 мкм. Установка помещена внутрь светонепроницаемого кожуха, что позволяет избавиться от засвечивания детектора извне. Фотография собранной системы регистрации картины дифракции вместе с оптическими компонентами,

используемыми для установки кристаллов в точное положение относительно рентгеновского пучка, представлена на рис. 2.

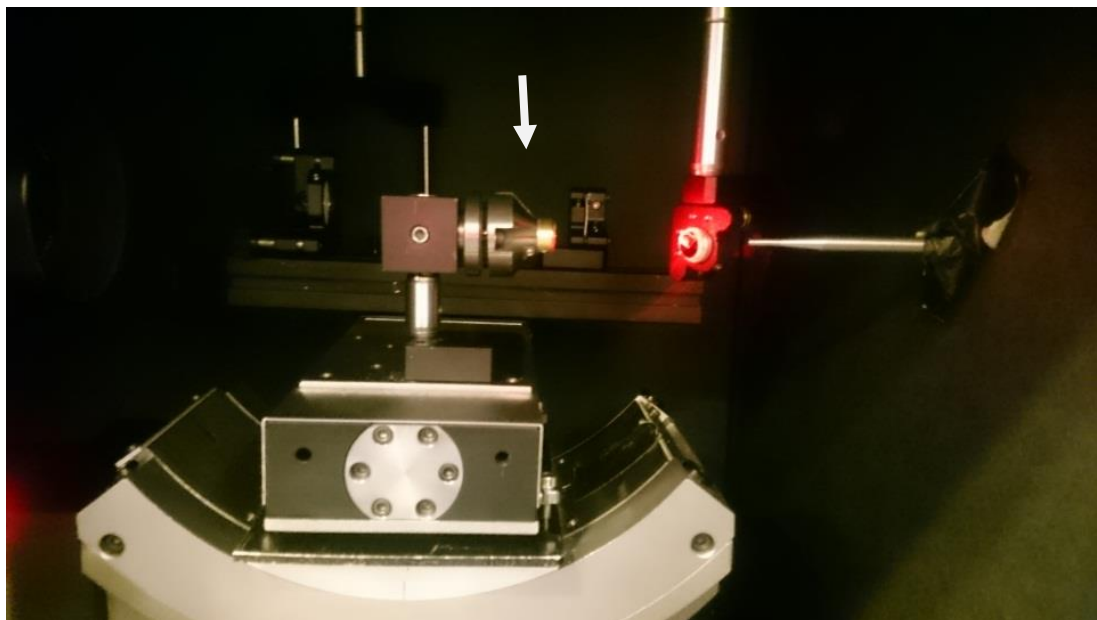


Рис. 2 – Вид автоматизированной системы

Были разработаны и протестированы две альтернативные схемы автоматизированной системы “на просвет” и “на отражение”. В первой альтернативной схеме был использован режим дифракции “на просвет”. По своим характеристикам эта схема аналогична схеме, представленной на рисунке 1. Чувствительность детектирования такого же порядка, образец также располагается в поле зрения съемки. Тем не менее, выбор в пользу схемы на рисунке 1 был обусловлен спецификой, связанной с обработкой дифрактограмм “на просвет”: при работе с сильно разориентированными кристаллами картина зональных эллипсов на лауэграмме (дифракция “на просвет”) существенно сложнее для расшифровки, чем картина зональных гипербол на эпиграмме (дифракция “на отражение”). К тому же, для съемки “на просвет” необходимо наличие относительно тонких образцов (сотни микрон, несколько миллиметров в зависимости от атомного номера Z материала образца), что не всегда возможно. Другая альтернативная

схема соответствует дифракции “на отражение” и потенциально является наиболее предпочтительной. В этой схеме, в отличие от схемы на рисунке 1, образец находится за пределами светозащитного кожуха, что очень удобно для установки образца. Кроме того, это позволяет получить более полную картину дифракции, зарегистрировав, в том числе и близкие к «нулевому» рентгеновскому пучку рефлексy. Более того, в данной схеме переключение переход от режима юстировки к режиму регистрации дифрактограммы осуществляется лишь смещением зеркал, управляемых дистанционно, что еще более ускоряет процесс определения/распознавания ориентации. Существенным недостатком данной схемы, тем не менее, является тот факт, что для ее работы необходимо, чтобы дифрагированный от кристалла пучок проходил насквозь флуоресцентный экран, формируя картину на поверхности активного слоя, расположенного внутри светозащитного кожуха. Иными словами, необходимо, чтобы интенсивности прошедшего рентгеновского пучка было достаточно, для того, чтобы возбудить флуоресценцию поверхности активного слоя. Для флуоресцентного экрана $Gd_2O_2S(Tb)$ при использовании рентгеновского пучка с энергией ~ 10 кэВ это условие может быть выполнено при толщине активного слоя $\sim 20\text{--}40$ мкм. Однако среди коммерчески доступных экранов наименьшая толщина активного слоя составляет $100\text{--}120$ мкм. При такой толщине активного слоя рентгеновский пучок практически полностью поглощается, так и не достигнув обратной поверхности экрана. В результате интенсивность флуоресцентного излучения на поверхности экрана оказывается крайне низкой, потому от данной схемы пришлось отказаться.

Экспериментальная часть

Оценка быстродействия системы с использованием совершенного монокристалла кремния

Для оценки чувствительности разработанной системы был проведен тест на минимальное время экспонирования лауэграммы (т. е. на максимальную скорость съемки). В качестве тестового образца был выбран монокристалл кремния толщиной ~ 0.4 мм. На рис. 3 представлены лауэграммы монокристалла кремния, полученные при использовании коллиматора, формирующего рентгеновский пучок диаметром 1мм, при различных временах экспозиции (в диапазоне от 0.01 сек до 1 сек). Основные рефлексы отчетливо наблюдаются даже при $t=0.01$ сек. Высокое качество лауэграмм при частоте 2 кадра/сек позволяет с уверенностью утверждать, что реализован режим наблюдения картины дифракции в режиме реального времени. Такое качество вполне пригодно для проведения дальнейшей обработки сигналов и выполнения процедуры распознавания образов.

Для дальнейшего увеличения скорости съемки используемая область детектора была уменьшена с 2560×2160 до 1550×550 . В этом случае при уменьшении времени экспозиции даже до 4.8 мс (210 кадров/сек в видео-режиме) количество шумов в целом существенно увеличивается, однако интенсивные рефлексы все равно остаются различимыми.

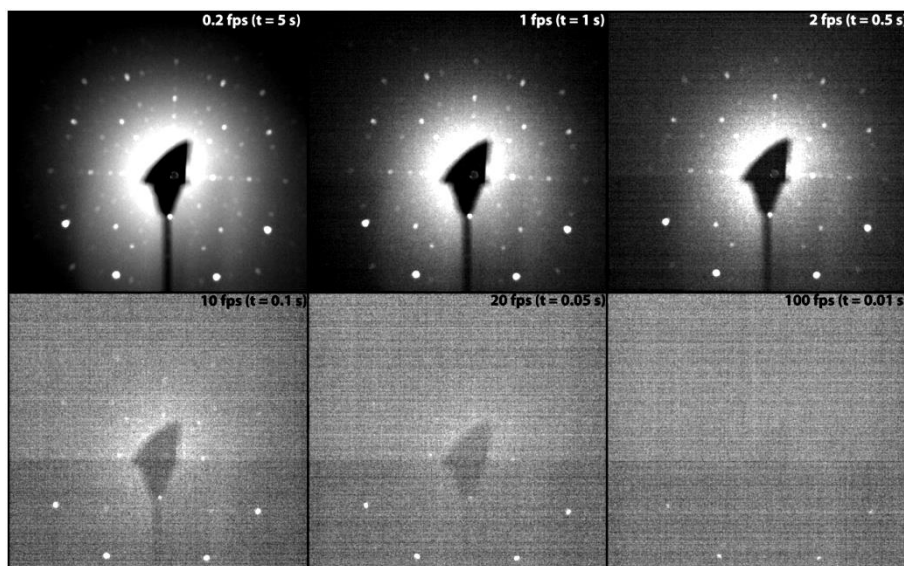


Рис. 3 – Эпиграмма монокристалла Si (толщина 0.4 мм) Разрешение 2560×2160, максимальная частота=100кадров/сек.

Определение взаимной ориентации блоков бикристалла лейкосапфира.

Для решения этой задачи использовалась схема регистрации картины дифракции “на просвет”. Чтобы предотвратить попадание прямого рентгеновского пучка на оптический объектив, использовали свинец толщиной 2 мм. На рис. 4 представлены экспериментальные (белые точки) и наложенные на них теоретические (черные точки) лауэграммы. Как видно из рисунка, имеется хорошее соответствие экспериментальных и теоретических лауэграмм. Построение теоретических лауэграмм проводилось с помощью программы Laue Pattern [3]. Это в итоге позволило определить значения углов разориентации кристаллографических плоскостей относительно нулевого положения, задаваемого с помощью оптической системы (поверхность бикристалла), а после этого и разориентацию блоков монокристалла по разные стороны от границы наклона рис. 4.

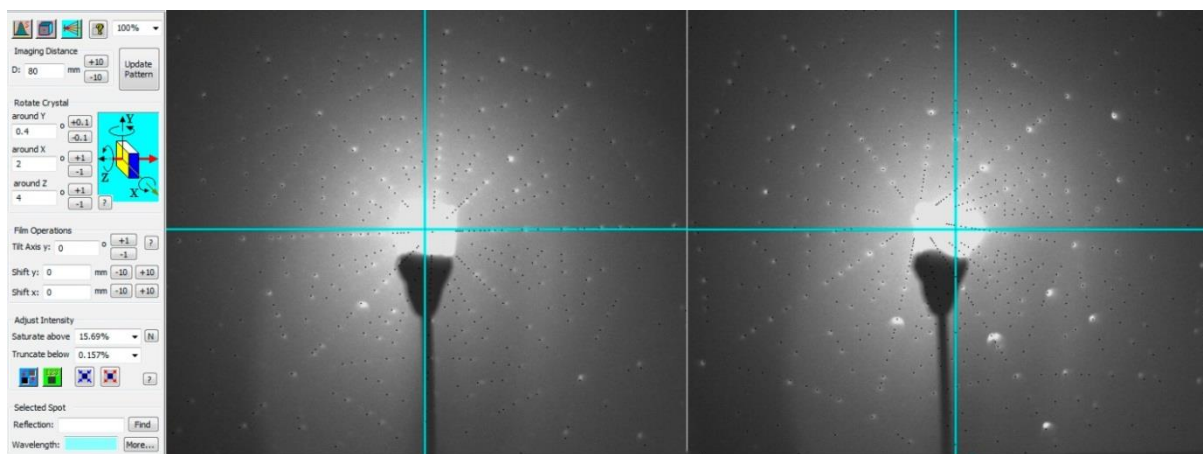


Рис. 4 – Эпиграммы бикристалла лейкосапфира по разные стороны от большеугловой границы, зарегистрированные с помощью автоматизированной системы, теоретически рассчитанная эпиграмма для данного кристаллографического направления и наложение теоретической и экспериментальной картин, для определение углов разориентации кристаллографических плоскостей в монокристалле

Угол разориентации областей бикристалла оказался равным 8.83° . При этом точность определения углов разориентации при заданном расстоянии от образца до флуоресцентного экрана составляет величину 2-3 угл.мин. Таким образом, две области бикристалла, лежащие по разные стороны от высокоугловой границы, отличаются не только поворотом вокруг общего направления, перпендикулярного плоскости $(1\bar{1}02)$, как предполагалось изначально, но и сами плоскости рассматриваемых областей являются слегка разориентированными.

Определение углов разориентации поверхности монокристаллических пластин синтетических алмазов

Совмещение оптической системы и автоматизированной системы распознавания ориентации монокристаллов позволило решить практическую задачу: изготовление алмазных пластин малого размера с заданной разориентацией поверхности относительно кристаллографических плоскостей с точностью не хуже 1 угл.мин. Для решения данной задачи был разработан специальный узел рис. 2 (указан

стрелкой), выполняющий одновременно функцию гониометрической головки и держателя образца для полировки.

Оценка структурного совершенства легированных бором алмазов.

Лауэграммы обладают повышенной чувствительностью к дефектам кристаллической решетки, поэтому могут быть использованы для определения качества кристаллов. На рис. 5 представлены лауэграммы легированных бором алмазных пластин толщиной 1 мм с (111) ориентацией поверхности разного структурного совершенства. Четкие пятна на рисунке 5а свидетельствуют о хорошем качестве кристалла. Симметрия шестого порядка, имеющая место в кристалле алмаза с повышенной концентрацией бора говорит о наличии двойников (рисунок 5б). Возникновение астеризма, т.е. размытие дифракционных пятен и их радиальное удлинение говорит о том, что кристалл содержит большое количество дефектов кристаллической решетки. Наличие дополнительных пятен малого размера связано с образованием в матрице алмаза несоразмерных модуляций [4].

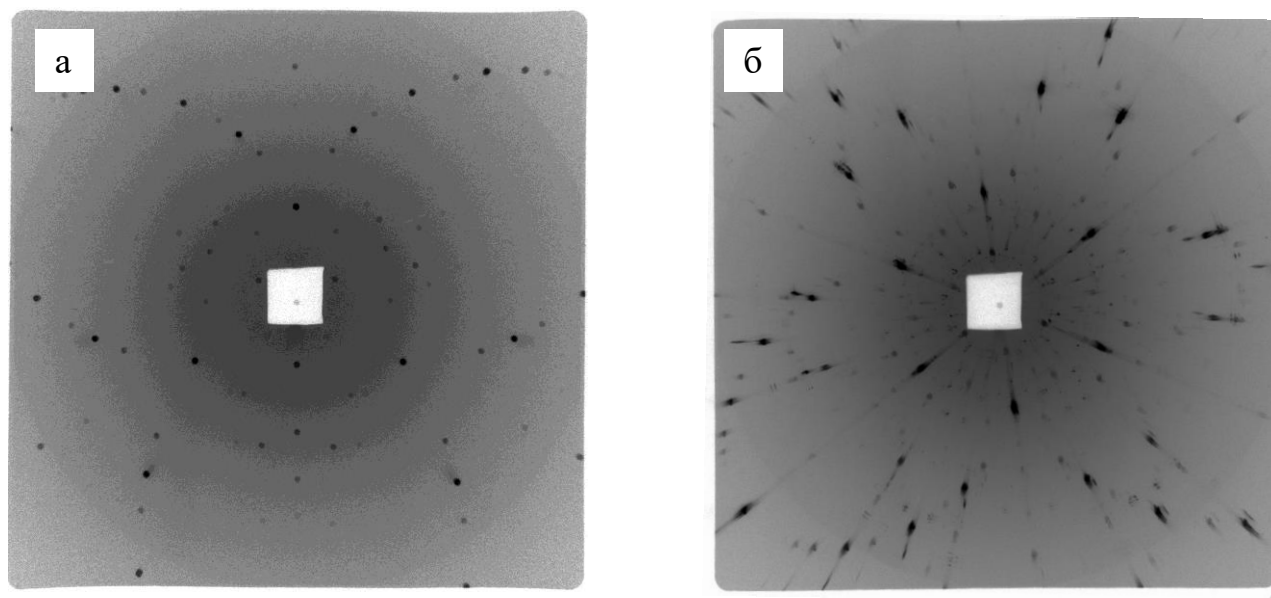


Рис. 5 – Лауэграмма алмазной пластины с разной концентрацией легирующей примеси.

- а) Концентрация бора в решетке алмаза $\sim 2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$
- б) Концентрация бора в решетке алмаза $> 2 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$

Демонстрация работоспособности системы распознавания картины дифракции

Работоспособность системы распознавания проверяли в схеме “на просвет” с использованием плоской пластины синтетического алмаза с (100) ориентацией поверхности. Обработку лауэграммы проводили в следующей последовательности. На первом этапе изображение лауэграммы с камеры поступало на вход программы предварительной обработки для учета аппаратной функции. Далее изображение загружалось в основную программу и конвертировалось в изображение, где каждая точка представлялась единственным цветовым каналом – интенсивностью со значениями в интервале от 0 до 255. На следующем этапе проводилась очистка изображения от высокочастотного шума с использованием алгоритма нелокального усреднения интенсивности [1]. При этом полагалось, что подавляющая часть шума является белым аддитивным гауссовским шумом, обусловленным темновым током матрицы, рассеянием в образце и комптоновским излучением. Далее осуществлялся поиск граней на изображении с использованием градиентных методов. После применения данного шага на изображение наносились найденные грани в виде тонких линий, отделяющие участки с разной степенью интенсивности. На следующем шаге с использованием полученной карты граней проводился поиск замкнутых контуров на изображении. Найденные замкнутые контуры отфильтровывались в соответствии с задаваемыми критериями, такими как:

- внутренняя площадь замкнутого контура
- отношение периметра контура к периметру описанной окружности
- эллиптичность
- наличие и масштаб вогнутых участков

У дифракционных рефлексов, удовлетворяющих заданным критериям, определялся центр тяжести путем наилучшей аппроксимации рефлекса кругом, т.е. положение и радиус круга подбирались таким образом, чтобы кросс-корреляционная функция круга и рефлекса была максимальна при минимальном радиусе окружности. На рис. 6 представлены конечные результаты обработки изображения.

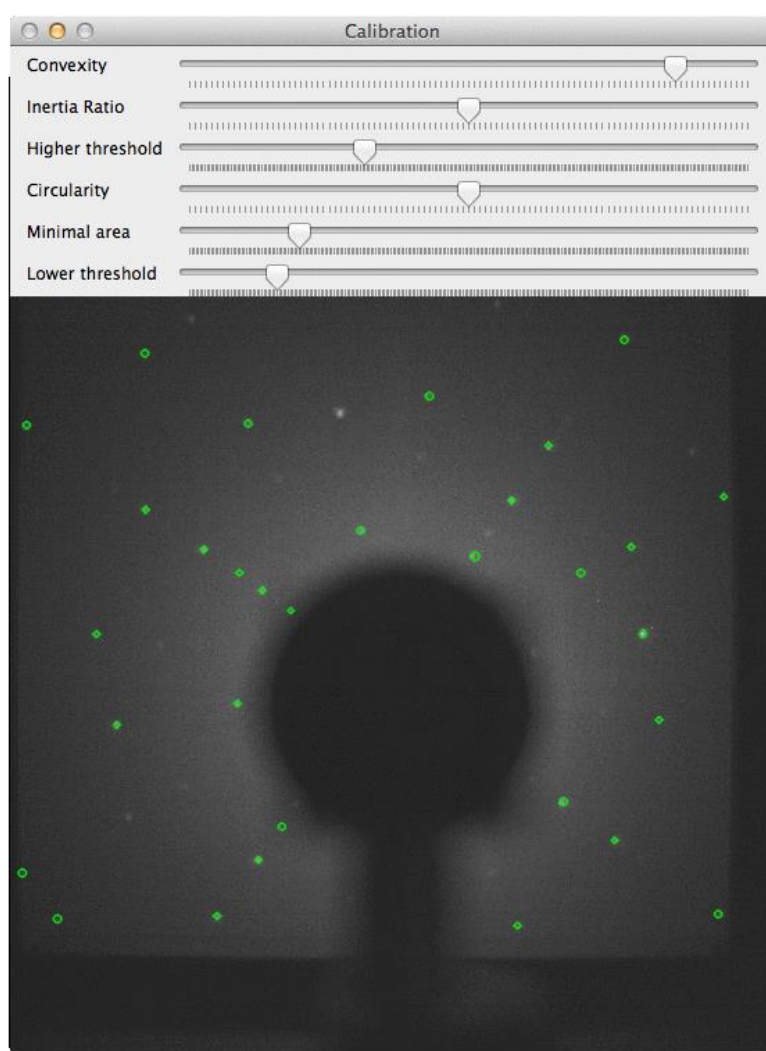


Рис. 6 – Автоматическое распознавание пятен лауэграммы монокристалла синтетического алмаза с (100) ориентацией поверхности

Выводы и рекомендации

На базе мощного рентгеновского источника, высокочувствительного оптического детектора, оптического модуля для точного позиционирования кристаллов и применения современных программ обработки разработана быстродействующая лабораторная рентгеновская система, позволяющая наблюдать картину дифракции в режиме реального времени или с минимальным временем регистрации. Управление работой рентгеновского источника, осями гониометра, юстировка, сбор и обработка данных осуществляется под единым программным управлением. Тестовые эксперименты с использованием монокристаллов синтетических алмазов, лейкосапфира и кремния показали ее высокую эффективность при решении рутинных задач рентгенодифракционного анализа, определения типа дефектов и оценки качества монокристаллов. Система универсальна и может быть адаптирована для работы с любыми монокристаллами, в том числе большого размера и сложным профилем поверхности. В работе продемонстрирована работоспособность системы распознавания картины дифракции.

Создание баз данных с использованием моделирования лауэграмм и эпиграмм для различных монокристаллов благодаря высокому быстродействию современных компьютеров открывает перспективу распознавания ориентации в режиме реального времени.

Работа выполнена при частичной поддержке проекта РФФИ №15-07-04896.

Литература

1. A. Buades, B. Coll, J.M. Morel "A non local algorithm for image denoising" IEEE Computer Vision and Pattern Recognition 2005, Vol 2, pp: 60-65, 2005.

2. Денисов В.Н., Лемеш И.Г., Мартюшов С.Ю., Поляков С.Н. “Лабораторная автоматизированная система контроля структуры кристаллов алмаза в режиме реального времени”, Химия и химическая технология, 2013, т.56, №7, С. 34–38

3. X.R. Huang “LauePt, a graphical-user-interface program for simulating and analyzing white-beam X-ray diffraction Laue patterns”, journal of Applied Crystallography. 43, 926–928 (2010).

4. S.N. Polyakov, V.N. Denisov, et.al.”Formation of Boron-Carbon Nanosheets and Bilayers in Boron-Doped Diamond: Origin of Metallicity and Superconductivity”, Nanoscale Research Letters, 2016, DOI 10.1186/s11671-015-1215-6.