

***LANDYNE* 蓝带软件**

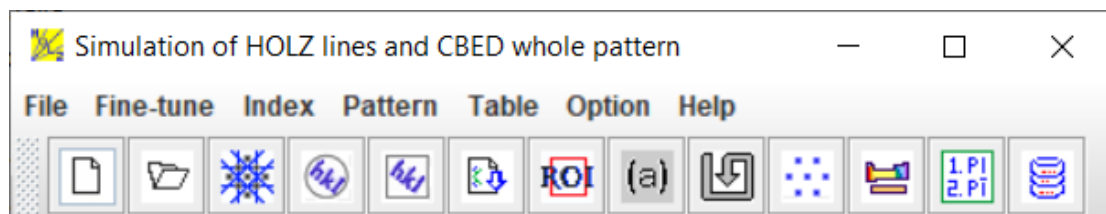
用户手册

HOLZ 线与 CBED 全图的模拟

运动学理论和动力学一级近似计算

蓝带版权 2011-2024 ©

保留所有权利



目录

1. 引言	3
2. 软件的设计和特点.....	3
3. HOLZ 线位置的计算公式	6
3.1 运动学近似衍射理论的 HOLZ 线方程.....	6
3.2 动力学衍射理论一级近似的 HOLZ 线方程.....	7
4. 软件安装和操作说明.....	8
5. 应用示例.....	9
5.1 在运动学理论和一阶动力学修正下的 HOLZ 线模拟.....	9
5.2 HOLZ 线位置与晶格参数的确定.....	10
5.3 实验和模拟的 HOLZ 线对比.....	10
6. 使用许可和信息反馈.....	12
7. 参考文献.....	12

1. 引言

Landyne 是由李兴中博士开发的用于模拟电子衍射和晶体学分析的软件包。HOLZ3 作为其中的一个组件，是基于早期的 JECF/HOLZ (Li, 2015) 的增强版本。它可用作电子显微学的教学工具，也可用作分析透射电子显微镜实验的工具。

在沿晶带轴方向的会聚束电子衍射 (CBED) 图中的明场圆盘通常显示一组细暗线 - 称为高阶劳厄带 (HOLZ) 线。这是由于高角度散射导致了高阶劳厄倒易平面与爱瓦尔德球相截。HOLZ3 是一个交互式程序，应用电子衍射运动学理论，并提供一阶动力学修正来模拟 CBED 明场圆盘中和全图中的高阶劳厄带 (HOLZ) 衍射图。

HOLZ3 的主要改进如下：

- 改进了显示面板和计算对话框的图形用户界面 (GUI)。
- 提供了一个强度阈值，以便轻松调整。
- 更新了显示系统，可显示 CBED 全图上的衍射盘指数。
- 更新了显示系统，可显示明场圆盘图上的 HOLZ 线指数。
- 引入了晶体约束，用于调整晶格参数。
- 改进了输入/输出数据/衍射图的 I/O 系统。
- 引入元素周期表和空间群表作为软件组成部分。
- 提供了衍射图的指数标定工具，以及感兴趣区域 (ROI)，方便用户添加晶带轴与图标。
- 提供了统一的界面，用于保存 TIFF、PNG、JPEG 和 GIF 格式模拟图文件。

2. 软件的设计和特点

HOLZ3 的特点简要列举如下：

- (a) 使用窗口框架和面板显示模拟的明场圆盘图上的 HOLZ 线和 CBED 全图；
- (b) 可以使用操作面板与不同的对话框初始化计算的输入参数；
- (c) 可以使用软件协助下，轻松完成结构数据文件的输入；
- (d) 提供了感兴趣区域以及指数标定工具，方便衍射图的选取和输出。

HOLZ3 集成了明场圆盘图上的 HOLZ 线和 CBED 全图模式。图 1 显示了铝晶体的 HOLZ 线的面板快照。有一个下拉菜单和一个图形菜单栏。其中模拟衍射图中的 HOLZ 线的指数可以有不同方式显示。图 2 显示了带有聚焦角度的相应 CBED 全图的面板快照。

用于模拟 HOLZ 衍射图的其他参数包括透射电子显微镜的高压和晶体样品的晶带轴，以及会聚束角度和偏离严格晶带轴的倾斜角度。指数面板提供了 HOLZ 线和 CBED 全图的最佳指数化的各种位置选项。有两种类型的 HOLZ 线，即直线或曲线。

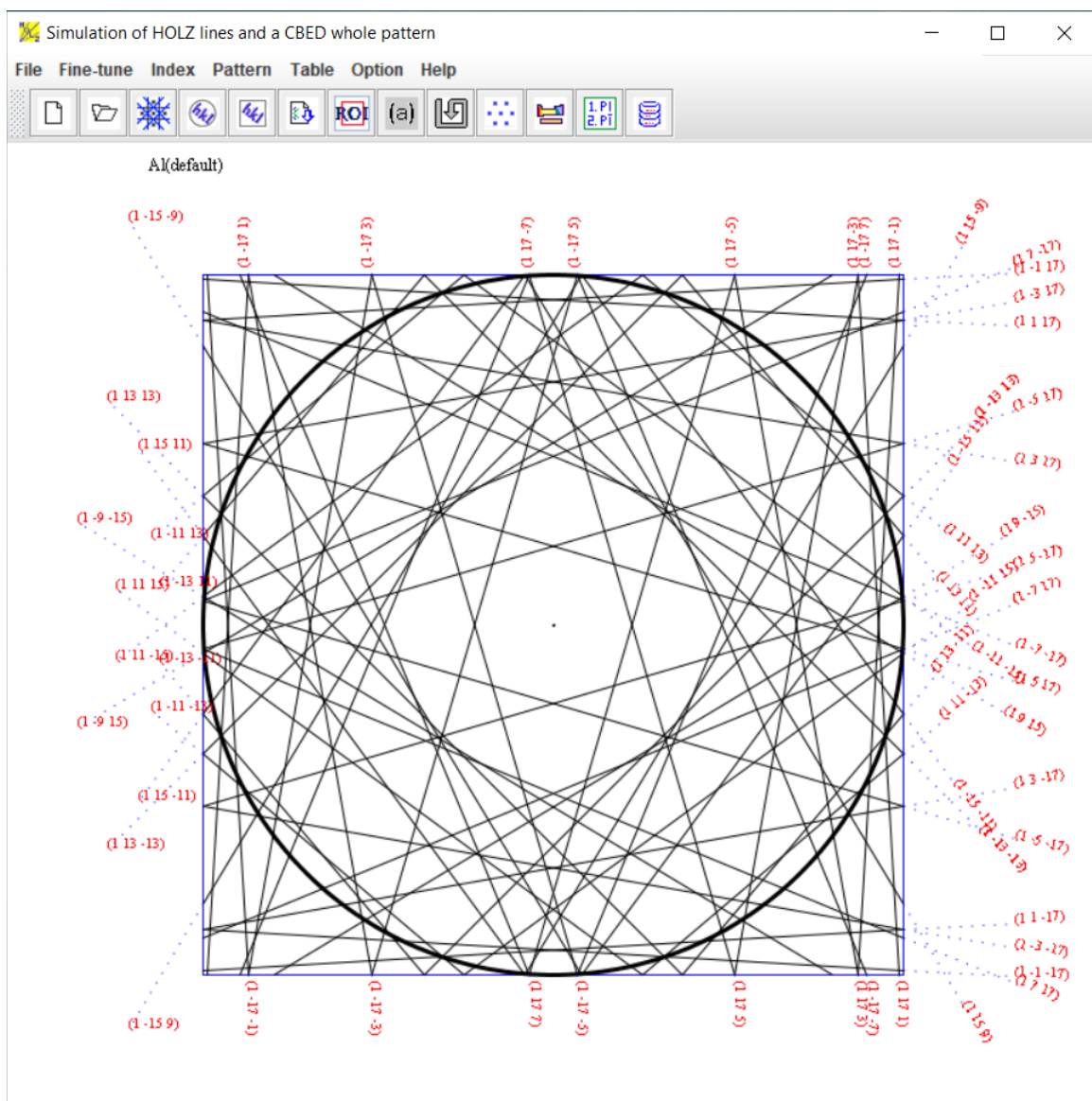


图 1. HOLZ3 软件的中心盘模式下的软件界面。图中的例子是铝晶体结构沿 $[100]$ 晶带轴, 200kV 模拟图。

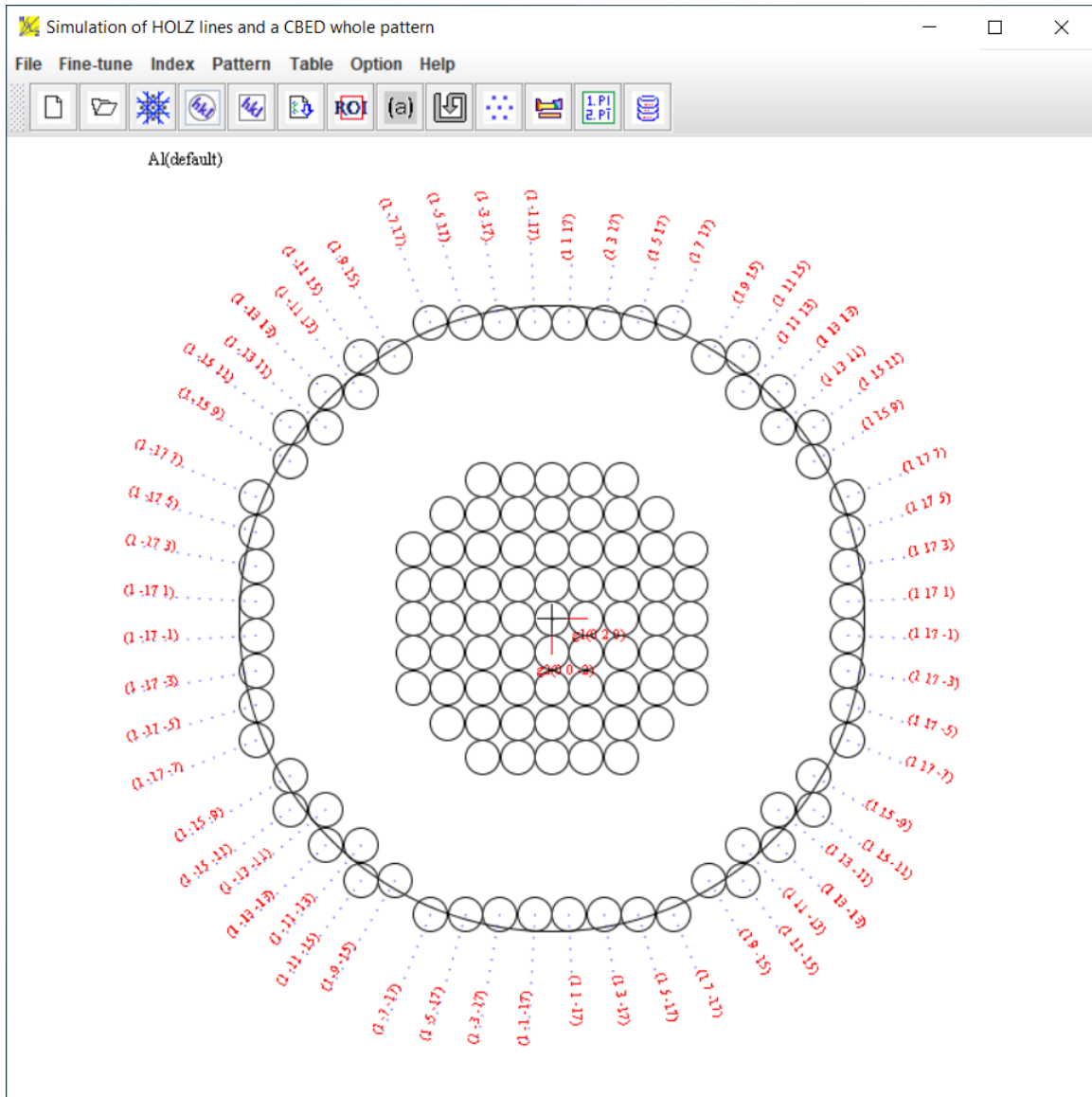


图 2. HOLZ3 软件的 CBED 全图模式下的软件界面，图中的例子是铝晶体结构沿 [100] 晶带轴，200kV 模拟图。

图 3 展示了 HOLZ3 软件的一组对话框，包括 (a) HOLZ 线模拟，(b) HOLZ 线指数标定，(c) CBED 全图中衍射盘指数标定，(d) 显示 HOLZ/CBED 选项，以及 (e) 六角晶系的三或四指数标定变换。

晶格参数可以利用拉菜单系统加载。这些参数也可以在计算控制面板上进行微调，计算相应的衍射图。

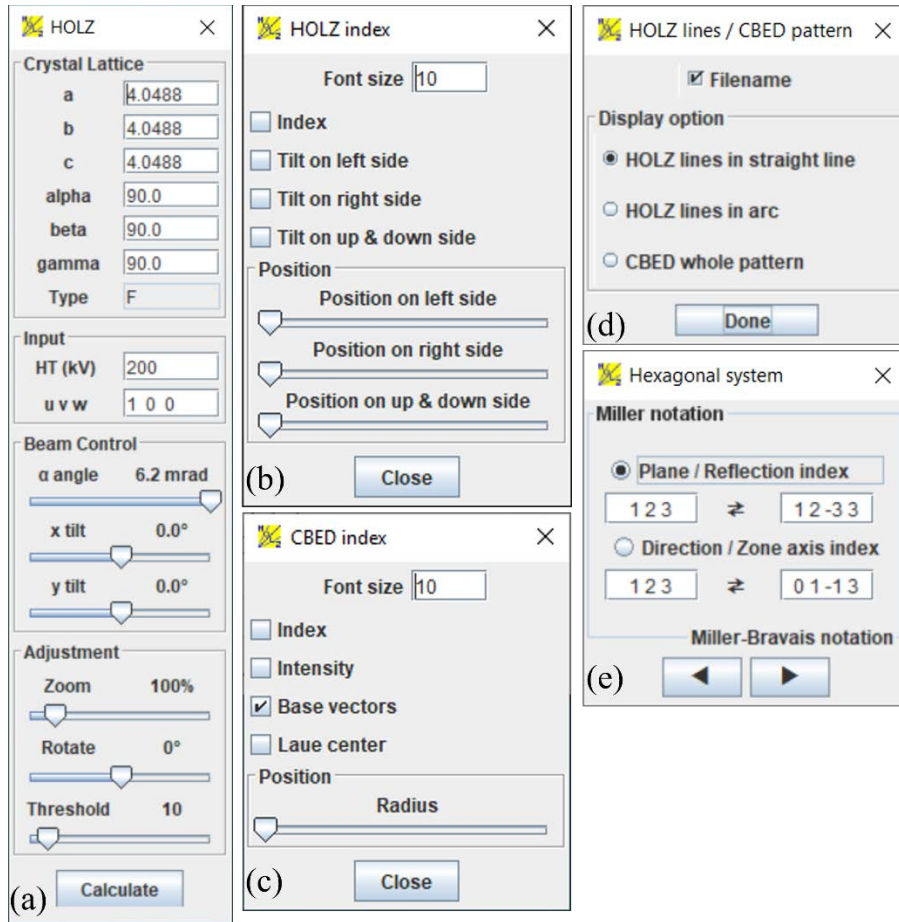


图 3. HOLZ3 软件的控制对话框，(a) HOLZ 线 模拟，(b) HOLZ 线指数标定，(c) CBED 全图衍射盘指数标定，(d) 显示 HOLZ/CBED 选项，以及 (e) 六角晶系三或四指数标定变换。

3. HOLZ 线位置的计算公式

3.1 运动学近似衍射理论的 HOLZ 线方程

在运动学近似衍射理论中，HOLZ 线是满足 Bragg 条件的反射 g 的轨迹。入射束 k 可以分解为沿着 $-z$ 方向的 k_n 和在 (x, y) 平面内的 k_t 两部分。我们可以将 HOLZ 线看作是 k_t 的函数， k_t 是一个矢量，起点位于晶带轴的中心，并延伸到中央盘的感兴趣点。其轨迹由以下两个方程描述（Spencer 和 Zuo，1992）：

$$g_x k_x + g_y k_y - g_z k_z + \frac{g^2}{2} = 0 \quad \text{.....(1)}$$

$$k_z = \sqrt{(k^2 - k_x^2 - k_y^2)} \quad \text{.....(2)}$$

这里， $g^2 = g_x^2 + g_y^2 + g_z^2$ 。

如果我们使用抛物线方程， $k_x = k - \frac{k_x^2 + k_y^2}{2k}$ 作为球面方程的近似，

$k_x = \sqrt{(k^2 - k_x^2 - k_y^2)}$ ，我们最终得到了 HOLZ 线轨迹的方程（Li, 2007）：

$$(k_x + \frac{g_x}{g}k)^2 + (k_y + \frac{g_y}{g}k)^2 = k^2 + (\frac{g}{g_x}k)^2 - \frac{g^2}{g_x}k \dots\dots(3)$$

$$(k_x + g_x)^2 + (k_y + g_y)^2 = r^2 = k^2 - (k_x - g_x)^2 \dots\dots(4)$$

3.2 动力学衍射理论一级近似的 HOLZ 线方程

一阶动力学修正就是为了简化动力学衍射理论计算而发展的（Bithell 和 Stobbs, 1989; Lin 等人, 1989; Zuo, 1992）。在一阶动力学修正中，假设只发生 HOLZ 反射之间的弱相互作用。中央盘上 HOLZ 线的位置可以近似为零层色散面 ($k_1 = k_0 + \gamma(1)$ ，其中 $\gamma(1)$ 是离晶带轴本身的球上最高激发分支的距离) 与以 HOLZ 反射为中心的平面波球的交点。

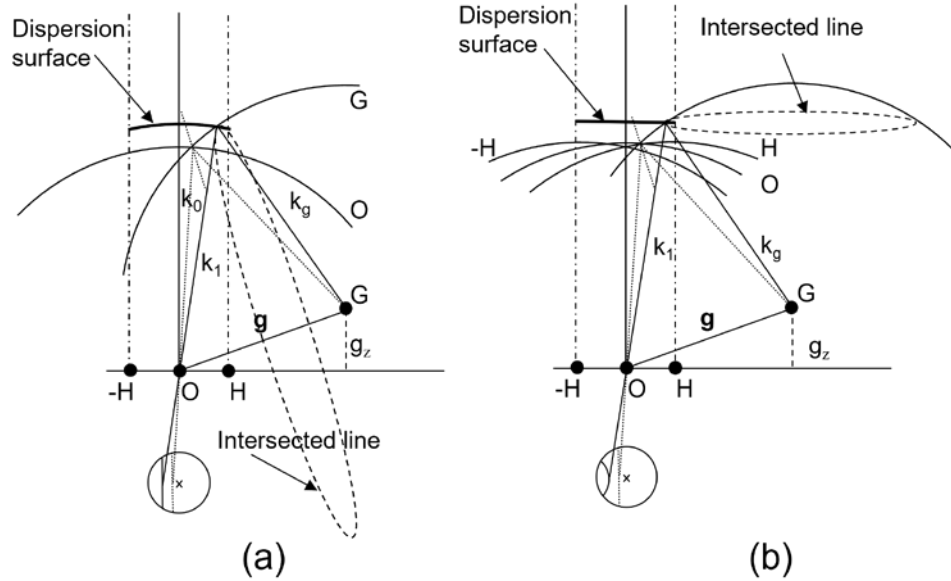


图 4. 两种不同情况下使用色散面构造形成 HOLZ 线的示意图，（a）零级劳厄区的弱动力效应，例如，入射光束远离晶带轴，（b）零级劳厄区的强动力效应，例如，入射光束靠近或位于晶带轴。

利用色散面讨论 HOLZ 线形成是一种有效的几何解释 (Li, 2007)。此外，它对于描述 HOLZ 线上的一些动力学效应特别有用。图 4 显示了两种不同情况下由于动力效应导致的线位移和曲率的几何解释，(a) 当入射光束远离晶带轴时，半径为 $k_0 + \gamma^{(1)}$ 的球面，(b) 当入射光束接近或位于晶带轴时，在 $k_0 + \gamma^{(1)}$ 处通过垂直轴的平面。色散表面显示在第一个布里渊区。相交线在第一布里渊区内有效，相交线延伸形成圆圈仅用于说明目的。虚线表示“空格”结构。下面绘制了一个 CBED 明场圆盘，以显示从运动学近似到一阶动态校正的线偏移。

当入射光束远离晶带轴时，色散面的第一分支可以近似看作半径为 $k_1 = k_0 + \gamma^{(1)}$ 的球体。因此，根据动力学修正，HOLZ 线的方程可以导出为 (Li, 2007)：

$$g_x k_x + g_y k_y - g_z k_z + \frac{g^2}{2} + g\Delta g = 0 \dots\dots(5)$$

这里，

$$g\Delta g = (k\gamma^{(0)} + \frac{\gamma^{(0)2}}{2})$$

当入射光束靠近或位于晶带轴附近时，色散面的第一分支可以近似看作与倒易晶格原点的距离为 $k_1 = k_0 + \gamma^{(1)}$ 的平面。因此，根据动力学修正，HOLZ 线的方程可以导出为 (Li, 2007)：

$$(k_x + g_x)^2 + (k_y + g_y)^2 = r^2 = k^2 - (k_z + \gamma^{(0)} - g_z)^2 \dots\dots(6)$$

4. 软件安装和操作说明

HOLZ3 是用 Java 8 编写的，其中部分为 Microsoft Windows PC 编写。要运行该软件，必须在安装有 MS-Windows 10 版本的 PC 上安装最新版本的 Java Runtime Environment (例如，JRE 1.8.0_xxx 或更高版本)。

Landyne 软件套件 landyn5，包括 HOLZ3，以 .z7 或 .zip 格式打包。压缩文件可以在以下位置找到：

<https://www.unl.edu/ncmn-enif/xzli/computer-programs>
<https://landyne.com>

HOLZ3 和其他 Landyne 组件的最新更新和消息，请访问上述网站。在所选目录中解压 landyne5.z7 文件，然后使用 landyne5.exe 生成 Landyne 管理条。

使用 HOLZ3 的基本步骤如下：

- i) 可以读取晶体数据文件，并在 **HOLZ** 对话框做晶格参数进行修改。
- ii) 从 **Pattern** 菜单栏中选择 **HOLZ** 的图形样式，**HOLZ** 线（直线或曲线）。
- iii) 可以使用交互式更改的电压、光束方向、晶格参数和会聚角度来计算 **HOLZ** 线。
- iv) 有对话框可用于对 **HOLZ** 线和 **CBED** 全图进行指数标定。
- v) 可以将 **ROI** 中的图与标签保存为 **TIFF**、**PNG**、**JPEG** 和 **GIF** 格式的文件。

尽管 **HOLZ3** 只涉及晶格参数，但通常我们使用 Landyne 套件的晶体结构文件作为输入文件。可以使用“新建晶体结构文件”对话框准备新的晶体结构数据文件（更多详细信息请参阅 Landyne 中的 **SVAT**）。该对话框为用户提供了自动助手，并确保满足文件格式的要求。模板嵌入了 Hermann-Mauguin 符号的 230 个空间群，这些空间群在国际晶体学表中列出。要保存数据结构，请单击“保存”按钮；或创建新的请单击“新建”按钮。

晶体文件还可以从以前的数据进行修改或从晶体学信息文件（**CIF**）进行转换。如果使用了另一种空间群的数据文件，用于三斜、单斜和正交系统的替代设置，请单击替代设置（1~74）。提供了一个用于将非传统符号的文件转换为标准符号的工具。

5. 应用示例

5.1 在运动学理论和一阶动力学修正下的 **HOLZ** 线模拟

动力学相互作用对 **HOLZ** 模拟造成了重要的复杂性。在动力学相互作用强烈的地方，线的位置不是由布拉格定律所预测的那样。这条线会发生偏移。值得注意的是，这种偏移是可以简单修正的：如果保持布拉格定律仍然成立，需要修改对应的电子波长值（即显微镜电压），偏离真实值。

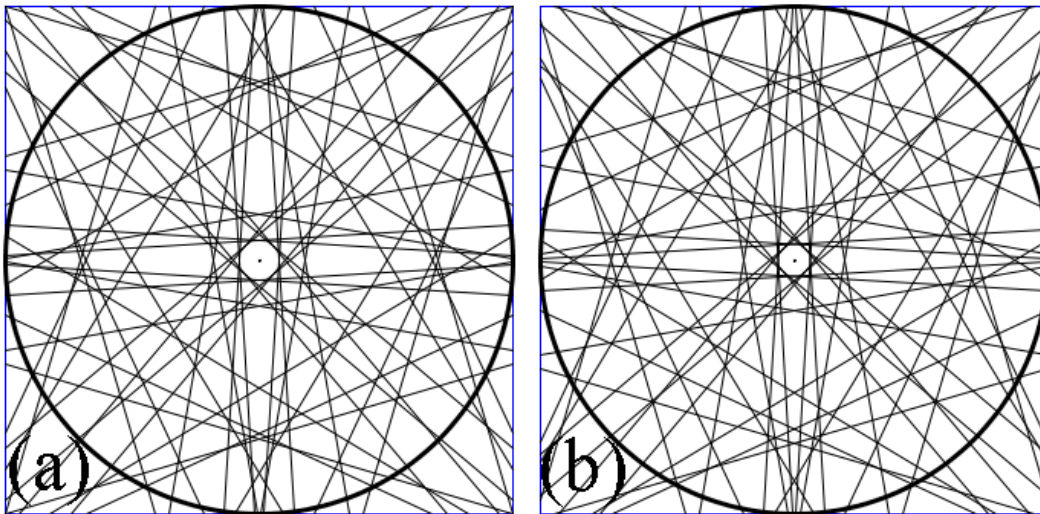


图 5. 在硅的[100]取向、100 kV 下，使用(a) 运动学理论和(b) 一阶动力学修正，在 CBED 图的明场圆盘上模拟的 **HOLZ** 线。

在 HOLZ3 中，默认设置是在运动学理论下进行模拟。此外，可以使用改进的公式进行微调，包括 (i) 考虑晶体平均电势和 (ii) 考虑 HOLZ 线偏移的一阶动力学修正。图 5 展示了硅的 [100] 取向和 100 kV 下 CBED 图案中的模拟 HOLZ 线，分别采用了 (a) 动力学理论和 (b) 一阶动力学修正。在采用一阶动力学修正后，两幅图案显示了反射线的偏移。图 4(b) 在与 Eades (1992) 论文中的相同条件下，与实验图案的吻合程度更好。

5.2 HOLZ 线位置与晶格参数的确定

HOLZ 线对于确定电子束穿过的晶体体积中的局部晶格参数非常有价值。其原理是测量一条单独的线 - HOLZ 线 - 相对于附近的参考点。通常，我们寻找晶格参数的微小变化，或者等效地说，晶体中的应变。如今，使用计算机程序模拟 HOLZ 圆盘中所有线的图已成为更常见的做法，事实上几乎已成为普遍做法。这种技术的优势除了方便之外，还在于可以在变化所有晶胞参数的情况下获得最佳拟合。

图 6 展示了在具有 Si 型变体结构的亮场 CBED 圆盘中模拟的 HOLZ 线进行比较，(a) $a = b = c = 0.54294 \text{ nm}$ ，(b) $a = 0.54335 \text{ nm}$ ， $b = c = 0.54294 \text{ nm}$ ，(c) $a = 0.5441 \text{ nm}$ ， $b = 0.54294 \text{ nm}$ ， $c = 0.5441 \text{ nm}$ 。对应图 6 在 Eades (1992) 的论文中的实验明场 CBED 圆盘和模拟的 HOLZ 线，这里使用了相同的条件进行模拟。

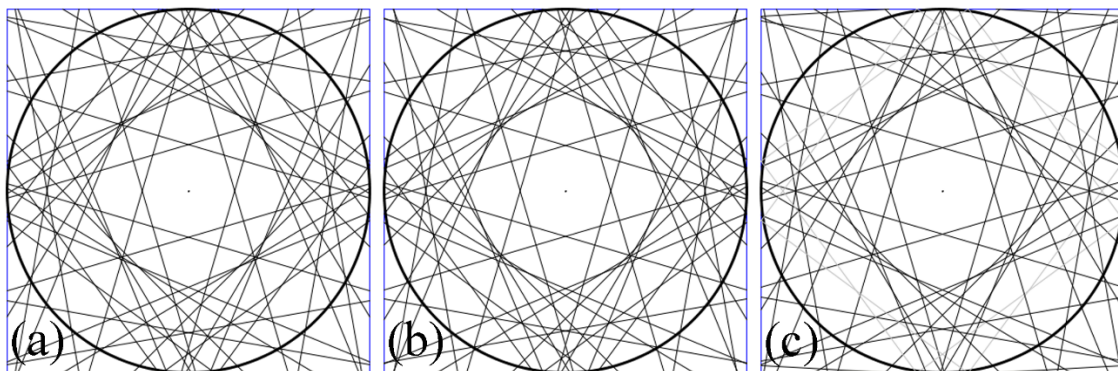


图 6. 亮场条件下带有 Si 型变体结构的 CBED 圆盘中的模拟 HOLZ 线进行比较，
(a) $a = b = c = 0.54294 \text{ nm}$ ，(b) $a = 0.54335 \text{ nm}$ ， $b = c = 0.54294 \text{ nm}$ ，
(c) $a = 0.5441 \text{ nm}$ ， $b = 0.54294 \text{ nm}$ ， $c = 0.5441 \text{ nm}$ 。

5.3 实验和模拟的 HOLZ 线对比

图 7 显示了从硅样品中获取的两个实验 HOLZ 衍射图，晶带轴由 HOLZ3 软件确定为 (a) $[5\ 5\ 3]$ 和 (b) $[3\ 3\ 1]$ ，两者都略微偏离严格的晶带轴。图 8 和图 9 是使用相邻面板中的参数进行的模拟 HOLZ 线。可以清楚地看到，计算出的图中的线条与实验 HOLZ 线中的所有强线条很好地匹配。

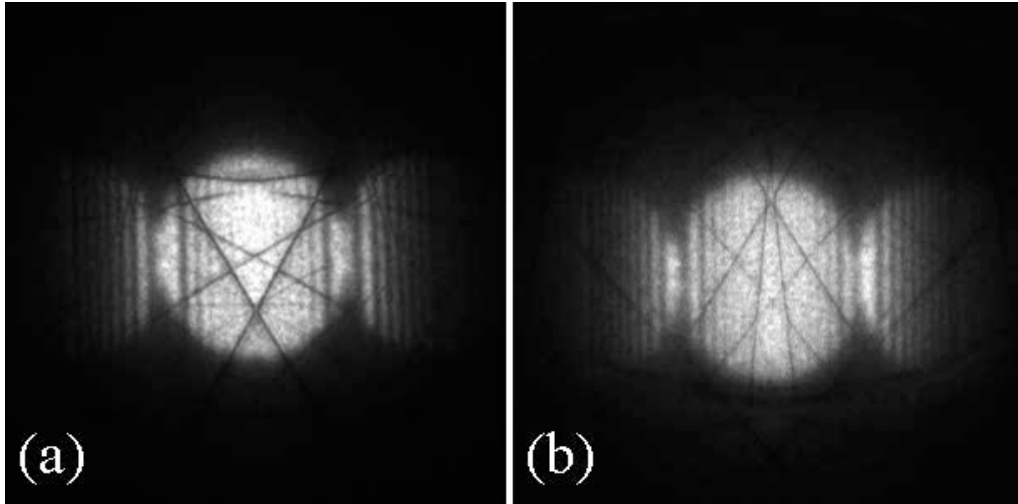


图 7. 从硅样品中沿晶带轴 (a) $[553]$ 和 (b) $[331]$ 拍摄的两个亮场 CBED 圆盘，两者都略微偏离了严格的晶带轴。

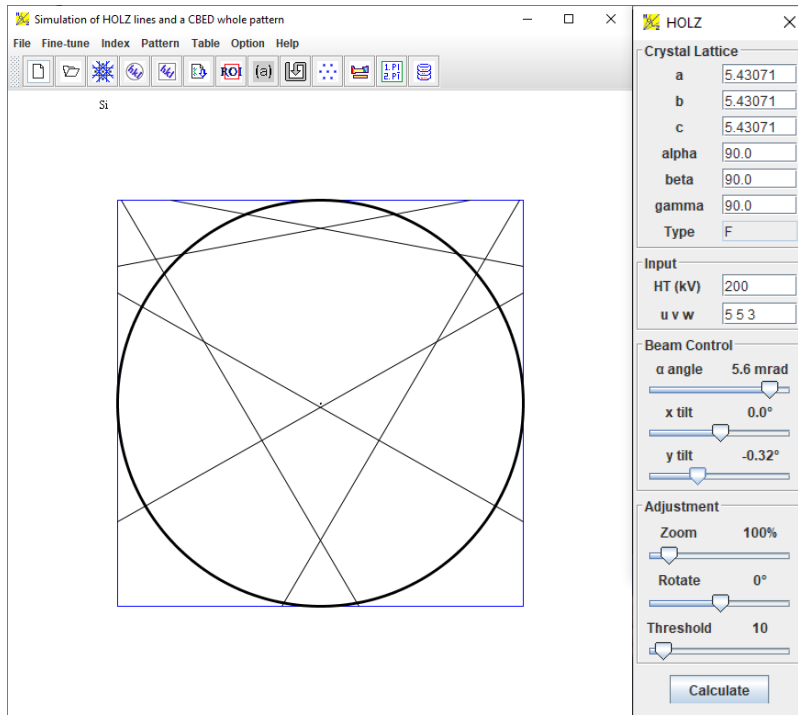


图 8. 在相邻面板中给出的参数下，计算得到的明场 CBED 圆盘中的 HOLZ 线。晶带轴是 $[5\ 5\ 3]$ ，离开晶带轴的倾角为 -0.32° 。

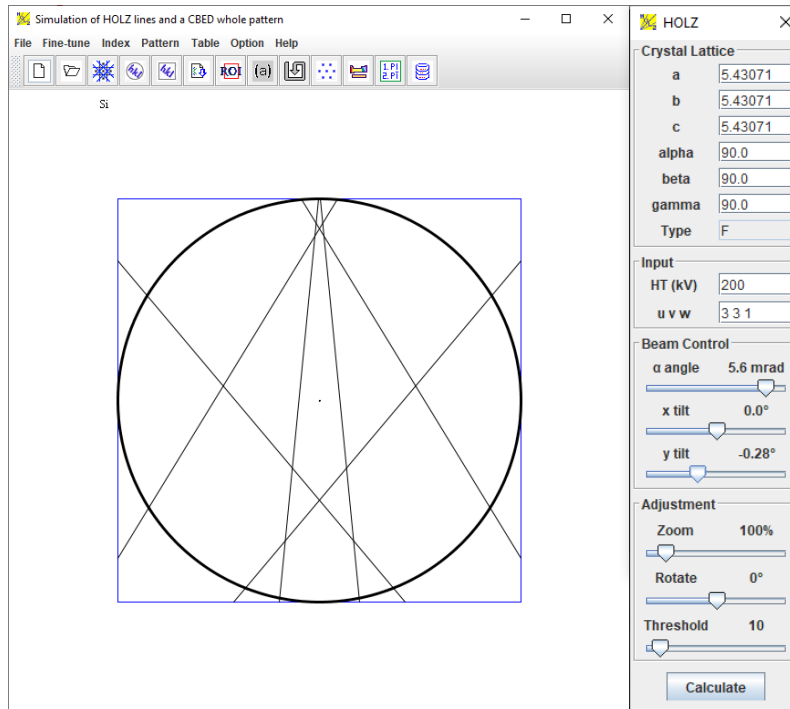


图 9. 在相邻面板中给出的参数下，计算得到的明场 CBED 圆盘中的 HOLZ 线。晶带轴是 $[3\ 3\ 1]$ ，离开晶带轴的倾角为 -0.28° 。

6. 使用许可和信息反馈

非常受欢迎建议和评论；请发送至电子信箱 jlandyne@gmail.com。Landyne 提供使用许可。如果没有有效的许可，可以演示模式运行该程序。

7. 参考文献

Bithell, E.G. and Stobbs, W.M., The simulation of HOLZ line positions in electron diffraction patterns: a first order dynamical correction. *J. Microscopy*, **153** (1989) 39.

De Graef, M., Introduction to Conventional Transmission Electron Microscopy, Cambridge University Press. (2003).

Eades, J.A., A Review: HOLZ lines and lattice parameter determination. *Acta Microscopica*, **1** (1992) 15–25.

Eades, J.A., Moore, S., Pfullmann, T. and Hangan, J., *Micros. Res. Tech.*, **24** (1993) 509.

- Li, X.-Z., JECF/HOLZ - an interactive computer program for simulation of HOLZ patterns. J. Appl. Cryst., **38** (2005) 576.
- Li, X.-Z., On Geometrical Interpretation of the Formation of Holz Lines. J. Mater. Educ., **29** (2007) 177.
- Lin, Y.P., Bird, D.M. and Vincent, R. Errors and correction term for HOLZ line simulations, Ultramicroscopy, **27** (1989) 233-240.
- Spence, J.C.H. and Zuo, J.M., Electron microdiffraction, Plenum Press. (1992).
- Tanaka, M. and Terauchi, M., Convergent-Beam Electron Diffraction, JEOL LTD. (1985).
- Zuo, J.M., Automated lattice parameter measurement from HOLZ lines and their use for the measurement of oxygen content in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ from nanometer-sized region, Ultramicroscopy, **41** (1992) 211.