

УДК 548.732

## УПРАВЛЯЕМАЯ ПЕРЕБРОСКА РЕНТГЕНОВСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НА КРИСТАЛЛЕ САХАРОЗЫ

М.А. НАВАСАРДЯН, А.Р. АГУМЯН, К.Т. АЙРАПЕТЯН,  
Р.Ц. ГАБРИЕЛЯН

Ереванский государственный университет

(Поступила в редакцию 9 декабря 2002 г.)

Обнаружено десятикратное (и более) увеличение интенсивностей некоторых сильных рефлексов и многократное увеличение рефлексов лауэграмм у монокристаллов сахарозы ( $C_{12}H_{22}O_{11}$ ) при создании на них температурного градиента определенной величины. На основе результатов настоящего эксперимента и данных наших прежних работ показано, что процесс управляемой переброски интенсивности имеет всеобщий характер для монокристаллов, а интенсивность дифрагированного пучка при внешних воздействиях не зависит от общего числа электронов в единице объема элементарной ячейки монокристалла.

Известно, что при наличии градиента температуры или ультразвуковых колебаний, приложенных к монокристаллам, интенсивности дифрагированных рентгеновских пучков от исследуемых монокристаллов многократно возрастают в геометрии Лауэ. Подобные работы детально обсуждались в недавно опубликованной статье [1]. При определенных величинах таких воздействий происходит полная переброска рентгеновского излучения от направления прохождения в направление дифракции [2]. На этой основе осуществлена передача и прием информации (в частности, речи) с помощью рентгеновских (проходящего и отраженных) пучков, что детально описано в работе [3]. Отметим, что до сих пор исследовались монокристаллы, состоящие из атомов с умеренными атомными номерами  $Z$ .

Целью настоящей работы было исследование кристаллов, состоящих из самых легких атомов. Эти атомы составляют основу всех биологических образований. В качестве такого кристалла был выбран кристалл сахарозы (сахара) ( $C_{12}H_{22}O_{11}$ ), учитывая некоторые его особенности, необходимые для выполнения таких работ.

У таких кристаллов прежде всего необходимо проверить наличие влияния градиента температуры на интенсивность лауэрефлексов и попытаться найти определенную корреляцию между числом электронов в объеме рассеивателя и величиной отраженной интенсивности.

В последних из наших работ [1,4] показано, что при наличии градиента температуры или УЗ колебаний величина интенсивности отраженных пучков не зависит от числа электронов в атоме или в элементарной ячейке кристаллов со средними  $Z$ , а является следствием взаимодействия атомов внутри элементарной ячейки, обусловленного приложенными внешними воздействиями. Интересно проверить эту ситуацию для кристаллов с наименьшими количествами электронов в единице объема элементарной ячейки или в единице объема данного вещества:  $\rho_{эл} = N/V$ , где  $N$  – общее число электронов в элементарной ячейке,  $V$  – объем этой ячейки. У сахарозы оно равно 0,5 электронов в одном кубическом Å ( $\rho_{эл} = N/V = 364/714 \approx 0.5$ ). Известно, что на градиент легко реагируют нецентросимметричные кристаллы (кварц, КДП, АДП), а кристалл сахарозы является именно таким кристаллом. Кроме того, до сих пор не исследованы молекулярные кристаллы, каким является сахароза. Поэтому изучение таких кристаллов открывает путь к исследованию явлений, обусловленных внешними воздействиями, у веществ биообразований, в частности, к исследованию кристаллов макромолекул, которые состоят главным образом из самых легких атомов.

Кристалл сахарозы принадлежит к моноклинной сингонии с просторанственной группой  $P2_1$  (структурный класс) с параметрами элементарной ячейки  $a = 10,86 \text{ \AA}$ ;  $b = 8,7 \text{ \AA}$ ;  $c = 7,758 \text{ \AA}$ ;  $\beta = 102,95^\circ$  [5-7] с двумя молекулами в элементарной ячейке, с плотностью  $\rho = 1,6 \text{ г/см}^3$  и температурой плавления  $T = 160^\circ\text{C}$ . Для исследования выбирались плоские образцы с размерами  $20 \times 15 \text{ мм}^2$  и с толщинами 2 и 3,5 мм. Применялось молибденовое излучение. Исследовались как лауэграммы, так и отдельно взятые рефлексы этих же лауэграмм, используя  $\text{MoK}_\alpha$  излучение.

### Экспериментальные результаты

При получении лауэграмм первичный пучок направлялся вдоль оси второго порядка монокристалла (это видно из симметрии лауэграмм) или под некоторым углом относительно оси  $b$ , чтобы одновременно получить отражения от плоскостей  $(3, -1, -1)$  и  $(210)$  соответственно, используя  $\text{MoK}_\alpha$  линию. Для работы с этим излучением детектором выбирается предполагаемый рефлекс и одновременным вращением кристалла и детектора с соответствующими углами  $(\theta)$  и  $(2\theta)$  отыскивается  $\text{K}_\alpha$  линия молибдена и таким путем по формуле Брэгга определяется межплоскостное расстояние данного семейства плоскостей.

На рис.1 показаны лауэграммы от кристаллов сахарозы без температурного градиента и при наличии градиента температуры  $\Delta T/\Delta x = 50$  град/см. Для обоих случаев экспозиция была равна одному часу при режиме работы трубки  $U = 30 \text{ кВ}$ ,  $I = 10 \text{ мА}$ . При наличии градиента температуры многократно возрастают интенсивности сильных рефлексов. По-

сколькx пучок имел лентообразную форму с большим размером поперечного сечения на вертикальной плоскости, то и рефлексy выявляются в виде узких прямоугольников с соответствующими расположениями.

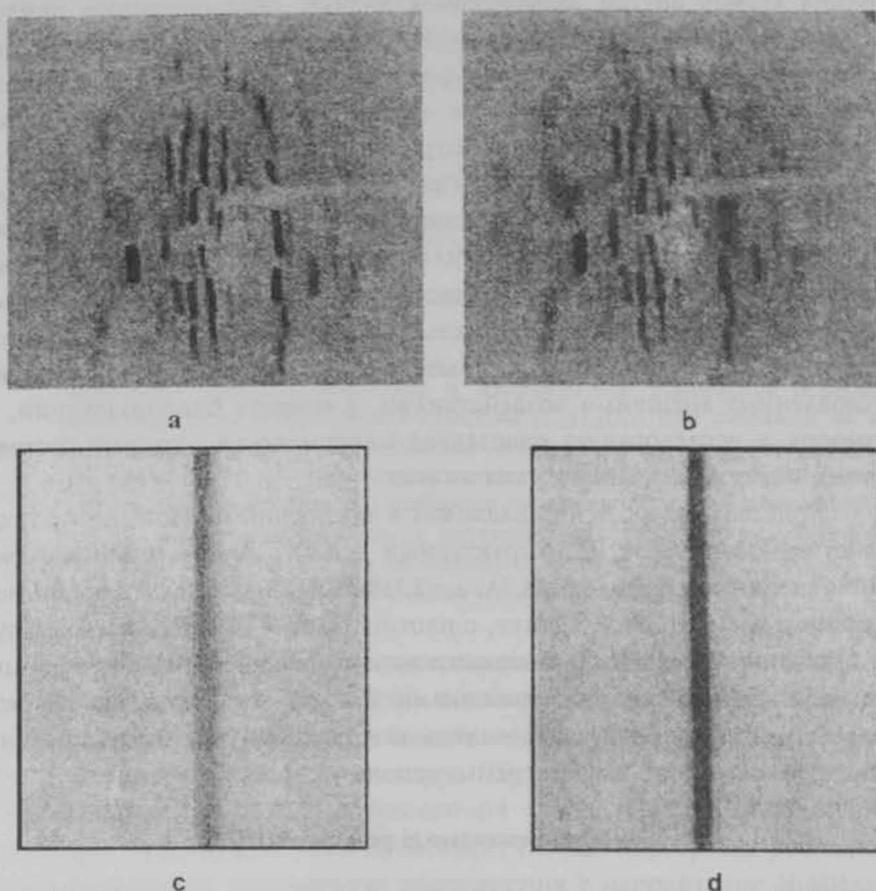


Рис.1 Лауэграммы без градиента (а) и с градиентом температуры (б), и отдельный рефлекс (210) без градиента (с), и при его наличии (д). Параметры семейства плоскостей (210) и (3,-1,-1), соответственно,  $d = 4,52\text{\AA}$ ,  $\theta = 4^{\circ}22'$ ;  $d = 3,257\text{\AA}$ ,  $\theta = 6^{\circ}15'$ .

При той же величине градиента изучалось поведение отдельных рефлексов (210), (3,-1,-1), (111) с применением  $\text{MoK}_{\alpha}$  излучения при величине  $\mu t = 0,27$  и  $0,47$  ( $\mu$  – линейный коэффициент поглощения,  $\mu = 1,35\text{см}^{-1}$ ,  $t$  – толщина образца). Коэффициент поглощения был рассчитан на основе данных справочника [8]. У сильных рефлексов (210), (3,-1,-1) при наличии вертикальной щели с шириной 0,5 мм первоначальная интенсивность дифрагированного пучка  $I_0$  при градиенте  $I_{\Delta T/\Delta x}$  увеличивается более чем в 10 раз ( $I_0 = 4500$  имп/сек,  $I_{\Delta T/\Delta x} = 50000$  имп/сек и более).

Отдельный рефлекс (210) без градиента (1с) и с градиентом температуры (1д), соответственно, был снят на расстоянии 30 см от образца (у входа детектора), с экспозицией в одну минуту.

При градиенте увеличивается на 10-15% и общий фон на лауэграмме. В частности, фон (почернение) на лауэграмме 1б заметно больше по сравнению с фоном лауэграммы 1а.

### Обсуждение и выводы

Как в прежних экспериментальных работах, выполненных на кристаллах со средними  $Z$ , так и у органического кристалла сахарозы с увеличением величины температурного градиента одновременно и многократно (десятикратно) увеличивается интенсивность сильных дифрагированных пучков (пучков, отраженных от атомных плоскостей с большими межплоскостными расстояниями), т.е. происходит управляемая переброска излучения из направления прохождения в направление дифракции (отражения). Это свидетельствует о том, что при исследовании под малыми углами аналогичное увеличение наблюдалось бы при отражении от плоскостей с еще большими межплоскостными расстояниями (с малыми углами Брэгга  $\theta$ ).

Резюмируя данные настоящего эксперимента и прежних экспериментальных работ, можно констатировать, что явление управляемой частичной и полной переброски для всех видов кристаллов имеет всеобщий характер.

Управляемая переброска наблюдалась нами раньше на кристаллах кварца ( $\text{SiO}_2$ ), сапфира ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ), кальцита ( $\text{CaCO}_3$ ), сахарозы ( $\text{C}_{12}\text{H}_{22}\text{O}_{11}$ ) и т.д. и, как показано в работах [1,4], интенсивность дифрагированного пучка при градиенте не зависит от числа электронов в элементарной ячейке, т.к. без изменения числа электронов (атомов) в рассеивающем объеме (без изменения количества облученного вещества) от этого же объема десятикратно и более увеличивается интенсивность дифрагированного (рассеянного) пучка. (При отражении от сильных рефлексов энергия проходящего пучка полностью переходит в направление отражения). Она зависит исключительно от уровня напряженного состояния, создаваемого между соседними атомами (или группами атомов) при внешних воздействиях. Фактически управляемое многократное увеличение интенсивности дифрагированного пучка наблюдается на кристалле сахарозы, в котором имеется минимальное число электронов в одном кубическом ангстреме – всего 0,5 электронов ( $\rho_{\text{эл}} = N/V$  для нескольких кристаллических веществ имеет следующие значения: С алмаз (1,07), LiF(0,74), Al(0,78), Si(0,71), NaCl(0,62),  $\text{SiO}_2$ (0,8),  $\text{Al}_2\text{O}_3$ (1,17), K(0,25), Fe(2,2), Cu(2,67), Ge(1,4), Mo(2,7), W(4,7), Au(4,65), U(4,43)). Поскольку процесс влияния на интенсивность начинается при очень малых градиентах тем-

пературы, то за это ответственны либо изменение состояний электронов внешних электронных оболочек, либо деформация этих оболочек, т.к. для этих процессов требуется очень малая энергия.

Предварительные результаты этой работы представлены в тезисе [9].

## ЛИТЕРАТУРА

1. М.А.Навасардян, Р.Ц.Габриелян. Изв. НАН Армении, Физика, 34, 119 (1999).
2. А.Р.Мкртчян, М.А.Навасардян, В.К.Мирзоян. Письма в ЖТФ, 8, 677 (1982).
3. М.А. Navasardyan, J. Appl. Cryst., 34, 763 (2001).
4. М.А.Навасардян, Р.Ц.Габриелян, К.Т.Айрапетян. Изв. НАН Армении, Физика, 36, 115 (2001).
5. А.И.Китайгородский, П.М.Зоркий, В.К.Бельский. Строение органического вещества, данные структурных исследований. 1971-1973. М., Наука, 1982.
6. G.M.Vroun, H.A.Levy. Acta Cryst., 29, 790 (1973).
7. I.C.Honson, L.C.Siecker, L.H.Jenson. Acta Cryst., 29, 797 (1973).
8. М.А.Блохин, И.Г.Швейцер. Рентгеноспектральный справочник. М., 1982.
9. М.А.Навасардян, А.Р.Агумян, К.Т.Айрапетян, Р.Ц.Габриелян. Тезисы докладов на III нац. конференции, РСНЭ-2001, М., ИК РАН, 21-25мая 2001, стр.113.

## ՌԵՆՏԳԵՆՅԱՆ ԾԱՌԱԳԱՅԹՆԵՐԻ ԿԱՌԱՎԱՐԵԼԻ ՎԵՐԱՄՈՒՄԸ ՄԱԽԱՐՈՋԻ ԲՅՈՒՐԵՂՈՄ

Մ.Ա. ՆԱՎԱՍԱՐԴՅԱՆ, Հ.Ռ. ԱՂՈՒՄՅԱՆ, Կ.Տ. ՀԱՅՐԱՊԵՏՅԱՆ,  
Ռ.Ց. ԳԱԲՐԻԵԼՅԱՆ

Ջերմաստիճանային գրադիենտի առկայության պարագայում դիտվել է ռենտգենյան ճառագայթների կառավարելի վերամղում քեթև առոմներից կազմված նյութի՝ սախարոզի ( $C_{12}H_{22}O_{11}$ ) միաբյուրեղում, որտեղ գրանցվել է որոշ ռենտգենյան ռեֆլեքսների ինտենսիվության տասնապատիկ և ավելի մեծացում և լատեգրամների ռեֆլեքսների ինտենսիվության բազմապատիկ մեծացում: Ներկա էքսպերիմենտի և նախկին աշխատանքների հիման վրա պնդվում է, որ կառավարելի վերամղումը միաբյուրեղներում ունի համընդհանուր բնույթ և որ արտաքին գործոնների առկայության պարագայում դիֆրակցված փնջի ինտենսիվությունը չի որոշվում բյուրեղի միավոր ծավալում եղած էլեկտրոնների ընդհանուր քանակով:

## CONTROLLABLE REFLECTION OF X-RAYS ON CRYSTALS OF SACCHAROSA

M.A. NAVASARDYAN, H.R. AGHUMYAN, K.T. HAYRAPETYAN, R.TS. GABRIELIAN

Multiple (ten times and more) increase in intensities of separate reflections and of lauegram reflections from organic single crystals of saccharosa ( $C_{12}H_{22}O_{11}$ ) was observed under influence of certain temperature gradient. On the base of the present experiment and the data of our previous works we show that the controllable reflection process has a common nature and the intensity of the diffracted beam under external influences does not depend on the total number of electrons per unit volume of the unit cell of the single crystal.