

УДК 548.732

ДВЕ СХЕМЫ ДИФРАКЦИИ ШИРОКО РАСХОДЯЩЕГОСЯ ПУЧКА РЕНТГЕНОВСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

К.Т. АВЕТЯН, Л.В. ЛЕВОНЯН, О.С. СЕМЕРДЖЯН,
М.М. АРАКЕЛЯН*, О.М. БАДАЛЯН, Д.А. ЗЕЙНАЛЯН

Ереванский государственный университет, Армения

*e-mail: marakelyan@ysu.am

(Поступила в редакцию 16 апреля 2014 г.)

Рассмотрены особенности двух схем дифракции широко расходящегося пучка рентгеновского излучения: d - c (диафрагма-кристалл) и c - d (кристалл-диафрагма). Установлено и экспериментально подтверждено, что при схеме c - d дифракционное изображение является топографической картой исследуемого участка кристалла. Установлено также, что при схеме d - c и при $L = 2l$ (l , L – соответственно расстояния кристалла и фотопластинки от диафрагмы) ветви гипербола, сформированных характеристическими излучениями K_{α} , K_{β} (включая отражения второго и третьего порядков) на данном семействе плоскостей (hkl), сливаются в одну прямую. Экспериментально установлено, что характер слияния очень чувствителен к структурным несовершенствам исследуемого кристалла.

1. Введение

Дифракционное изображение, сформированное широко расходящимся пучком (ШРП) характеристического рентгеновского излучения, содержит обширную информацию относительно особенностей кристаллической структуры исследуемого объекта, поскольку одновременно регистрируется большое число рефлексов брэгговских отражений. В настоящее время существуют два основных направления для осуществления дифракции ШРП рентгеновского излучения: точечный источник рентгеновского излучения расположен на поверхности исследуемого объекта (или под поверхностью) – метод Косселя; точечный источник расположен над поверхностью исследуемого объекта – метод псевдокосселя [1-3]. Методы отличаются способом возбуждения характеристического излучения, методом создания точечного источника излучения.

Нами были применены две несколько иные схемы осуществления дифракции ШРП с использованием стандартного источника излучения – рентгеновской трубки с линейным фокусным пятном [4,5].

В одной из схем рентгеновское излучение проходит через диафрагму (воронкообразное отверстие диаметром 30–50 мкм в пластине тантала) и падает на исследуемый кристалл. На фотографическую пластину, установленную за кристаллом, попадает только дифрагированное излучение. Первичное (недифрагированное) излучение задерживается ловушкой [4]. Диафрагма, кристалл и

фотографическая пластина помещены в небольшую камеру, которая во время экспозиции вращается вокруг оси диафрагмы. Эту схему мы назвали схемой $d-c$ (диафрагма–кристалл) (рис.1а). В схеме $d-c$ диафрагма действует как точечный источник. При установке диафрагмы вплотную к исследуемому образцу (до или после образца) схема аналогична схеме Косселя, и дифракционное изображение не отличается от классической косселеграммы. При установке диафрагмы на расстоянии 2–3 мм и больше схема аналогична схемам ШРП, и дифракционное изображение является псевдокосселеграммой. Таким образом, сравнительно простая схема дает возможность получать и косселеграмму, и псевдокосселеграмму одного и того же образца. Разница таких дифракционных изображений заключается в том, что косселеграммы формируются на локальном участке исследуемого кристалла, определяемом диаметром диафрагмы, и не являются топографической картой исследуемого образца, а псевдокосселеграмма формируется на сравнительно большой площади исследуемого кристалла. Однако такое дифракционное изображение, как мы увидим в дальнейшем, тоже не является топографической картой исследуемого участка кристалла.

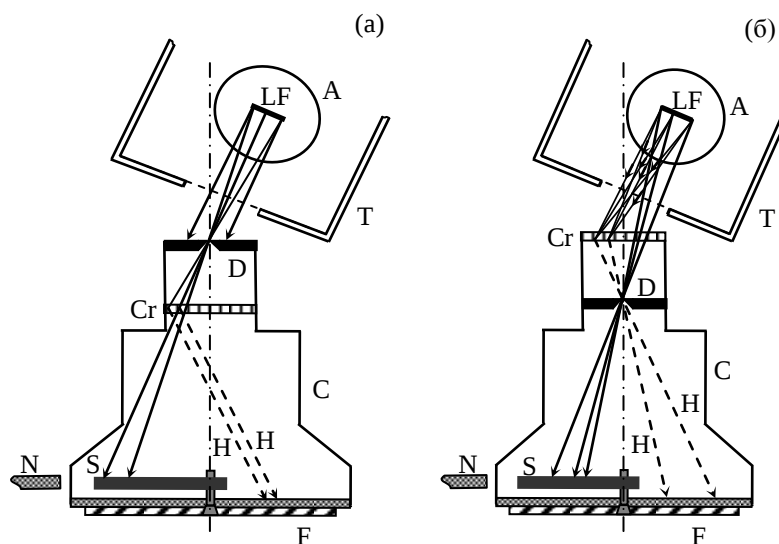


Рис.1. Схема эксперимента. (а) Схема $d-c$ (диафрагма–кристалл), (б) Схема $c-d$ (кристалл – диафрагма). Т – рентгеновская трубка, А – анод, LF – линейный фокус, С – камера, Cr – исследуемый кристалл, D – диафрагма, S – неподвижная заслонка, F – фотографическая пластина, N – постоянный магнит, H – дифрагированное излучение.

При схеме $d-c$, как было сказано, первичное (недифрагированное) излучение задерживается ловушкой и на фотографическую пластину не попадает. При такой схеме становится возможным исследовать образцы очень малых размеров.

В другой схеме исследуемый кристалл «освещается» расходящимся

рентгеновским излучением так, что в любой точке исследуемой части кристалла удовлетворяется условие Брэгга, причем для нескольких семейств атомных плоскостей одновременно (многоволновая дифракция) (рис.1б) [5].

После кристалла на расстоянии 2–5 мм устанавливается диафрагма. На фотографическую пластину, установленную после диафрагмы, падает только дифрагированное излучение, проходящее через диафрагму. Первичное (недифрагированное) излучение задерживается ловушкой, расположение которой относительно источника излучения при вращении камеры не меняется. Поскольку для определенного семейства плоскостей (hkl) и для данной длины волны характеристического излучения угол дифракции определен, то через диафрагму может проходить излучение, дифрагированное в определенных точках кристалла. Эти точки мы назвали активными точками, а схему – схемой $c-d$ (кристалл–диафрагма). Аналог схемы $c-d$ нам неизвестен.

2. Особенности схем $d-c$ и $c-d$

Как уже было сказано, при схеме $c-d$ кристалл в виде тонкой пластины освещается так, что в любой точке исследуемого участка для данной длины волны характеристического излучения удовлетворяется условие дифракции. Распределение активных точек на поверхности кристалла определяется следующим требованием: излучение, дифрагированное в активной точке $M(x, y, z)$ поверхности кристалла, проходит через диафрагму. Если начало прямоугольной системы координат совместим с центром диафрагмы, ось z – с нормалью к фотографической пластине (ось диафрагмы), то для активных точек будем иметь

$$x_1 \cos \alpha + y_1 \cos \beta + z_1 \cos \gamma = -\sqrt{x_1^2 + y_1^2 + z_1^2} \sin \theta_{hkl},$$

где α, β, γ – углы между направлением $[hkl]$ и осями координат. Это уравнение конических поверхностей, оси которых совпадают с направлениями $[hkl]$, а вершина – общая для всех семейств атомных плоскостей (hkl) и совпадает с центром диафрагмы. Для сечения конических поверхностей плоскостью $z_1 = 1$ (внешняя грань кристалла) получим

$$\begin{aligned} x_1^2 (\cos^2 \alpha - \sin^2 \theta) + 2x_1 y_1 \cos \alpha \cos \beta + y_1^2 (\cos^2 \beta - \sin^2 \theta) + \\ + 2x_1 l \cos \alpha \cos \gamma + 2y_1 l \cos \beta \cos \gamma + l^2 (\cos^2 \gamma - \sin^2 \theta) = 0. \end{aligned} \quad (1)$$

Это означает, что активные точки будут распределены на гиперболах, поскольку

$$AC - B^2 = (\cos^2 \alpha - \sin^2 \theta)(\cos^2 \beta - \sin^2 \theta) - \cos^2 \alpha \cos^2 \beta < 0.$$

Конические поверхности простираются неограниченно в обе стороны от вершины, поэтому они пересекаются с плоскостью $z = -L$, где установлена фотографическая пластина. Дифракционное изображение, сформированное на фотопластине, представляет собой набор конических сечений – набор гипербол, определяемых уравнением

$$x^2 (\cos^2 \alpha - \sin^2 \theta) + 2xy \cos \alpha \cos \beta + y^2 (\cos^2 \beta - \sin^2 \theta) + 2Lx \cos \alpha \cos \gamma + 2Ly \cos \beta \cos \gamma + L^2 (\cos^2 \gamma - \sin^2 \theta) = 0. \quad (1a)$$

Поскольку гиперболы (1) и (1a) подобны (угловые коэффициенты асимптот одни и те же), то между распределением активных точек на поверхности кристалла и распределением дифракционного максимума на фотопластине существует однозначное соответствие, то есть каждой активной точке $M_1(x_1, y_1)$ на поверхности кристалла соответствует одна точка $M(x, y)$ на дифракционном изображении. Другими словами, дифракционное изображение, сформированное такой схемой, является увеличенным изображением или топографической картой распределения активных точек с коэффициентом увеличения $K = L/l$.

В схеме d -с кристалл освещается расходящимся пучком излучения, исходящего из диафрагмы, которая действует как точечный источник, установленный над кристаллом. Распределение активных точек на поверхности кристалла определяется из следующего условия: угол Φ_1 между падающим пучком, проходящим через диафрагму и точку $M(x_1, y_1)$ (вектор $\mathbf{K}_0$), и нормалью к плоскости (hkl) (вектор $\mathbf{H}$) равен $\pi/2 + \theta$. Отсюда следует, что если исследуемый кристалл в виде тонкой пластины установлен на плоскости $z = -1$, то распределение активных точек на поверхности кристалла определится уравнением (1). Назовем это условием (1).

Дифрагированное в точке $M_1(x_1, y_1, z_1)$ излучение падает на фотографическую пластину. На распределение дифракционных максимумов на фотографической пластине помимо условия (1) налагается другое условие: угол Φ между дифрагированным лучом, проходящим через точку $M_1(x_1, y_1, z_1)$ на поверхности кристалла и точку $M(x, y, z)$ на фотографической пластине (вектор $\mathbf{K}$) и вектором $\mathbf{H}$ равен $\Phi = \pi/2 - \theta_{hkl}$ (условие (2)). Если фотографическая пластина установлена на плоскости $z = -L$, то уравнение, определяющее распределение дифракционного максимума, будет иметь вид

$$(x - x_1)^2 (\cos^2 \alpha - \sin^2 \theta) + 2(x - x_1)(y - y_1) \cos \alpha \cos \beta + (y - y_1)^2 (\cos^2 \beta - \sin^2 \theta) + 2(x - x_1)(L - l) \cos \alpha \cos \gamma + 2(y - y_1)(L - l) \cos \beta \cos \gamma + (L - l)^2 (\cos^2 \gamma - \sin^2 \theta) = 0. \quad (2)$$

Помимо условий (1) и (2), учитывая компланарность векторов $\mathbf{K}_0, \mathbf{K}, \mathbf{H}$, т.е. $\mathbf{K}[\mathbf{K}_0 \mathbf{H}] = 0$, получим

$$(yl - y_1L) \cos \alpha + (Lx_1 - lx) \cos \beta + (xy_1 - x_1y) \cos \gamma = 0. \quad (3)$$

Таким образом, при схеме d -с, как и при любой схеме, в которой точечный источник установлен на расстоянии $z_1 = -1$ над кристаллом ($z_1 \neq 0$), распределение дифракционных максимумов на фотографической пластине, установленной на расстоянии $z_1 = -L$, определяется уравнениями (1)–(3). В общем случае это уравнение четвертой степени [1]. Следовательно, при схеме d -с

дифракционное изображение не может быть топографической картой исследуемого кристалла, поскольку активные точки распределены на гиперболах.

Рассмотрим простой случай, когда кристалл ориентирован так, что для семейства плоскостей $(hk0)$ $\cos \alpha = \pm 1$. При такой ориентации распределение активных точек на поверхности кристалла определяется уравнением

$$x_1^2 / (l^2 \operatorname{tg}^2 \theta) - y_1^2 / l^2 = 1. \quad (4)$$

Распределение дифракционного максимума определяется уравнением

$$x^2 / (L - 2l)^2 \operatorname{tg}^2 \theta - y^2 / L^2 = 1. \quad (5)$$

Гиперболы (4) и (5) не подобны, поскольку отличаются угловые коэффициенты асимптот $y_1 = x_1 \operatorname{ctg} \theta$ и $y = L x \operatorname{ctg} \theta / (L - 2l)$, причем во втором случае угловой коэффициент асимптоты зависит также от расстояний L и l . Сравнивая (4) и (5), убедимся, что увеличение дифракционного изображения (отношение координат двух гипербол) в направлении действительной оси (в этом случае ось x – направление нормали к плоскости) отличается от увеличения в направлении мнимой оси (ось y), т.е. для действительной оси $k_r = x/x_1 = (2z_1 - z)/z = (2l - L)/l$ и для мнимой оси $k_i = y/y_1 = z/z_1 = L/l$.

Заметим, что в качестве оси x можно выбрать направление нормали к любой из плоскостей $(hk0)$, принадлежащих зоне z . Отсюда следует, что гиперболы дифракционного изображения кристалла, сформированные широко расходящимся пучком характеристического рентгеновского излучения по схеме d – c , как и при любой схеме, при которой точечный источник расположен перед кристаллом, не подобны гиперболам активных точек на поверхности кристалла. Значит, дифракционное изображение не является топографической картой кристалла.

Остановимся на весьма существенном отличии схем c – d и d – c . При схеме c – d любая точка исследуемой части кристалла освещается излучением в широких угловых пределах, поэтому во всех точках дифракция будет многоволновой. Излучение, дифрагированное на какой-либо плоскости (hkl) , имеет строго определенное направление. Поэтому, если через диафрагму проходит одна из дифрагированных волн, исходящих из данной активной точки, то другая волна, исходящая из этой же точки, через диафрагму пройти не может. Значит, можно утверждать, что при схеме c – d дифракционное изображение формируется только одной дифрагированной волной, т.е. в каждую точку дифракционного изображения приходит информация только от одной соответствующей активной точки. Другими словами, многоволновой характер дифракции не проявляется. Следовательно, дифракционное изображение при схеме c – d является топографической картой активных точек на поверхности кристалла.

При схеме d – c многоволновой характер дифракции проявляется в том, что все дифрагированные волны без ограничения достигают фотографической пластины. При этом в данную точку дифракционного изображения доходят

волны, дифрагированные на разных активных точках кристалла, т.е. происходит наложение информации. Поэтому в этом случае дифракционное изображение не является топографической картой исследуемого кристалла.

3. Эксперимент

На рис.2а приведено дифракционное изображение кристалла LiF, сформированное характеристическими излучениями Mo K_α и K_β , полученными по схеме $c-d$. Интенсивные линии – гиперболы, сформированные излучением K_α , менее интенсивные – излучением K_β . Белый кружок в центре – “тень” валика, на котором насажена ловушка первичного (недифрагированного) пучка. В кристалле в виде пластины толщиной 0.5 мм проделано круглое отверстие диаметром 0.8 мм. Большая грань кристалла – плоскость (001) ориентирована параллельно фотографической пластине. Кристалл установлен так, что “изображение” отверстия на рис.2а приходится на пересечение гипербол, сформированных отражениями $(\bar{2}00)$, $(0\bar{2}0)$ и $(\bar{2}\bar{2}0)$ (центр отверстия совпадает с узлом $[[\bar{2}\bar{2}0]]$). На дифракционной картине отчетливо выделяется изображение отверстия (светлый круг). Как видно на рисунке, в пределах изображения этого круга гиперболы $(\bar{2}00)$, $(0\bar{2}0)$ и $(\bar{2}\bar{2}0)$ прерываются, что свидетельствует о том, что при схеме $c-d$ в область этого круга информация поступает только от окрестности узла $[[\bar{2}\bar{2}0]]$ с размерами отверстия. От других участков кристалла в эту точку изображения информация не поступает.

Таким образом, можно утверждать, что при схеме $c-d$ между распределением активных точек на поверхности кристалла и распределением дифракционного максимума на изображении существует однозначное соответствие, т.е. дифракционное изображение является топографической картой активных точек.

На рис.2б приведено дифракционное изображение того же кристалла

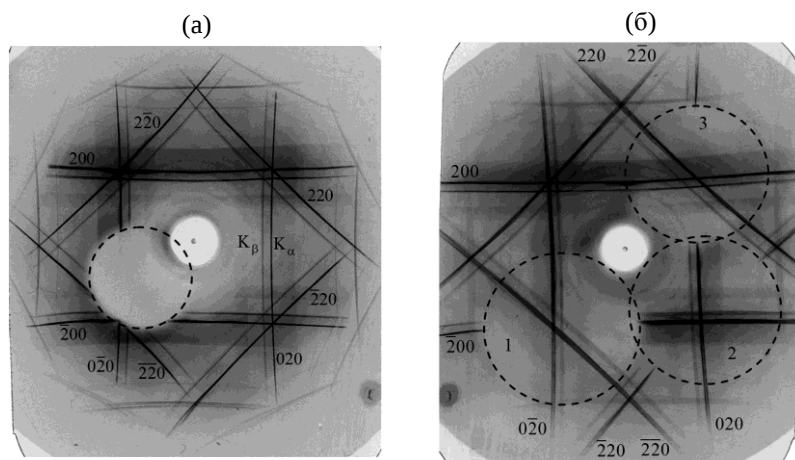


Рис.2. (а) Дифракционное изображение кристалла LiF, полученное по схеме $c-d$. (б) Дифракционное изображение кристалла LiF, полученное по схеме $d-c$.

LiF, полученное по схеме d – c . Сохранено взаимное расположение отверстия в кристалле и диафрагмы, т.е. узел кристалла, совпадающий с центром отверстия, соответствует узлу кристалла $[[\bar{2}\bar{2}0]]$. Как видно на дифракционной картине, отчетливое «изображение» отверстия не формируется. Наличие отверстия проявляется в трех разных местах дифракционной картины. На участке 1 (окрестность рефлекса $[[\bar{2}\bar{2}0]]$ на картине) прервана гипербола $(\bar{2}00)$, на участке 2 (окрестность рефлекса $[[\bar{2}20]]$) прервана гипербола $(\bar{2}20)$ и на участке 3 (окрестность рефлекса $[[220]]$) прервана гипербола (020) .

Выходит, что при схеме d – c при данном расположении диафрагмы и отверстия в кристалле излучение, дифрагированное от того участка в объеме кристалла, где просверлено отверстие, поступает на три разных участка дифракционного изображения. И наоборот, на многие участки дифракционного изображения информация поступает от разных частей кристалла. Значит, при схеме d – c происходит наложение информации.

Особый интерес представляет собой случай $L = 2l$, при этом действительная ось гипербол $a = (L - 2l) \operatorname{ctg} \theta = 0$. В этом случае увеличение дифракционного изображения в направлении действительной оси (в этом случае ось x) равно нулю, и гипербола превращается в прямую $x = 0$, совпадающую с осью y . Таким образом, в этом случае сливаются в одну линию не только две ветви каждой из гипербол, сформированных на данной плоскости $(hk0)$ характеристическими излучениями K_{α_1} и K_{α_2} всех порядков, но и гиперболы, сформированные излучением K_{β} . Кроме того, в линию $x = 0$ сливается и непрерывный ряд гипербол, сформированных непрерывным фоном излучения трубки, причем для каждой из плоскостей $(hk0)$ прямая y параллельна этой плоскости. На рис.3а приведено дифракционное изображение кристалла KCl, полученное схемой c – d .

На рис.3б представлено дифракционное изображение того же кристалла, сформированное по схеме d – c при расстояниях $L = 2l$. Как видно на изображении,

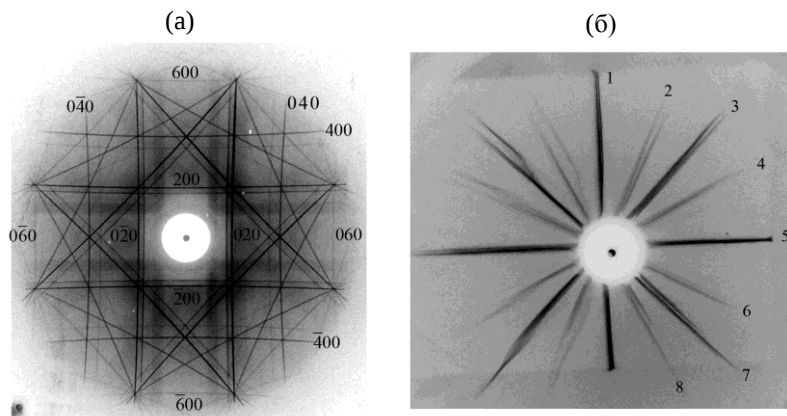


Рис.3. (а) Дифракционное изображение кристалла KCl, полученное схемой c – d . (б) Дифракционное изображение кристалла KCl по схеме d – c при расстояниях $L = 2l$.

для некоторых отражений (например, рис.3б, линия 1) слились в одну прямую линию не только две ветви каждой из гипербол, сформированных характеристическими излучениями K_{α_1} и K_{α_2} всех порядков: (020) , $(0\bar{2}0)$, (040) , $(0\bar{4}0)$, (060) , $(0\bar{6}0)$, но и все гиперболы, сформированные излучением K_{β} . Однако такое слияние наблюдается не для всех отражений. Очевидно, полное слияние ветвей гипербол возможно для более или менее совершенных кристаллов при соблюдении условия $L = 2l$. В реальных кристаллах наличие локальных структурных несовершенств приводит к тому, что разные ветви одной и той же гиперболы искажаются неодинаково, и ждать полного слияния ветвей гипербол не приходится.

Таким образом, дифракционное изображение, полученное при схеме $L = 2l$ является методом исследования структурных несовершенств кристаллических пластин сравнительно больших размеров. Насколько этот метод эффективен, покажут дальнейшие исследования.

ЛИТЕРАТУРА

1. В.В. Лидер. Кристаллография, **56**, 195 (2011).
2. В.Ш. Шехтман, И.М. Шмытько и др. Докл. АН СССР, **205**, 834 (1972).
3. В.В. Аристов, В.Ш. Шехтман, И.М. Шмытько. Кристаллография, **21**, 50 (1976).
4. К.Т. Аветян, М.М. Аракелян. Кристаллография, **53**, 816 (2008).
5. К.Т. Аветян. Кристаллография, **55**, 788 (2010).

TWO SCHEMES OF DIFFRACTION OF WIDELY DIVERGENT BEAM OF X-RAY RADIATION

K.T. AVETYAN, L.V. LEVONYAN, O.S. SEMERJYAN,
M.M. ARAKELYAN, O.M. BADALYAN, D.A. ZEYNALYAN

The peculiarities of two schemes of diffraction of a widely divergent beam of X-ray radiation are considered: $d-c$ (diaphragm – crystal) and $c-d$ (crystal – diaphragm). We determined and experimentally confirmed that in $c-d$ scheme the diffraction image is a topographic map of the studied site of the crystal. We determined also that in the scheme of $d-c$ and at $L = 2l$ (l and L are respectively, crystal and photographic plate distances from the diaphragm) the branches of the hyperboles, created by the characteristic radiations K_{α} and K_{β} (including reflections of the second and third orders) from the given family of the planes (hkl) , merge to one straight line. We experimentally determined that the behavior of confluence is very sensitive to the structural imperfections of the studied crystal.