

В. Ш. ШЕХТМАН, И. М. ШМЫТКО, Л. Г. ШАБЕЛЬНИКОВ,
В. Г. РОСТИАШВИЛИ

О МЕТОДЕ СЪЕМКИ МОНОКРИСТАЛЛОВ В ШИРОКО РАСХОДЯЩЕМСЯ ПУЧКЕ РЕНТГЕНОВСКИХ ЛУЧЕЙ

(Представлено академиком Г. В. Курдюмовым 7 XII 1971)

Практическое развитие работ Косселя (¹⁻⁴), рассмотревшего задачу о дифракции от точечного источника рентгеновских лучей внутри кристалла, проходило в двух направлениях. В схеме метода Косселя точечный источник рентгеновских лучей создается электронным пучком непосредственно на поверхности исследуемого кристалла (см., например, обзоры (^{5, 7})). В другом случае, который носит название метода широко расходящегося пучка (ш.р.п.)*, точечный источник рентгеновских лучей находится вблизи поверхности образца (рис. 1). Имеется ряд работ, посвященных описанию метода ш.р.п. и использованию его главным образом для прецизионных измерений пара-

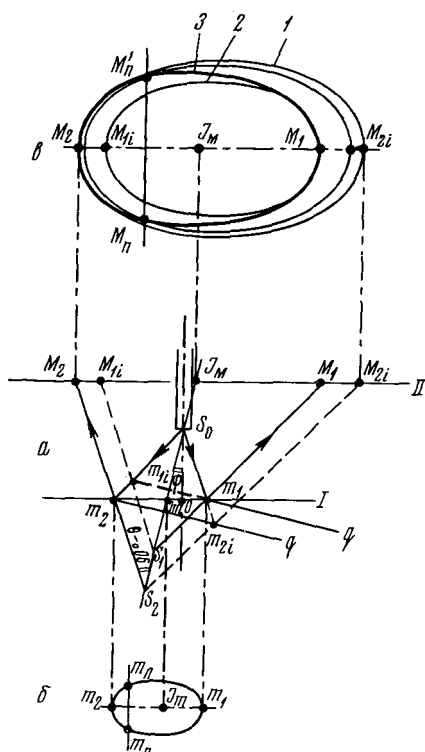


Рис. 1

Рис. 1. а — оптическая схема метода: I — поверхность образца, II — плоскость пленки, m_1q и m_2q — следы кристаллографических плоскостей, принадлежащих к одному набору hkl ; б — эллипс падающих лучей на поверхности образца; в — схема формирования дифракционной линии $M_1M_n'M_2M_n$

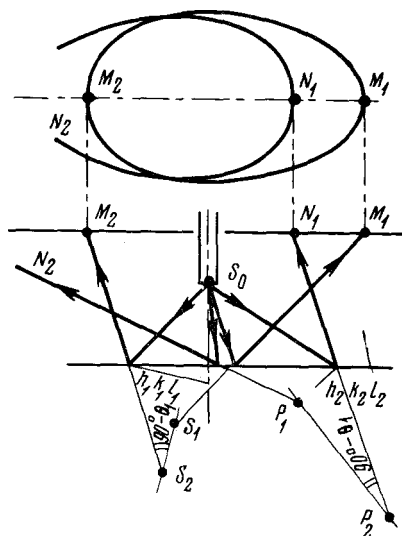


Рис. 2

Рис. 2. Случай двух кристаллографических плоскостей, нормали к которым обозначены как S_0S_2 и S_0P_2

метров решетки (⁸⁻¹¹) или исследования субструктуры (¹²⁻¹⁴). Однако до сих пор нет достаточно последовательного описания, поскольку не учи-

* В некоторых работах используется термин «метод псевдо-Косселя».

тываются важные различия в оптических схемах методов ш.р.п. и Косселя. В частности не рассмотрена с необходимой полнотой геометрия съемки, не разработана методика индифференцирования дифракционных линий, отсутствуют надежные практические методики, использующие возможности метода в прецизионных измерениях кристаллографических параметров (межплоскостные расстояния, углы между плоскостями и т. д.).

Рассмотрим геометрические условия съемки (рис. 1). В соответствии с уравнением Вульфа — Брега каждый набор кристаллографических плоскостей выделяет некоторую коническую поверхность падающих лучей (угол раствора $180^\circ - 2\theta$), исходящих от точечного источника S_0 . На поверхности образца этому конусу сопоставляется эллипс (гипербола) падающих лучей. Поверхность, создаваемая дифрагированными лучами, не является конической, что можно показать путем построения.

На рис. 1а изображено сечение, соответствующее плоскости, проходящей через большую ось эллипса падающих лучей и источник. Двумя крайними образующими конуса падающих лучей являются лучи S_0m_1 и S_0m_2 . Будем считать, как это обычно принято, что каждая кристаллографическая плоскость представляет плоское зеркало, отражающее под углом θ . Тогда набор кристаллографических плоскостей hkl нужно рассматривать как эшелон плоских зеркал (с углом отражения, равным θ), рассеянный поверхностью кристалла I . Это справедливо с точностью до глубины проникновения рентгеновских лучей $\sim 0,1$ мм. Иначе говоря, можно считать, что в дифракции отражения участвуют лишь точки на поверхности образца (точки m_1 и m_2 рис. 1а), а точки в глубине кристалла (типа m_{2i}) закрыты от падающего луча.

В соответствии с рис. 1, отраженные лучи m_2M_2 и m_1M_1 принадлежат двум различным коническим поверхностям. Луч m_2M_2 совпадает с образующей конуса, вершина которого находится на нормали S_0J_m к плоскостям (hkl). Лучу m_1M_1 отвечает другой конус с тем же углом полураствора $90^\circ - \theta$. Вершины конусов S_1 и S_2 получаются путем зеркального отображения источника S_0 плоскостями m_1q и m_2q .

Из вышесказанного следует, что луч $m_{2i}M_{2i}$ не реализуется. Если конические поверхности с вершинами S_1 и S_2 при пересечении с плоскостью пленки образуют эллипсы 1 и 2, то истинная дифракционная кривая $\mathcal{J}$ может быть изображена как фигура, близкая к овалу, проходящему через точки M_1 и M_2 (рис. 1в). При этом любой паре симметричных точек m_n и m'_n на эллипсе падающих лучей соответствуют на дифракционной линии точки M_n , M'_n , которые принадлежат конусу с вершиной в S_n , расположенной в пределах отрезка S_1S_2 .

Таким образом поверхность, которую образуют дифрагированные лучи, представляет сочетание пар образующих конических поверхностей с постоянным углом раствора и вершинами, непрерывно заполняющими отрезок S_1S_2 *. Расстояние может быть выражено через дифракционный угол и геометрические параметры съемки следующим образом:

$$S_1S_2 = 2t \sin \theta [1 / \sin(\theta - \varphi) - 1 / \sin(\theta + \varphi)], \quad (1)$$

где t — расстояние от источника до поверхности образца, θ — угол Вульфа — Брега, φ — угол между осью прибора и нормалью к набору кристаллографических плоскостей. Можно показать, что для двух плоскостей ($h_1k_1l_1$) и ($h_2k_2l_2$), угол между которыми $\varphi_1 + \varphi_2$, а соответствующие дифракционные углы θ_1 и θ_2 , расстояние между S_2 и P_2 (см. рис. 2) определяется формулой

$$S_2P_2 = \left[\left(\frac{2t \sin \theta_1}{\sin(\theta_1 - \varphi_1)} \right)^2 + \left(\frac{2t \sin \theta_2}{\sin(\theta_2 - \varphi_2)} \right)^2 - \frac{8t^2 \sin \theta_1 \sin \theta_2}{\sin(\theta_1 - \varphi_1) \sin(\theta_2 - \varphi_2)} \cos(\varphi_1 + \varphi_2) \right]^{1/2}. \quad (2)$$

* Этот факт отмечен также в работе (14).

В качестве примера приведем численные оценки для плоскостей (321) и (312) монокристалла Nb с поверхностью, параллельной (110), при $t = 3$ мм, $\text{CuK}\alpha_1$ -излучения: расстояние $S_1P_1 = 2,0$ мм, $S_2P_2 = 8,4$ мм, $S_1S_2 = 9,8$ мм, расстояния M_1M_{2i} и M_2M_{1i} на пленке равны соответственно ~ 7 мм и ~ 21 мм.

Таким образом, в построении дифракционных линий участвуют многие источники (вершины конусов), макроскопически разделенные в пространстве. Заметим, что в методе Косселя дифракционные поверхности

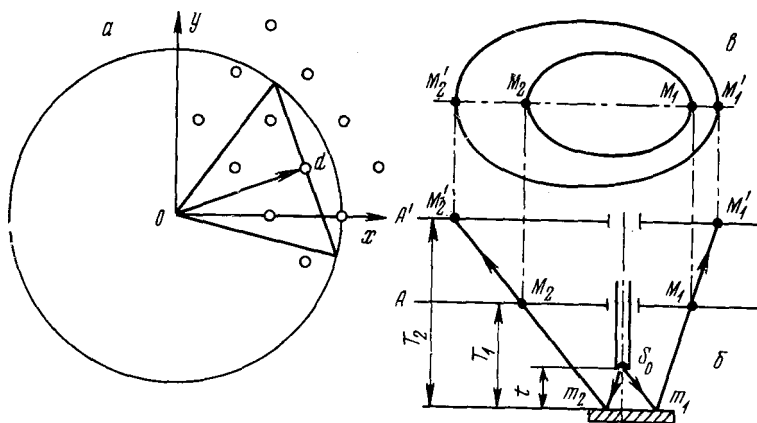


Рис. 3. а — Построения в обратном пространстве; б — ход лучей при съемке; (А), (А') — положения кассеты; δ — дифракционные линии при двукратной экспозиции

для всех кристаллографических плоскостей суть конусы с совмещенными вершинами (источник на поверхности образца).

Это важное различие методов необходимо учитывать при обработке рентгенограмм ш.р.п. С этих позиций ниже рассматриваются задачи индигирования и реконструкции плоскостей обратной решетки в случае «на отражение»*.

Рассмотрим случай, когда кристалл предварительно сорентирован по методу Лауэ и вырезан так, что поверхность образца параллельна важной узловой прямой, например одной из базисных осей. Установим образец таким образом, чтобы указанная узловая прямая совпала с вертикалью (осью головки). Плоскости, принадлежащие к зоне, осью которой является узловая прямая, дадут на рентгенограмме ш.р.п. набор дифракционных кривых, симметричных относительно горизонтали **. Тем самым горизонтальная линия, проходящая через центр пленки, будет аналогична нулевой слоевой в методе качания.

Для индигирования построим плоскость обратной решетки, содержащую узлы данной зоны и найдем угол раствора дифракционного конуса для некоторого узла (hkl) (рис. 3а). Используем найденный угол для построения образующих конуса падающих лучей S_0m_1 и S_0m_2 (рис. 3б). В соответствии с рис. 1а дифрагированные лучи m_1M_1 и m_2M_2 определяют положения точек дифракционной кривой на большой оси. Тогда задача индигирования сведется к сравнению расстояния M_1M_{2i} , измеряемого на пленке (рис. 1б), с расстоянием M_1M_2 , полученным из построения

* Соответствующее математическое описание дифракционной поверхности и методика прецизионных измерений кристаллографических параметров будет опубликована позже.

** Следует подчеркнуть, что дифракционная линия может и не обладать зеркальной симметрией, или, что то же самое, не иметь большой оси при косом положении образца. Заметим, что если поворот образца производится вокруг оси, совпадающей с направлением (nrm) , то дифракционные линии от плоскостей, принадлежащих к этой зоне, будут оставаться симметричными.

(рис. 1а). В частном случае, когда поверхность кристалла параллельна одной узловой прямой, на рентгенограмме будет наблюдаться несколько наборов дифракционных кривых, отвечающих разным зонам. Индифференцирование этих линий аналогично. Заметим, что, после того как одна из линий идентифицирована, могут быть найдены индексы незамкнутых кривых, если воспользоваться расстояниями M_2N_2 или M_2N_1 (соответственно M_1N_2 или M_1N_1) (рис. 2б).

Видно, что в описываемой методике используется определенная аналогия с обработкой рентгенограмм качания. Последующее усовершенствование позволяет применить рентгенограммы ш.р.п. для реконструкции обратной решетки подобно известным рентгенгонометрическим методам. Для этого требуется получить рентгенограмму с экспозицией при двух положениях кассеты. На такой рентгенограмме с двукратной экспозицией измеряем соответственные расстояния OM_1 и OM_2 (OM_1' и OM_2') вдоль оси симметрии дифракционной линии (рис. 3в), по измеренным значениям проводим построения, соответствующие ходу лучей m_1M_1 и m_2M_2 (рис. 3б) и определяем угол $90^\circ - \theta$. Воспользуемся полученным значением дифракционного угла и построим радиус-вектор обратного пространства g_{hkl} в осях координат, привязанных к системе координат кристалла (рис. 3а). Используя аналогичное построение для других отражений, можно произвести реконструкцию соответствующей области обратной решетки.

Очевидно, этот способ позволяет производить анализ взаимной ориентировки фаз при исследовании структурных превращений. Можно также определять межплоскостные расстояния и производить индифференцирование линий для кристалла с неизвестной ориентацией, что практически недоступно для других рентгенгонометрических методов.

В заключение отметим, что метод ш.р.п. на отражение сочетает простоту экспериментального исполнения, быстроту съемки с возможностями различных методов рентгеновского анализа. Особо следует подчеркнуть сходство с методом Лауэ (съемка с неподвижного образца, рентгенограмма может содержать элементы симметрии кристалла) и методами качания или рентгенгонометрическими (индифференцирование и реконструкция обратной решетки).

Авторы выражают благодарность В. В. Аристову за полезные обсуждения.

Институт физики твердого тела
Академии наук СССР
Черноголовка Моск. обл.

Поступило
12 XI 1971

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

- ¹ W. Kossel, Ann. Phys., **25**, 512 (1936). ² W. Kossel, Ann. Phys., **26**, 533 (1936). ³ W. Kossel, H. Voges, Ann. Phys., **23**, 677 (1935). ⁴ K. Lonsdale, Phil. Trans., **A240**, 219 (1947). ⁵ M. Bevis, N. Swindels, Phys. Stat. Sol., **20**, 107 (1967). ⁶ R. Tixier, Wache, **3**, 466 (1970). ⁷ T. Jmura, S. Weissmann, J. J. Slade jr., Acta crystallogr., **15**, 786 (1962). ⁸ P. Gielen, H. Yakowitz et al., J. Appl. Phys., **36**, 3, 773 (1965). ⁹ B. A. Newman, S. Weissmann, J. Appl. crystallogr., **1**, 139 (1968). ¹⁰ T. Ellis, L. F. Nanni et al., J. Appl. Phys., **35**, 3364 (1964). ¹¹ Л. Л. Лидер, В. Н. Рожанский, ФТТ, **9**, № 12, 2787 (1967). ¹² В. Н. Рожанский, В. В. Лидер, В. Г. Лютцау, Кристаллография, **11**, в. 4, 701 (1966). ¹³ Takeo Jchivokawa, Japan. J. Appl. Phys., **5**, 1 (1966). ¹⁴ Д. Васильев, Зав. лаб., **3**, 1019 (1971).