

70243

СООБЩЕНИЯ
ОБЪЕДИНЕННОГО
ИНСТИТУТА
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

ДУБНА



СЗ44.1А

Б-20

28/5-74

3 - 10243

759/2-74

А.М.Балагуров

ОРИЕНТИРОВАНИЕ МОНОКРИСТАЛЛОВ
НА НЕЙТРОННЫХ ДИФРАКТОМЕТРАХ
ПО ВРЕМЕНИ ПРОЛЕТА

1976

3 - 10243

А.М.Балагуров

ОРИЕНТИРОВАНИЕ МОНОКРИСТАЛЛОВ
НА НЕЙТРОННЫХ ДИФРАКТОМЕТРАХ
ПО ВРЕМЕНИ ПРОЛЕТА

Балагуров А.М.

3 - 10243

Ориентирование монокристаллов на нейтронных дифрактометрах
по времени пролета

Проведен математический анализ условий для ориентирования монокристаллов на нейтронных дифрактометрах по времени пролета. Рассматриваются два способа ориентирования - в геометрии рассеяния путем наблюдения брэгговской дифракции и в геометрии пропускания путем анализа положений минимумов в спектрах пропускания.

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований
Дубна 1976

1. Введение

Исходным пунктом большинства дифракционных экспериментов с монокристаллами является определение ориентации осей кристалла относительно какой-либо заданной системы координат. Для рентгеновских и нейтронных дифрактометров, использующих монохроматическое излучение, методика ориентирования и программы вычислений приведены в литературе ^{/1/}. Использование "белого" спектра нейтронов в дифрактометрах по времени пролета ^{/2/} вносит существенные особенности в геометрию дифракционной картины. Во-первых, появляется возможность упростить обычную методику определения ориентации, проводя измерение отражений от разных кристаллографических плоскостей при фиксированном угле рассеяния. Во-вторых, при благоприятных условиях в спектре пропускания кристалла появляется большое число связанных с брэгговским рассеянием минимумов, анализ которых также может привести к установлению ориентации.

В настоящей работе рассматриваются оба способа ориентирования кристаллов по методу времени пролета. В первой части выводятся необходимые соотношения для ориентирования в геометрии рассеяния, во второй части развивается методика определения ориентации по пропусканию, предложенная в ^{/3/}.

2. Системы координат

За лабораторную систему координат примем правую декартову систему с единичным базисом $\vec{n}_1, \vec{n}_2, \vec{n}_3$, такую, что ось \vec{n}_3 перпендикулярна плоскости рассеяния, а оси \vec{n}_1 и \vec{n}_2 как-то фиксированы в ней, например, \vec{n}_1 параллельна первичному пучку нейтронов. С кристаллом свяжем три системы координат: $\vec{a}_1, \vec{a}_2, \vec{a}_3$ - определяющую элементарные трансляции в прямой решетке кристалла; $\vec{b}_1, \vec{b}_2, \vec{b}_3$ - определяющую элементарные трансляции в обратной решетке кристалла, и правую декартову систему с единичным базисом $\vec{m}_1, \vec{m}_2, \vec{m}_3$ такую, что $\vec{m}_1 \parallel \vec{b}_1$ и \vec{m}_2 лежит в плоскости, проходящей через \vec{b}_1 и \vec{b}_2 . Системы $\{\vec{a}\}$ и $\{\vec{b}\}$, называемые обычно кристаллографическими, обладают известным свойством

$$\vec{a}_i \cdot \vec{b}_j = \delta_{ij}, \quad /1/$$

δ_{ij} - символ Кронекера, $\delta_{ij} = 1$ при $i = j$, $\delta_{ij} = 0$ при $i \neq j$. Кристаллофизическая система $\{\vec{m}\}$ введена для удобства записи формул. Ее связь с $\{\vec{b}\}$ выражается равенством

$$\vec{m}_i = V_{ij} \vec{b}_j^*. \quad /2/$$

Общий вид матрицы V приведен, например, в ¹, в частном случае прямоугольных решеток V превращается в диагональную матрицу с элементами

$$V_{ii} = 1 / |\vec{b}_i|.$$

Системы $\{\vec{n}\}$ и $\{\vec{m}\}$ связаны через матрицу ориентации U ^{/1/}

$$\vec{m}_i = U_{ij} \cdot \vec{n}_j. \quad /3/$$

* Здесь и далее по повторяющемуся индексу предполагается суммирование от 1 до 3.

Так как U является матрицей ортогонального преобразования /3/, то

$$\det ||U|| = \pm 1, \quad U_{ij} U_{ik} = \delta_{jk}, \quad U_{ij} U_{kj} = \delta_{ik}. \quad /4/$$

Определение ориентации кристалла заключается в определении всех элементов матрицы U .

3. Ориентирование в геометрии рассеяния

Для определения ориентации кристалла достаточно выполнить следующие пункты.

1. В отражающее положение, путем вращения кристалла, последовательно приводятся N векторов обратной решетки \vec{r}_k , $k = 1, 2, \dots, N$; $N \geq 2$.

2. По известным координатам отражающего положения и по вычисленным матрицам поворотов восстанавливаются исходные положения найденных векторов обратной решетки.

3. Векторы \vec{r}_k идентифицируются, т.е. им по каким-либо соображениям присваиваются индексы Миллера.

4. Решается система уравнений, связывающих \vec{r}_k в системах $\{\vec{n}\}$ и $\{\vec{m}\}$ и находится матрица ориентации U .

Обычные гониометрические устройства позволяют вращать кристалл вокруг нескольких осей, причем после поворота вокруг любой оси положение в пространстве остальных осей может измениться. Для учета этого обстоятельства в общем случае будем характеризовать оси гониометрического устройства набором единичных векторов $\{\vec{\ell}\}$, а поворот кристалла на угол ϕ вокруг вектора $\vec{\ell}$ будем описывать матрицей R с элементами /4/

$$R_{ij}(\vec{\ell}, \phi) = \delta_{ij} \cos \phi + \delta_{ijk} \ell_k \sin \phi + \ell_i \ell_j (1 - \cos \phi), \quad /5/$$

где ℓ_k - компоненты $\vec{\ell}$ в системе $\{\vec{n}\}$, δ_{ij} - символ Кронекера, δ_{ijk} - символ Леви-Чивита, $\delta_{ijk} = 1$, при $ijk = 123, 231, 312$, $\delta_{ijk} = -1$ при $ijk = 132, 321, 213$

и $\delta_{ijk} = 0$ в остальных случаях. Векторы $\{\vec{\ell}\}$ при вращениях будут преобразовываться согласно

$$\vec{\ell}' = R \vec{\ell}, \quad /6/$$

где $\vec{\ell}$ и $\vec{\ell}'$ - векторы оси до и после поворота. Аналогично будут преобразовываться векторы обратной решетки $\vec{\tau}_k$, а в случае нескольких последовательных вращений преобразование будет иметь вид

$$\vec{\tau}' = \dots R_3 R_2 R_1 \vec{\tau} = G \vec{\tau}, \quad /7/$$

$\vec{\tau}$ и $\vec{\tau}'$ - векторы до и после поворотов, индекс у R означает номер поворота.

Как отмечалось во введении, в методе времени пролета поиск отражений можно провести при фиксированном угле рассеяния. Это означает, что ориентация вектора $\vec{\tau}'$ для всех найденных отражений одинакова. Для восстановления лабораторных координат $(\xi_i)_k$ векторов $\vec{\tau}_k$ в исходном положении кристалла достаточно обратить соотношение /7/

$$\vec{\tau} = G^{-1} \vec{\tau}', \quad /8/$$

Координаты $(\zeta_i)_k$ векторов $\vec{\tau}_k$ в системе $\{\vec{m}\}$ становятся известными после идентификации отражений и выполнения преобразования /2/. Связывая координаты векторов $\vec{\tau}_k$ в системах $\{\vec{m}\}$ и $\{\vec{n}\}$, получим систему уравнений

$$(\zeta_i)_k U_{ij} = (\xi_j)_k, \quad /9/$$

$k=1, 2, \dots, N$, N - число зарегистрированных отражений.

В зависимости от значения N система /9/ решается разными способами. При $N = 3$ это линейная система 9 уравнений с 9 неизвестными. При $N > 3$ /9/ можно решать методом наименьших квадратов. При $N=2$ для решения необходимо воспользоваться ортогональностью матрицы \vec{U} , т.е. условиями /4/.

4. Анализ спектров пропускания

В работе^{/3/} предложена схема вычислений и приведены экспериментальные результаты определения ориентации кристалла по трем спектрам пропускания. Из физических соображений ясно, что для решения этой задачи достаточно провести анализ спектров только для двух положений кристалла, различающихся поворотом на некоторый угол вокруг любой оси, непараллельной пучку нейтронов.

Покажем сначала, что анализ положений минимумов в спектре пропускания позволяет определить ориентацию первичного пучка нейтронов относительно системы $\{\vec{a}\}$. Для упрощения изложения будем считать системы $\{\vec{a}\}$ и $\{\vec{b}\}$ прямоугольными, тогда направления соответствующих векторов в $\{\vec{a}\}$, $\{\vec{b}\}$ и $\{\vec{m}\}$ совпадают.

Запишем условие брэгговского рассеяния в виде

$$\vec{k}' - \vec{k} = 2\pi\vec{\tau}, \quad /10/$$

\vec{k} и \vec{k}' - волновые векторы нейтрона до и после рассеяния, причем $|\vec{k}| = |\vec{k}'| = k$; $\vec{\tau} = p_j \vec{b}_j$ - вектор обратной решетки; p_j - индексы Миллера. Из /10/ легко получить

$$\vec{k} \cdot \vec{\tau} = -\pi |\vec{\tau}|^2. \quad /11/$$

Подставляя разложение $\vec{\tau}$ по ортам системы $\{\vec{b}\}$ и \vec{k} по ортам системы $\{\vec{a}\}$ в /11/, получим

$$\mu_j \frac{p_j}{a_j} = -\pi \frac{p_j^2 b_j^2}{k}, \quad /12/$$

где μ_j - направляющие косинусы вектора \vec{k} в системе $\{\vec{a}\}$.

В эксперименте по пропусканию нейтронов сквозь монокристалл наблюдаются положения минимумов, т.е. набор величин k_i . Сопоставляя с каждым k_i определенную комбинацию $(p_j)_i$, получим систему уравнений относительно μ_j

$$Q_{ij} \mu_j = Y_i, \quad /13/$$

где

$$Q_{ij} = (p_j)_i / a_j, \quad Y_i = -\frac{\pi}{k_i} b_j^2 (p_j^2)_i,$$

$i=1,2,\dots, N$, N - число зарегистрированных минимумов. По предположению $\vec{n}_1 \parallel \vec{k}$, т.е. μ_j есть координаты \vec{n}_1 в системе $\{\vec{m}\}$ и одновременно компоненты первого столбца матрицы U .

После определения μ_j для какого-то положения кристалла остается еще неопределенность в ориентации, связанная с вращением $\{\vec{m}\}$ вокруг \vec{n}_1 , при этом μ_j не изменяются. При повороте кристалла вокруг некоторой оси $\vec{\ell}$ на угол ϕ матрица ориентации преобразуется согласно

$$U' = UR(\vec{\ell}, \phi), \quad /14/$$

где U' - новая матрица ориентации, $R(\vec{\ell}, \phi)$ - матрица поворота /5/. Элементы первого столбца матрицы U' определяются с помощью анализа второго спектра пропускания. Если ось непараллельна пучку нейтронов, то элементы первого столбца матрицы U' являются линейной комбинацией элементов столбцов матрицы U , например, при повороте кристалла вокруг \vec{n}_3 на угол ϕ

$$U'_{j1} = U_{j1} \cos \phi - U_{j2} \sin \phi. \quad /15/$$

После решения /15/ относительно U_{j2} элементы U_{j3} определяются из условий /4/ и, таким образом, все элементы матрицы U становятся известными.

5. Заключение

Оба изложенных метода ориентирования монокристаллов опробованы в экспериментах, выполненных в ЛНФ ОИЯИ на импульсном реакторе ИБР-30. Программы написаны на ФОРТРАНе и адаптированы к ЭВМ БЭСМ-6 и CDC-6400 ЛВТА ОИЯИ. Результатом расчета являются эйлеровы углы поворотов для совмещения $\{\vec{m}\}$ и $\{\vec{n}\}$ систем и углы поворотов для приведения задан-

ного вектора обратной решетки в отражающее положение. В дальнейшем предполагается использовать изложенную методику для определения ориентации кристаллов на создающемся в ЛНФ нейтронном дифрактометре, в автоматическом режиме с помощью малой ЭВМ, управляющей трехосным гониометром.

Автор благодарен В.В.Нитцу, по инициативе и при участии которого были выполнены эксперименты по пропусканию, а также М.Длоуге за помощь в проведении экспериментов.

Литература

1. *W.R.Busing, H.A.Levy. Acta Cryst., 22, 457 /1967/.*
2. *В.В.Нитц, З.Г.Папулова, И.Сосновска, Е.Сосновски. ФТТ, 6, 1370 /1964/.*
3. *W.Minor, A.Rajca, T.Gebultowicz. Nucl.Instr. and Meth., 119, 141 /1974/.*
4. *Ю.И.Сиротин, М.П.Шаскольская. Основы кристаллофизики. Изд. Наука, М., 1975.*

*Рукопись поступила в издательский отдел
23 ноября 1976 года.*