

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

P14-85-2

Ким Чир Сен, В.В.Нитц

ДИФРАКЦИЯ НЕЙТРОНОВ
НА КРУПНОБЛОЧНОМ МОЗАИЧНОМ КРИСТАЛЛЕ

Направлено в журнал "phys. stat. sol."

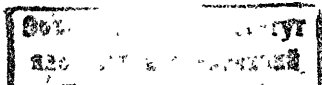
1985

ВВЕДЕНИЕ

Известно, что первичная экстинкция является серьезным препятствием в нейтронографических исследованиях структур с монокристаллическими образцами. В немногочисленных работах, в которых для определения структуры использовались монокристаллы, обычно предполагалась мелкоблочность, т.е. пренебрегалось первичной экстинкцией. Существуют методы учета первичной экстинкции в мозаичных кристаллах /например, ¹⁷/ . Однако практическое использование этих методов представляет немалые сложности, связанные с тем, что заранее неизвестно ни распределение кристаллитов по размерам, ни распределение их по ориентации. Более того, эти методы основаны на использовании дифференциальных уравнений Дарвина, не учитывающих в достаточной мере когерентность рассеяния от различных частей кристалла. Такой подход является удовлетворительным для учета вторичной экстинкции, но допустим лишь при относительно малых размерах мозаичных блоков, когда учет первичной экстинкции сводится к сравнительно малой поправке в интенсивности.

В данной работе проанализирована такая очевидно возможная ситуация, когда, напротив, первичная экстинкция максимальна, т.е. размеры кристаллитов достаточно велики для того, чтобы в некотором диапазоне длин волн нейтронов /или в угловом диапазоне в случае монохроматического пучка/ для каждого кристаллита вероятность рассеяния была близка к единице. Такое рассмотрение вызвано далеко не академическим интересом. Для типичных значений структурной амплитуды $F=1 \div 3 \cdot 10^{-12}$ см насыщение первичной экстинкции достигается при толщине блока около 10^{-3} см. Наша практика работы с монокристаллами показывает, что чаще приходится иметь дело с такими крупноблочными кристаллами, чем с мелкоблочными, когда еще можно ограничиться поправками на экстинкцию. Для выполнения условия применимости кинематического приближения, когда зависимость интенсивности рассеяния I от F близка к квадратичной, в случае крупноблочного кристалла пришлось бы использовать образцы толщиной порядка одного микрона. Подготовка таких образцов и их исследование проблематично, учитывая необходимость сохранения физических свойств и уменьшения влияния поверхностных эффектов.

Здесь рассматривается дифракция на крупноблочном кристалле с целью выявления условий, при которых между I и F имеет место достаточно простая /линейная/ для структурных исследований зависимость. Первый из рассмотренных случаев может быть реализован



при умеренных углах рассеяния. При этом из-за угловой разориентации кристаллитов рассеяние на различных кристаллитах не перекрывается по энергии нейтронов. Поэтому общая интенсивность рассеяния равна сумме интенсивностей от всех кристаллитов и, следовательно, как и для отдельного кристаллита, пропорциональна структурной амплитуде. Показано, что при выборе оптимальных значений толщины образца и угла рассеяния для конкретной кристаллографической плоскости можно обеспечить значительный, в десятки раз, выигрыш в интенсивности по сравнению с условиями кинематического приближения.

Другой случай реализуется при угле рассеяния, достаточно близком к 180° . При этом, несмотря на угловую разориентацию кристаллитов, функции рассеяния от различных кристаллитов почти полностью перекрываются. В этом случае можно считать, что кристаллиты, проходимые первичным пучком нейтронов, почти полностью экранируют друг друга. Поэтому снова полная интенсивность пропорциональна структурной амплитуде, как и на отдельном кристаллите. Показано, что интенсивность увеличивается с увеличением толщины образца. Причем допустимые значения толщины образца ограничены только снизу именно толщиной, необходимой для насыщения первичной экстинкции /не учитываются поглощение нейтронов и неупругие процессы/.

Прежде чем переходить к анализу, приведем некоторые используемые в дальнейшем соотношения между интенсивностью рассеяния и вероятностью дифракционного рассеяния на кристалле при фиксированном направлении падения.

Будет рассматриваться кристалл, имеющий вид плоскопараллельной пластины и состоящий из некоторого, вообще говоря, конечного числа совершенных кристаллитов. Кристалл помещен в монохроматический пучок нейтронов, падающий на кристалл в телесном угле Ω , определяемом коллимацией или размерами источника /случай монохроматического первичного пучка затронут в п.4/. Полная интенсивность рассеянного пучка

$$I = \int_{\Omega} i(\alpha, \beta) d\alpha d\beta, \quad /1/$$

где $i(\alpha, \beta)$ - интенсивность рассеяния для нейтронов, падающих на кристалл в направлении, определяемом углами α и β :

$$i(\alpha, \beta) = \int i_0(\lambda, \alpha, \beta) P(\lambda) d\lambda. \quad /2/$$

Здесь $i_0(\lambda, \alpha, \beta)$ - дифференциальная /отнесенная к единичным интервалам по длине волны и углам/ интенсивность первичного пучка, $P(\lambda)$ - вероятность дифракционного рассеяния на кристалле.

Так как $i_0(\lambda, \alpha, \beta)$ практически не изменяется в диапазоне интегрирования по λ , то

$$i(\alpha, \beta) = i_0(\lambda_0, \alpha, \beta) \int P(\lambda) d\lambda \quad /3/$$

λ_0 - среднее значение длины волны/ и поэтому

$$I = \int i_0(\lambda_0, \alpha, \beta) d\alpha d\beta \int P(\lambda) d\lambda = I_0(\lambda_0) \int P(\lambda) d\lambda. \quad /4/$$

Строго говоря, $P(\lambda)$ зависит от α и β . Но так как эта зависимость сводится лишь к сдвигу по λ , можем считать, что $\int P(\lambda) d\lambda$ не зависит от направления. Исходя из этого, дальнейшее рассмотрение будем производить для определенного фиксированного направления падения, полагая, что связанное с изменением направления изменение средней длины волны не сопровождается заметным изменением величины $I_0(\lambda)$.

1. ПЕРВАЯ ОБЛАСТЬ ПРОПОРЦИОНАЛЬНОСТИ МЕЖДУ I И F

Если допустить, что отдельный совершенный блок имеет форму протяженной плоскопараллельной пластины толщиной τ , вероятность отражения нейтронов представляется функциями /см., напр., /2/ /:

$$P_B(y) = [y^2 + (1 - y^2) \operatorname{cth}^2(A\tau\sqrt{1 - y^2})]^{-1}, \quad /5/$$

б/ в геометрии пропускания

$$P_L(y) = \sin^2(A\tau\sqrt{1 + y^2}) (1 + y^2)^{-1}, \quad /6/$$

где

$$y(\lambda, \theta) = \frac{\pi}{2d^2 N \sqrt{R} |F|} \left(\frac{2d \sin \theta}{\lambda} - 1 \right), \quad R = \frac{\cos \alpha_2}{\cos \alpha_1}, \quad /7/$$

$$A = \frac{\lambda N |F|}{\sqrt{|\cos \alpha_1 \cdot \cos \alpha_2|}}, \quad F = \sum_{\text{эл. яч}} a_i \exp[2\pi i(hx_i + ky_i + lz_i)]$$

- структурная амплитуда, в случае магнитной дифракции включающая зависимость от направления магнитных моментов; N - число ячеек в единице объема; α_1 и α_2 - углы между внутренней нормалью к поверхности пластины и направлениями первичного и вторичного пучков соответственно. Смещением по длине волны, связанным с преломлением на границах блока, пренебрегаем, т.к. это несущественно в дальнейшем рассмотрении. Так как практически

$$|E| \ll \frac{\pi}{d^2 N}, \quad \text{производная}$$

$$\left(\frac{d\lambda}{dy} \right)_{\theta = \text{const}} \approx \frac{4}{\pi} \sqrt{|R|} d^3 \sin^2 \theta_0 N |F|, \quad /8/$$

т.е. не зависит от y в области интегрирования. Поэтому

$$I = I_0(\lambda) \frac{B}{\pi} |F| \int_{-\infty}^{\infty} P(y) dy, \quad /9/$$

где

$$B = 4\sqrt{|R|} d^3 \sin \theta_0 \cdot N. \quad /10/$$

Используя значения^{2,3/} интегралов от $P_B(y)$ и $P_L(y)$, имеем в геометрии отражения

$$I = I_0(\lambda_0) B |F| \text{th}(A\tau) \quad /11/$$

и в геометрии пропускания

$$I = I_0(\lambda_0) B |F| \sum_{k=0}^{\infty} J_{2k+1}(2A\tau) \quad /12/$$

J_{2k+1} - функция Бесселя I рода.

В кинематическом приближении ($A\tau \ll 1$):

$$I = I_0(\lambda_0) 8d^4 |\cos \alpha_1|^{-1} \sin^2 \theta_0 N^2 |F|^2 \tau. \quad /13/$$

При $|A\tau| > 1$, когда $\text{th}(A\tau) \approx 1$ и $\sum_{k=0}^{\infty} J_{2k+1}(2A\tau) \approx 1/2$, имеет место известная пропорциональность между I и F :

$$I = I_0(\lambda_0) \cdot c \cdot B |F| \quad /14/$$

$c \approx 1$ - в геометрии отражения, $c = 1/2$ - в геометрии пропускания/.

При больших значениях τ интеграл $\int P(y) dy$ не зависит от структурной амплитуды. Поэтому с полным основанием можем полагать, что такой интеграл не зависит от F для достаточно крупных реальных блоков мозаичного кристалла, и описывать интенсивность рассеяния на таких блоках выражением /14/.

В случае мозаичного кристалла для каждого фиксированного первичного направления нейтронов имеем набор кривых отражения, которые сгруппированы около среднего значения $\lambda_0 = 2d \sin \theta_0$ и описываются функциями $P(\lambda)$, соответствующими отдельным блокам. Расстояние между максимумами кривых отражения для двух блоков

$$\Delta \lambda_M = 2d \cos \theta_0 \Delta \theta_M. \quad /15/$$

Здесь $\Delta \theta_M$ - угол между кристаллографическими плоскостями для этих блоков.

При $A\tau > 1$ отражение сосредоточено, главным образом, в диапазоне $[-1, 1]$ по y . Поэтому для оценки вклада вторичной экстинкции, ограничиваясь предположением о геометрии отражения для отдельных блоков, кривую отражения на каждом блоке представим прямоугольником с шириной

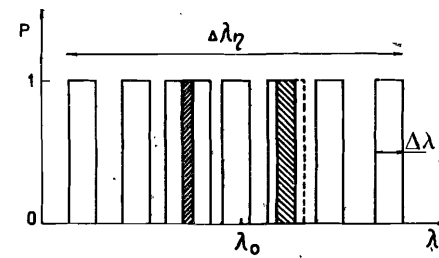


Рис.1. Схематическое представление зависимости вероятности отражения от длины волны нейтронов в случае крупноблочного мозаичного кристалла. Ширина функции отражения $\Delta \lambda_g$ каждого блока описывается динамической теорией, ширина распределения $\Delta \lambda_T$ обусловлена мозаичностью

кристалла. Заштрихованы участки, связанные с перекрытием функций отражения блоков, имеющих близкую ориентацию.

$$\Delta \lambda_F = \left(\frac{d\lambda}{dy} \right)_{\theta = \text{const}} \cdot \pi = B |F|, \quad /16/$$

высотой, равной единице, как показано на рис.1. Используем случай гауссовского распределения по мозаичности

$$W(\Delta \theta_M) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \eta_0} \exp\left(-\frac{\Delta \theta_M^2}{2\eta_0^2}\right). \quad /17/$$

Интенсивность рассеяния

$$I = I_0(\lambda_0) \int_{-\infty}^{\infty} \left[\left(\frac{T}{\tau} \right) \frac{a}{\sqrt{2\pi} \eta_0} \int_{-\frac{\Delta \lambda_g}{2}}^{\frac{\Delta \lambda_g}{2}} \exp\left[-\frac{a^2(\lambda - \lambda_0 + \epsilon)^2}{2\eta_0^2}\right] d\epsilon - \left(\frac{T}{\tau} \right)^2 \frac{a^2}{\pi \eta_0^2} \int_{-\frac{\Delta \lambda_g}{2}}^{\frac{\Delta \lambda_g}{2}} \exp\left[-\frac{a^2(\lambda - \lambda_0 + \epsilon')^2}{2\eta_0^2}\right] d\epsilon' \int_{-\frac{\Delta \lambda_g}{2}}^{\frac{\Delta \lambda_g}{2}} \exp\left[-\frac{a^2(\lambda - \lambda_0 + \epsilon'')^2}{2\eta_0^2}\right] d\epsilon'' \right] d\lambda, \quad /18/$$

где

$$a = \left. \frac{d(\Delta \theta_M)}{d\lambda} \right|_{\lambda = \lambda_0} \approx \frac{\text{tg} \theta_0}{\lambda_0},$$

T - толщина кристалла, т.е. (T/τ) - среднее число блоков, пересекать первичным пучком. Первый член под интегралом /по λ / - вероятность того, что при фиксированном значении λ в заданном направлении попадет хотя бы один блок, удовлетворяющий условию дифракции. Поэтому, как и следовало ожидать, первый интеграл по λ равен $(T/\tau) \Delta \lambda_g$.

Но в этом интеграле перекрывающиеся участки функций отражения, обусловленные пересечением первичным пучком двух /или более/ блоков с близкой ориентацией /на рис.1 - участок, заштрихованный слева от λ_0 /, учтены дважды. Кроме того, не учтено, что нейтроны после отражения от одного блока могут частично снова отразиться от другого блока /на рис.1 - второй заштрихованный участок/. Вероятности таких двух случаев одинаковы и сводятся к вероятности того, что при пересечении кристалла в заданном направлении попадутся два блока с перекрывающимися функциями отражения. Поправка, связанная с такими процессами, учитывается второй частью выражения /18/, взятой со знаком минус и содержащей коэффициент 2.

Из /18/, изменяя порядок интегрирования, получаем

$$I = I_0(\lambda_0) \left(\frac{T}{\tau}\right) \left[\Delta\lambda_g - \left(\frac{T}{\tau}\right) \frac{\text{tg } \theta_0}{\sqrt{\pi} \lambda_0 \eta_0} \times \frac{\Delta\lambda_g}{2} - \frac{\Delta\lambda_g}{2} \int_{-\frac{\Delta\lambda_g}{2}}^{\frac{\Delta\lambda_g}{2}} \exp\left[-\frac{\text{tg}^2 \theta_0 (\epsilon' - \epsilon'')^2}{4 \lambda_0^2 \eta_0^2}\right] d\epsilon' d\epsilon'' \right] \quad /19/$$

Далее, после интегрирования /19/ по одному из параметров:

$$I = I_0(\lambda_0) B |F| \left(\frac{T}{\tau}\right) \left[1 - 2 \left(\frac{T}{\tau}\right) k \int_0^k \text{erf}(x) dx \right], \quad /20/$$

где $k = d^2 N \text{tg } \theta_0 \eta_0^{-1} |F|$, $\text{erf}(x) = \frac{2}{\pi} \int_0^x e^{-w^2} dw$ - функция ошибок.

$$\text{Так как } \int_0^k \text{erf}(x) dx = k \text{erf}(k) - \frac{1}{\sqrt{\pi}} (1 - e^{-k^2}), \quad \text{то}$$

$$I = I_0(\lambda_0) B |F| \left(\frac{T}{\tau}\right) \left[1 - 2 \left(\frac{T}{\tau}\right) \left[\text{erf}(k) - \frac{1}{\sqrt{\pi} k} (1 - e^{-k^2}) \right] \right]. \quad /21/$$

При малых значениях k $\text{erf}(k) \approx \frac{2k}{\sqrt{\pi}}$, поэтому при относительно малой вторичной экстинкции

$$I = I_0(\lambda_0) B |F| \left(\frac{T}{\tau}\right) \left[1 - \left(\frac{T}{\tau}\right) \frac{2d^2 N |F| \text{tg } \theta_0}{\sqrt{\pi} \eta_0} \right]. \quad /22/$$

2. ВТОРАЯ ОБЛАСТЬ ПРОПОРЦИОНАЛЬНОСТИ МЕЖДУ I И F ($\theta_0 \approx 90^\circ$)^{/4/}

С увеличением угла θ_0 ширина $\Delta\lambda_g$ увеличивается пропорционально $\sin \theta_0$ /см. /8/, /6//, а расстояние $\Delta\lambda_M$ уменьшается пропорционально $\cos \theta_0$ /см. /15//. В результате увеличивается степень перекрытия функций отражения для различных блоков и ослабевает зависимость I от F. Наконец, при θ_0 , достаточно близком к 90° , функции отражения почти "сливаются" и интенсивность перестает зависеть от мозаичности.

Для расчета интенсивности в этой области подробнее рассмотрим вид функции отражения. Прежде всего заметим, что при $\theta_0 \approx 90^\circ$ можем ограничиться рассмотрением геометрии отражения. Далее, ввиду нарушения плоскостности в каждом блоке, следует усреднить осциллирующие ветви функции P(y) /см. /5//, как это обычно делается, по τ , по крайней мере, по одному периоду осцилляций, т.е. вместо /5/ использовать значения:

$$P_1(y) = \begin{cases} 1 & \text{при } |y| \leq 1 \\ \frac{1}{2y^2} & \text{при } |y| > 1. \end{cases} \quad /23/$$

Интеграл $\int_{-\infty}^{\infty} P_1(y) dy = 3$, что незначительно отличается от интеграла

$\int P_B(y) dy = \pi$ /при $A\tau \gg 1$ /. На рис.2 показан вид точной функции $P_B(y)$ при $A\tau = 5,5$ и усредненной по осцилляциям /23/. Допустим, что первичный пучок нейтронов пересекает два блока, вероятность отражения на каждом из которых равна $P_1(y)$. Тогда, с учетом всех возможных отражений,

$$P_2(y) = P_1 + (1 - P_1)^2 P_1 + (1 - P_1)^2 P_1^3 + (1 - P_1)^2 P_1^5 + \dots$$

При суммировании получаем

$$P_2(y) = \frac{2P_1}{1 - P_1}. \quad /24/$$

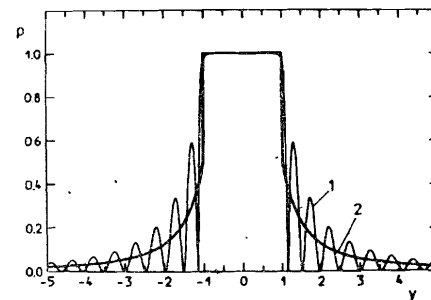


Рис.2. Функция отражения для отдельного блока, используемая при $\theta > \theta_{kr}$ /кривая 2/. Тонкой линией показана функция отражения для идеальной плоскопараллельной кристаллической пластины при $A\tau = 5,55$ /кривая 1/.

Для случая четырех блоков, группируя их по два, аналогично получаем

$$P_4(y) = \frac{2P_2}{1 - P_2} = \frac{4P_1}{1 - 3P_1} \quad /25/$$

Таким же образом можем получить $P_8(y)$, $P_{16}(y)$ и т.д. Обобщая, для кристалла, содержащего n блоков по его толщине, имеем

$$P_n(y) = \frac{nP_1}{1 + (n-1)P_1} \quad /26/$$

и, подставляя сюда $P_1 = (2y^2)^{-1}$, при $|y| > 1$ получаем

$$P_n(y) = \frac{n}{2y^2 + (n-1)} \quad /27/$$

Далее,

$$\int_1^{\infty} P_n(y) dy = \frac{n}{\sqrt{2(n-1)}} \left(\frac{\pi}{2} - \arctg \sqrt{\frac{2}{n-1}} \right), \quad /28/$$

и выражение для интенсивности рассеяния имеет вид

$$I = I_0(\lambda_0) \left(\frac{d\lambda}{dy} \right)_{\theta} \text{const} \int_{-\infty}^{\infty} P_n(y) dy = \quad /29/$$

$$= I_0(\lambda_0) \frac{2B|F|}{\pi} \left[1 + \frac{n}{\sqrt{2(n-1)}} \left(\frac{\pi}{2} - \arctg \sqrt{\frac{2}{n-1}} \right) \right].$$

Для многоблочного кристалла $n = T/r \gg 1$:

$$I = I_0(\lambda_0) \frac{2B|F|}{\pi} \left(1 + \frac{\pi}{2\sqrt{2}} \sqrt{\frac{T}{r}} \right). \quad /30/$$

При выводе выражения /29/ использовалось то обстоятельство, что параметр y для нейтронов, падающих на кристалл в заданном направлении, не изменяется существенным образом в процессе многократных отражений от различных блоков. "Расфокусировка" нейт-

ронов при рассеянии на блоке со средним размером r_{cp} равна

$$\Delta\theta_r \approx \frac{\lambda_0}{r_{cp}} \quad /31/$$

Поэтому в нашем приближении можем пренебрегать расфокусировкой /изменением y /, в отличие от случая мелкоблочных кристаллов, когда она существенна.

3. ГРАНИЦЫ ПРОПОРЦИОНАЛЬНОЙ ЗАВИСИМОСТИ. ПРИМЕРЫ

Результат предыдущего анализа представлен на рис. 3.

Показана зависимость от θ_0 эффективной ширины функции отражения, характеризующей интенсивность рассеяния, в симметричном случае ($|R| = 1$).

На начальном участке кривой $\Delta\lambda \sim \sin\theta_0$ /см. /10/, /22//. Характерный предельный угол θ_{max} можем определить, например, из условия, что поправочный член в /22/ равен 0,2. Тогда

$$\theta_{max} = \arctg \left(\frac{0,18 \eta_0}{d N |F|} \frac{r}{T} \right). \quad /32/$$

При дальнейшем росте θ_0 увеличивается степень наложения функций отражения для различных блоков, и при почти непрерывном распределении общей функции отражения интенсивность становится пропорциональной ширине, связанной с мозаичностью

$$\Delta\lambda_{\eta} = 2d \cos\theta_0 \sqrt{2 \ln 2} \eta_0. \quad /33/$$

Наконец, при приближении к 90° интенсивность снова пропорциональна $\sin\theta_0$, но с коэффициентом $\sqrt{\frac{T}{r}}$ /см. /30/ при $\frac{T}{r} \gg 1$. Характерный

угол $\theta_{кр}$ получаем приравниванием /33/ и величины

$$\Delta\lambda(\theta = \frac{\pi}{2}) = \frac{4d^3 \sin^3\theta_0 N |F|}{\sqrt{2}} \sqrt{\frac{T}{r}}; \quad /34/$$

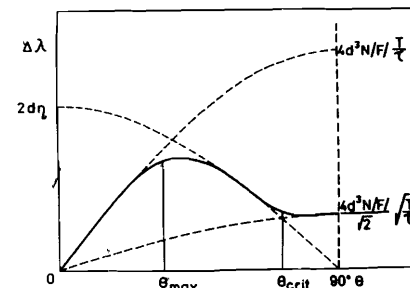


Рис.3. Угловая зависимость эффективной ширины функции отражения, характеризующей интенсивность рассеяния на крупноблочном мозаичном кристалле $\eta = 2\sqrt{2 \ln 2} \eta_0$.

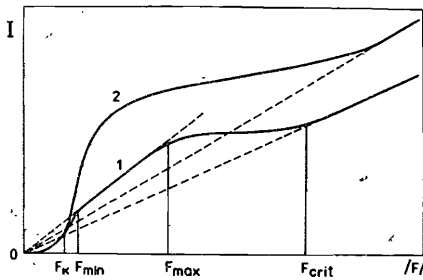


Рис.4. Зависимость интенсивности рассеяния от величины структурной амплитуды. Кривая 1 - для крупноблочного мозаичного кристалла, 2 - для мелкоблочного кристалла.

$$\theta_{кр} = \arctg \left(\frac{1,7 \eta_0}{d N |F|} \sqrt{\frac{\tau}{T}} \right). \quad /35/$$

Одна из кривых на рис.4 - зависимость интенсивности от $|F|$ для крупноблочного кристалла. При малых $|F|$, конечно, $I \sim |F|^2$ /в соответствии с /13/, где вместо τ - толщина кристалла T /. Если определить F_k как величину $|F|$, при которой $(A\tau - \text{th} A\tau) = 0,1$, то предельное значение для кинематического приближения в геометрии отражения /для симметричного случая $R = 1/$ равно

$$F_k = (3dN\tau)^{-1}. \quad /36/$$

Граница применимости кинематического приближения в геометрии пропускания также выражается соотношением /36/. Действительно, так как при малых z

$$J_0(z) = \sum_{k=0}^{\infty} \frac{(-1)^k}{(k!)^2} \left(\frac{z}{2}\right)^{2k},$$

получаем

$$\int_{-\infty}^{\infty} P_L(y) dy = \pi A \tau \left(1 - \frac{A^2 \tau^2}{3}\right) \quad /37/$$

- выражение, полностью совпадающее с соответствующим выражением в геометрии отражения.

С ростом $|F|$ интенсивность I становится пропорциональной $|F|$. Пусть F_{min} - величина $|F|$, при которой $(1 - \text{th}(A\tau)) = 0,05$. Тогда

$$F_{min} = 0,9(dN\tau)^{-1}. \quad /38/$$

Далее из-за вторичной экстинкции линейная зависимость нарушается. Если F_{max} - величина $|F|$, при которой относительная поправка на экстинкцию в /22/ равна 0,2, то

$$F_{max} = \frac{0,18 \eta_0}{d^2 N \text{tg} \theta_0} \left(\frac{\tau}{T}\right). \quad /39/$$

При дальнейшем росте $|F|$ интенсивность увеличивается, но зависимость от F становится сложной, относительно слабой и поэтому едва ли удобной для структурных исследований. Наконец, при

$$|F| > F_{кр} = \frac{1,7 \eta_0}{d^2 N \text{tg} \theta_0} \sqrt{\frac{\tau}{T}}, \quad /40/$$

где $F_{кр}$ получено приравнением /33/ и /34/, эффективная ширина области отражения становится больше ширины размытия, обусловленного мозаичностью, и поэтому снова $I \sim |F|$.

Вторая кривая на рис.4 соответствует мелкоблочному кристаллу, для которого перекрытие функций отражения наступает раньше, чем насыщение рассеяния на отдельном блоке. Можно считать, что для такого кристалла $F_{min} > F_{max}$, т.е. $\tau^2 < 5 d \text{tg} \theta_0 T \eta_0^{-1}$. Отсюда, кстати, следует, что разделение кристаллов на мелкоблочные и крупноблочные - относительное, зависящее от других параметров. Причем для кристаллов с любым размером блоков можно, в принципе, создать условия для линейной зависимости. Но практически такая возможность может оказаться лишь формальной или труднореализуемой, если допустимые углы θ_0 слишком малы или значения F , при которых зависимость линейна, превышают фактические значения структурной амплитуды для данного кристалла.

В табл.1 - несколько рассчитанных примеров пропорциональности между I и F . Величина τ_k - максимально допустимая толщина от-

Таблица 1

$$d = 2 \cdot 10^{-8} \text{ см}, N = 10^{22} \text{ см}^{-3}$$

η_0	τ (см)	θ_0	T (см)	F_{min} (10^{-12} см)	F_{max} (10^{-12} см)	τ_k (см)	K_1 ($F = F_{min}$)	K_2 ($F = F_{max}$)
5'	$1 \cdot 10^{-3}$	7°	0,025	4,5	22	$0,75 \cdot 10^{-4}$	180	35
2'	$5 \cdot 10^{-3}$	30°	0,05	0,9	4,5	$3,7 \cdot 10^{-4}$	75	13,5
1'	$20 \cdot 10^{-3}$	30°	0,2	0,225	2,25	$7 \cdot 10^{-4}$	150	13,5

$$N = 10^{22} \text{ см}^{-3}$$

Таблица 2

η_0	τ	d	T	$\theta_{кр}$	K_1	K_2
(см)	(10^{-8} см)	(см)	(см)	($F_2 = 10^{-12}$ см) ($F = F_1$)	($F = F_2 = 2 \cdot 10^{-12}$ см)	
2'	$5 \cdot 10^{-3}$	2	0,5	86°	7	3,5
2'	$5 \cdot 10^{-3}$	4	0,5	77°	7	3,5
1'	$5 \cdot 10^{-3}$	2	0,5	83°	7	3,5
1'	$1 \cdot 10^{-3}$	2	0,05	85°	5	2,5
1'	$1 \cdot 10^{-3}$	2	0,5	75°	16	8

дельного блока и тем самым всего кристалла для применения кинематического приближения при $|F| = F_k = F_{max}$ /в соответствии с /36//. Величины k_1 и k_2 - отношения интенсивности на линейном участке к интенсивности в кинематическом приближении с кристаллом толщиной τ_k для значений F , равных нижнему и верхнему пределам линейного участка соответственно.

В табл. 2 представлены для ряда случаев критические углы $\theta_{кр}$ при $F_1 = 10^{-12}$ см и отношения k_1 и k_2 интенсивностей /30/ и /13/ при двух значениях F . В случае кинематического приближения принималось $\tau_k = (3dNF_2)^{-1}$, $\theta_0 = 45^\circ$, причем учитывалось, что первичный спектр пропорционален λ^{-5} , т.е. введен дополнительный множитель $\sin^5 \theta_0$.

4. СЛУЧАЙ МОНОХРОМАТИЧЕСКОГО ПЕРВИЧНОГО ПУЧКА

В представленном анализе предполагался немонохроматический спектр первичного пучка. При этом мы считали, что энергетический диапазон рассеиваемых нейтронов определяется коллимацией α_m первичного пучка, т.е. для величины немонохроматичности первичного пучка $\Delta\lambda_0$ выполняется соотношение $\Delta\lambda_0 \gg 2d \cos \theta_0 \cdot \alpha_m$ и, кроме того, $\Delta\lambda_0 \gg 2d \cos \theta_0 \sqrt{2 \ln 2} \cdot \eta_0$. Это позволило фиксировать направление падения и варьировать длину волны. Поэтому полученные формулы непосредственно применимы к случаю кристалла, помещенного в "белый" пучок нейтронов.

Аналогичный анализ можно приблизить для монохроматического /точнее выражаясь, квазимонохроматического/ первичного пучка. В этом случае энергетический диапазон рассеиваемых нейтронов определяется степенью немонохроматичности этого пучка, т.е. выполняется соотношение $\Delta\lambda_0 \ll 2d \cos \theta_0 \cdot \alpha_m$ и, кроме того, для мо-

нохроматичности: $2\sqrt{2 \ln 2} \eta_0 \ll \alpha_m$. При этом можно фиксировать длину волны и варьировать направление падения. Результат такого анализа может быть получен и непосредственной подстановкой в /13/ и /22/ соотношения

$$I_0(\lambda_0) = I_0(\theta_0) \cdot \left(\frac{d\theta}{d\lambda} \right)_{\lambda=\lambda_0} = I_0(\theta_0) \frac{1}{2d \cos \theta_0} \quad /41/$$

Здесь $I_0(\theta_0)$ - интенсивность первичного пучка, отнесенная к единичному угловому диапазону /в среднем направлении θ_0 / и представляющая собой интеграл по всем длинам волн этого пучка. В результате, для кинематического приближения

$$I = I_0(\theta_0) \frac{4d^3 \sin^2 \theta_0 \operatorname{tg} \theta_0}{|\cos \alpha_1|} \cdot N^2 |F|^2 \tau \quad /42/$$

для линейной области между F_{min} и F_{max} :

$$I = I_0(\theta_0) 2\sqrt{|R|} d^2 \operatorname{tg} \theta_0 N |F| \left(\frac{T}{\tau} \right) \left[1 - \left(\frac{T}{\tau} \right) \frac{2d^2 N \operatorname{tg} \theta_0 |F|}{\sqrt{\pi} \eta_0} \right] \quad /43/$$

При $\theta_0 \rightarrow 90^\circ$ подобный переход привел бы к расходящемуся выражению. В этом случае для получения абсолютной величины интенсивности I следует также использовать /29/, т.е. знать спектральный состав $I_0(\lambda)$ монохроматического пучка. Обычно используемая степень немонохроматичности падающего пучка, составляющая не менее $0,5 \div 1\%$, не приводит к какому-либо отличию от случая "белого" пучка при $\theta_0 \rightarrow 90^\circ$, так как эффективный диапазон рассеиваемых нейтронов /см. /33// на два - три порядка меньше. Такую же относительно малую величину составляет при $\theta_0 \rightarrow 90^\circ$ сдвиг средней длины волны при изменении направления падения в пределах коллимации. Для случая монохроматического первичного пучка остаются неизменными граничные значения величин θ_0 и F /выражения /32/, /35/, /36/, /38/-/40// и приведенные в таблицах конкретные оценки.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Из приведенного анализа следует, что для каждого дифракционного отражения можно подобрать условия, при которых интенсивность пропорциональна структурной амплитуде. Такая простая зависимость позволяет определять величину структурной амплитуды или ее изменение без введения сложных поправок на экстинкцию.

Важным достоинством структурных измерений в таких условиях является отсутствие жестких ограничений на размеры кристалла. Помимо существенного увеличения интенсивности рассеяния по сравнению с условиями кинематического приближения /для образцов, приготовленных из тех же крупноблочных кристаллов/ это означает и возможность проведения исследований на таких кристаллах, изготовленные из которых образцов достаточно малой для кинематического приближения толщины /несколько микрон/ практически невозможно.

Рассмотренный метод структурных исследований имеет существенные ограничения. Во-первых, условия для линейной зависимости имеют индивидуальный характер, т.е. для каждого дифракционного отражения может потребоваться приготовление своего образца /пластинки с определенной толщиной/. Во-вторых, границы линейной зависимости существенно зависят от параметров η и τ , заранее, как правило, неизвестных, определение которых технически довольно трудно.

Из этих ограничений следует, что этот метод едва ли применим для определения полной структуры вещества, когда необходим анализ множества дифракционных отражений. Но, по-видимому, он может быть удобным при изучении изменения известной структуры под действием внешнего поля, например, магнитного, или при изменении температуры, когда достаточно анализировать лишь несколько дифракционных отражений. При этом условия для измерений можно подбирать эмпирически, без предварительного определения мозаичности и средних размеров кристаллитов каким-либо другим, независимым методом. Действительно, как следует из приведенных в третьем разделе соотношений, измерение зависимости $I(\theta_0)$ для какого-либо дифракционного отражения дает приблизительные значения η и τ . Отсюда для конкретных кристаллографических отражений сразу решается вопрос о возможности определения изменения F в первой линейной области и определяется диапазон для угла θ_0 , в котором должна реализоваться вторая область пропорциональности между I и F .

Обычно представляет интерес характер поворота магнитных моментов под действием поля при ориентационных фазовых переходах между известными фазовыми состояниями. Причем эти состояния могут быть реализованы изменением температуры. Измерение интенсивности в таких известных состояниях может служить проверкой пропорциональности между I и F и являться калибровочным для дальнейшего определения промежуточных значений F .

ЛИТЕРАТУРА

1. Zachariasen W.N. Acta Crystallogr., 1967, 23, p. 558;
Мурадян Л.А., Симонов В.Н. Кристаллография, 1974, 19, с.1148;
Coppens Ph., Hamilton W.C. Acta Crystallogr., 1970, A26, p. 1971.

2. Zachariasen W.H. Theory of X-ray Diffraction in Crystals, John Wiley, New York, 1945.
3. Darwin C.G. Phil.Mag., 1922, 43, p. 800.
4. Ким Чир Сен., Кубиак С., Нитц В.В. ОИЯИ, P14-83-102, 1983.

Рукопись поступила в издательский отдел
2 января 1985 года.