

сообщения
объединенного
института
ядерных
исследований
дубна

P14-85-556

И. Попа

ЭКСТИНКЦИЯ В КРИСТАЛЛАХ
С ЗАДАННЫМИ ФОРМОЙ
И МОЗАИЧНЫМ РАСПРЕДЕЛЕНИЕМ

1985

Настоящее сообщение является продолжением работы^{1/} и содержит приложение полученного там общего решения уравнений переноса к случаям конкретного распределения блоков мозаики в кристалле и конкретной формы самого кристалла. Эти предположения позволяют упростить общее решение и получить формулы, удобные для практического учета влияния экстинкции на интенсивности дифракционных пиков. Ссылки на формулы и рисунки из работы^{1/} даются в виде /1, .../.

1. КОЭФФИЦИЕНТ ЭКСТИНКЦИИ ДЛЯ ЗАДАННОГО МОЗАИЧНОГО РАСПРЕДЕЛЕНИЯ

Распределение мозаичных блоков кристалла по ориентациям обычно предполагается гауссовым, т.е. в случае трех измерений

$$W(\vec{\Delta}) = g_1 g_2 g_3 \exp(-\pi \sum_1 g_i^2 \Delta_i^2), \quad /1/$$

где переменные Δ_i описывают малые вращения вокруг главных осей эллипсоида постоянной вероятности, g_i определяют ширину распределения на половине высоты: $w_i = 2(\ln 2/\pi)^{1/2}/g_i = 0,939/g_i$. Главные оси эллипсоида ориентированы вдоль единичных векторов \vec{m}_i и для записи распределения W в системе (\vec{n}_i) ^{1/} необходимо ввести ортогональную матрицу $E^{(m)}$ связывающую системы (\vec{m}_i) и (\vec{n}_i) :

$$\vec{m}_i = \sum_k E_{ik}^{(m)*} \vec{n}_k. \quad /2/$$

Принимая во внимание, что $\vec{\Delta} = \sum_1 \Delta_1 \vec{m}_i = \sum_k \epsilon_k \vec{n}_k$, получаем

$$W(\epsilon_1, \epsilon_2, \epsilon_3) = |C|^{1/2} \exp(-\pi \sum_{j,k} C_{jk} \epsilon_j \epsilon_k) \quad /3/$$

$$C = E^{(m)*} G^2 E^{(m)} : G_{ij} = g_i \delta_{ij}, \quad /4а,б/$$

где δ_{ij} - символ Кронекера. После интегрирования /3/ по ϵ_1 и ϵ_2 получается одномерное мозаичное распределение, которое непосредственно проявляется в дифракционном процессе

$$W(\epsilon_3) = g_G \exp(-\pi g_G^2 \epsilon_3^2), \quad /5/$$

$$1/g_G^2 = \sum_k E_{k3}^{(m)2} /g_k^2. \quad /6/$$

и которое необходимо использовать при вычислении свертки /1,12/ с сечением $\sigma(\Gamma_1, \Gamma_2)$ среднего совершенного блока. Это сечение

вычислено в приложении А /А12, А13/ для эллипсоида с главными осями Γ_i , ориентированными вдоль единичных векторов \vec{c}_i ($i = 1, 3$), сечение зависит от радиусов ρ_1 и ρ_2 вдоль направлений первичного и дифрагированного пучков соответственно от модифицированного угла Брэгга θ' /поскольку эллипсоид трансформируется в сферу/. Величины ρ_i и θ' можно вычислить, введя ортогональную матрицу $E^{(c)}$, связывающую системы (\vec{c}_i) и (\vec{n}_i) :

$$\vec{c}_i = \sum_k E_{ik}^{(c)} \vec{n}_k. \quad /7/$$

Действительно, используя преобразование /рис.1,1/

$$\vec{i}_\ell = \cos \theta \vec{n}_1 + (-1)^\ell \sin \theta \vec{n}_2; \quad (\ell = 1, 2) \quad /8/$$

и /Б.1, Б.2/ из приложения Б, получаем:

$$1/\rho_\ell^2 = \sum_k [\cos \theta E_{k1}^{(c)} + (-1)^\ell \sin \theta E_{k2}^{(c)}]^2 / \Gamma_k^2; \quad (\ell = 1, 2), \quad /9/$$

$$\cos 2\theta' = \rho_1 \rho_2 \sum_k (\cos^2 \theta E_{k1}^{(c)2} - \sin^2 \theta E_{k2}^{(c)2}) / \Gamma_k^2. \quad /10/$$

Теперь можно вычислить свертку /1.12/, и, принимая во внимание факторизации /1.13/ и /1.30/, получаем:

$$G_i(\Gamma_i) = a_{iG} \exp(-\pi a_{iG}^2 \Gamma_i^2), \quad /11/$$

$$Z_i(\Gamma_i, \Gamma_j) = \frac{a_{iG}}{\delta_{iG}} \exp[-\pi \frac{a_{iG}^2}{\delta_{iG}^2} (\nu_{iG} \Gamma_i - \Gamma_j)^2]; \quad (i \neq j = 1, 2), \quad /12/$$

где

$$a_{iG}^2 = \frac{g_G^2 c_0^2 \rho_j^2 \sin^2 2\theta / \lambda^2}{g_G^2 + c_0^2 \rho_j^2 \sin^2 2\theta / \lambda^2}; \quad (i \neq j = 1, 2), \quad /13/$$

$$\nu_{iG} = \frac{g_G^2 \cos 2\theta' \rho_j / \rho_i + c_0^2 \rho_j^2 \sin^2 2\theta / \lambda^2}{g_G^2 + c_0^2 \rho_j^2 \sin^2 2\theta / \lambda^2}; \quad (i \neq j = 1, 2), \quad /14/$$

$$\delta_{iG}^2 = 1/a_{iG}^2 - \nu_{iG}^2; \quad \delta_{2G}^2 = a_{2G}^2 - \nu_{2G}^2. \quad /15/$$

Здесь a_G есть параметр, характеризующий анизотропию размеров блоков

$$a_G = \frac{a_{2G}}{a_{1G}} = \frac{\rho_1}{\rho_2} \frac{(g_G^2 + c_0^2 \rho_2^2 \sin^2 2\theta / \lambda^2)^{1/2}}{(g_G^2 + c_0^2 \rho_1^2 \sin^2 2\theta / \lambda^2)^{1/2}}. \quad /16/$$

Справедливы следующие соотношения:

$$\nu_{2G} = a_{2G}^2 \nu_{1G}; \quad \delta_{2G} = a_{2G}^2 \delta_{1G}; \quad \nu_{1G} \nu_{2G} + \delta_{1G} \delta_{2G} = 1, \quad /17а, б, в/$$

т.е. всегда $0 \leq \nu_{1G} \nu_{2G} \leq 1$ и соответственно $0 \leq \delta_{1G} \delta_{2G} \leq 1$.

Обсудим теперь предельные случаи. Если $g_G \ll (c_0/\lambda) \sin 2\theta$.

$\cdot \min(\rho_1, \rho_2)$, то $a_G = 1$, $a_{1G} = a_{2G} = g_G$, $\nu_{1G} = \nu_{2G} = 1$, $\delta_{1G} = \delta_{2G} = 0$, $a_{iG}/\delta_{iG} \rightarrow \infty$ и функции Z_i становятся δ -функциями. При этом кристалл принадлежит к типу I, на экстинкции сказывается только мозаичность кристалла и уравнения переноса являются ГЗ-уравнениями^{1/}. Если же $g_G \gg (c_0/\lambda) \sin 2\theta \cdot \max(\rho_1, \rho_2)$,

то $a_G = \rho_1/\rho_2 \neq 1$, $a_{iG} = c_0 \rho_j \sin 2\theta / \lambda$, $\nu_{iG} = \rho_j \cos 2\theta' / \rho_i$, $\delta_{iG} = \rho_j \sin 2\theta' / \rho_i$ ($i \neq j$). Величины a_{iG}/δ_{iG} теперь конечны и Z_i - не δ -функции. В этом случае кристалл принадлежит к типу II, величина экстинкции определяется размерами блоков и уравнения ГЗ уже нельзя применять в качестве уравнений переноса, так же как и в промежуточных ситуациях, когда кристалл принадлежит к смешанному типу. Если $\sin 2\theta$ очень мал, то кристалл не может быть только типа I, но в этом случае $\rho_1 = \rho_2$, т.е. $a_G = 1$, $\nu_{1G} = \nu_{2G} = 1$, $\delta_{1G} = \delta_{2G} = 0$, и, хотя кристалл смешанного типа, уравнения переноса остаются ГЗ-уравнениями. Таким образом, всегда, когда произведение $(\delta_1 \delta_2)_G$ близко к нулю, уравнения ГЗ справедливы, и теория Беккера-Копенса дает правильную величину коэффициента экстинкции. Этот параметр непосредственно можно получить из /14/ и /17в/:

$$(\delta_1 \delta_2)_G = g_G^2 \frac{g_G^2 \sin^2 2\theta' + c_0^2 \sin^2 2\theta (\rho_1^2 + \rho_2^2 - 2\rho_1 \rho_2 \cos 2\theta') / \lambda^2}{(g_G^2 + c_0^2 \rho_1^2 \sin^2 2\theta / \lambda^2) (g_G^2 + c_0^2 \rho_2^2 \sin^2 2\theta / \lambda^2)}. \quad /18/$$

Имея G_i и Z_i , можно вычислить функции $V_{nm}(\Gamma_2)^{1/}$. Если уравнения /1.38/ решать, начиная с $n=0$, то после нескольких итераций можно заметить, что $V_{nm}(\Gamma_2)$ является суммой $\binom{n}{m}$ гауссианов, каждый из которых имеет множитель $a_{1G}^m a_{2G}^{n-m+1}$. Для кристалла типа I все слагаемые в $V_{nm}(\Gamma_2)$ идентичны и поэтому

$$V_{nm}(\Gamma_2) = \binom{n}{m} W^{n-1}(\Gamma_2) = \binom{n}{m} g_G^2 \exp[-\pi(n+1)g_G^2 \Gamma_2^2]. \quad /19/$$

Однако в общем случае получить точное выражение для V_{nm} не удастся. С другой стороны, точный вид функции $V_{nm}(\Gamma_2)$ и не требуется, а нужно знать лишь интегралы от них по Γ_2 , и по аналогии с /19/ можно принять следующее выражение, аппроксимирующее эти функции:

$$V_{nm}(\Gamma_2) = \binom{n}{m} a_{1G}^m a_{2G}^{n-m+1} p_{nm} \exp[-\pi(n+1)a_{2G}^2 (p_{nm}/\nu_{nm})^2 \Gamma_2^2]. \quad /20/$$

Подставляя /20/ в /1.38/ и оставляя только: а/ амплитуду и площадь или б/ амплитуду и второй момент, получим два связанных рекуррентных соотношения для коэффициентов p_{nm} и ν_{nm} . Эти соотношения зависят только от одного параметра $(\delta_1 \delta_2)_G$ и могут быть решены численно. Интересующими нас величинами являются

v_{nm} /определяющие площадь под кривыми $V_{nm}(\Gamma_2)$ /, которые связаны условиями $v_{nm} = v_{n, n-m}$ и $v_{nm} \leq 1$, причем равенство выполняется только для $m = 0$ и $m = n$ /и всегда, если $\delta_1 \delta_2 = 0$ /. При выполнении условий а/ коэффициенты переоцениваются и, наоборот, недооцениваются, если выполняются условия б/. На рис.1 представлены некоторые v_{nm} , вычисленные при $(\delta_1 \delta_2)_G = 1$.

При учете приближения /20/, коэффициент экстинкции /1.37/ записывается в виде

$$y = \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n (Q a_G)^n t^{(n)} / [n!(n+1)^{1/2}], \quad /21a/$$

$$t^{(n)} = [VA(\mu)]^{-1} \int_V dV \exp[-\mu(t_1 + t_2)] \sum_{m=0}^n \binom{n}{m}^2 v_{nm} t_1^m (a_G t_2)^{n-m}. \quad /21б/$$

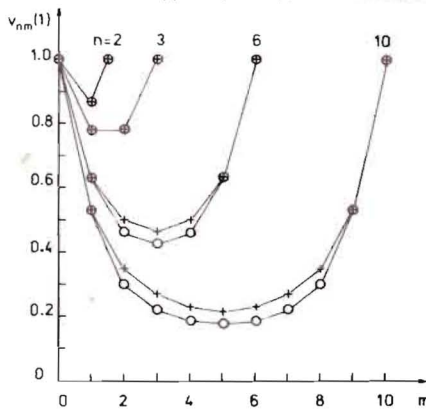
Эта формула отличается от найденной Беккером и Копенсом /формула (BC51) /2/ / коэффициентами v_{nm} и a_G в $t^{(n)}$. Коэффициенты a_G появляются в /21/ при $n \geq 1$, т.е. от них зависит "параметр экстинкции", который так же как в /2/ (опущен только коэффициент 2/3) определим как

$$x = Q a_G \frac{1}{t^{(1)}}, \quad /22/$$

причем $t^{(1)}$ здесь представляет собой средний путь в кристалле /или в мозаичном блоке, если V в /21б/ заменено на v ./, но только в том случае, если $a_G = 1$. Коэффициенты v_{nm} появляются в /21/ только для $n \geq 2$ и, соответственно, можно ожидать, что они дают меньшую поправку к формулам Беккера и Копенса по сравнению с a_G . Для оценки поправки коэффициент экстинкции y был вычислен прямым суммированием /21/ для кристалла, имеющего форму параллелепипеда с гранями, ориентированными вдоль x_1, x_2, x_3 с $\mu = 0$ и $a_G = 1$. В этом случае интеграл по объему в /21б/ берется, а v_{nm} были рассчитаны численно для $(\delta_1 \delta_2)_G = 0; 0,4; 0,7; 1,0$ и $n \leq 60$. Для таких n суммирование в /21а/ можно проделать с точностью до трех десятичных знаков в области $0 \leq x \leq 5,7$

/у $\geq 0,2$ /. Результаты суммирования, полученные с недооценкой и переоценкой v_{nm} , отличались друг от друга не более чем на 1,1%, и можно использовать среднюю величину. Вычисленные таким способом величины y/x меняются с шагом 0,1/ были использованы для определения коэффициентов в эмпирической формуле

Рис.1. Набор коэффициентов v_{nm} , вычисленных при $(\delta_1 \delta_2)_G = 1$. /+/- v_{nm} переоценено, /о/- v_{nm} недооценено.



$$y(x, \delta_1 \delta_2) = y_0(x) \left[1 - \delta_1 \delta_2 \frac{A_0 x^{C_0}}{1 + B_0 x^{C_0}} \right], \quad /23/$$

где $y_0(x) = y(x, 0)$. Было получено: $A_0 = 0,02, B_0 = 0,26, C_0 = 1,5$, причем R-фактор $(\sum |y_c - y(x, \delta_1 \delta_2)| / \sum y_c)$ был равен 0,008. Для $x \leq 30$ максимальное отклонение $y(x, 1)$ от $y_0(x)$ составляет только 7%. Это объясняет, почему БК-формула дает хорошие результаты во многих случаях.

Для кристаллов с $\mu \neq 0$, $a \neq 1$ с другой формой или другим мозаичным распределением следует ожидать небольших изменений A_0, B_0 и C_0 . Но принимая во внимание то, что сама поправка /23/ мала, этими изменениями можно пренебречь. Можно считать, что /23/ справедливо и в общем случае, и, чтобы получить окончательное решение, следует найти $y_0(x)$, положив $v_{nm} = 1$ в /21б/. Для этого можно использовать равенство

$$\sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^n}{n!} c^n \sum_{m=0}^n \binom{n}{m}^2 u^m v^{n-m} = \exp[-c(u+v)] I_0(2c\sqrt{uv}), \quad /24/$$

где I_0 - модифицированная функция Бесселя. Следовательно,

$$y_0(x) = [Q VA(\mu)]^{-1} \int_V dV \exp[-\mu(t_1 + t_2)] \cdot \int_{-\infty}^{\infty} d\gamma \sigma_1^{-1}(\gamma) \exp[-\sigma_1^{-1}(\gamma)(t_1 + a t_2)] I_0[2\sigma_1^{-1}(\gamma)(a t_1 t_2)^{1/2}]. \quad /25/$$

Это выражение справедливо для любых мозаичных распределений, приводящих к функциям $V_{nm}(\Gamma_2)$, в которые величина $a_1^m a_2^{n-m+1}$ входит как множитель.

Существует мнение /см., например, /3/, что при учете вторичной экстинкции более адекватно описывать мозаичное распределение функцией Лоренца, а не гауссианом. Однако необходимо заметить, что трехмерное распределение Лоренца ненормировано и поэтому не может быть физическим распределением. В качестве мозаичного распределения, имеющего крылья, более полого спадающие, чем у гауссиана, можно взять функцию

$$W(\vec{\Delta}) = 2\pi g_1 g_2 g_3 / [1 + \beta_0 (\sum_i g_i^2 \Delta_i^2)^m]; \quad m \geq 2, \quad /26/$$

где $\beta_0(m)$ определяется условием нормировки. Полагая $m = 2$, получаем $\beta_0 = 4\pi^4$ и $w_i = \sqrt{2}/(\pi g_i) = 0,45/g_i$. Для одномерного мозаичного распределения в этом случае получаем

$$W(\epsilon_3) = \pi(g'_L/2) [1 - (2/\pi) \arctg 2\pi^2 g'_L \epsilon_3^2], \quad /27/$$

где g'_L выражается точно так же, как g_G . Асимптотически $W(\epsilon_3) \sim \epsilon_3^{-2}$, т.е. функция Лоренца, хорошо аппроксимирует /27/:

$$W(\epsilon_3) = g_L / (1 + \pi^2 g_L^2 \epsilon_3^2); \quad g_L = \pi g'_L / 2. \quad /28/$$

Это единственный аргумент для сохранения имени "лоренцево" у распределения /26/. Чтобы получить $G_i(\Gamma_i)$ теперь достаточно /т.к. /23/ предполагается справедливым/ вычислить свертку функции /28/ и сечение совершенного блока $\sigma_i(\Gamma_i)$ (см. приложение А, формула /А.14/). Для упрощения выкладок сечение также можно аппроксимировать функцией Лоренца и это приводит к следующему выражению для G_i :

$$G_i(\Gamma_i) = a_{iL} / (1 + \pi^2 a_{iL}^2 \Gamma_i^2); \quad (i = 1, 2) \quad /29/$$

$$a_{iL} = \frac{1,5 g_L \rho_j \sin 2\theta / \lambda}{g_L + 1,5 \rho_j \sin 2\theta / \lambda}; \quad (i \neq j = 1, 2). \quad /30/$$

Параметр анизотропии размеров блока теперь есть

$$a_L = \frac{a_{2L}}{a_{1L}} = \frac{\rho_1 g_L + 1,5 \rho_2 \sin 2\theta / \lambda}{\rho_2 g_L + 1,5 \rho_1 \sin 2\theta / \lambda}, \quad /31/$$

а вместо /18/ получаем

$$(\delta_1 \delta_2)_L = g_L \frac{g_L \sin 2\theta' + 1,5 \sin 2\theta (\rho_1^2 + \rho_2^2 - 2\rho_1 \rho_2 \cos 2\theta')^{1/2} / \lambda}{(g_L + 1,5 \rho_1 \sin 2\theta / \lambda)(g_L + 1,5 \rho_2 \sin 2\theta / \lambda)}. \quad /32/$$

Можно предвидеть, что если кристалл близок к типу II, то вариант Гауссова распределения для мозаичности менее удовлетворителен, т.к. $\sigma_1(\Gamma_1)$ практически равно $\sigma_i(\Gamma_i)$, лишь грубо аппроксимируется гауссианом.

2. ПРИЛОЖЕНИЕ К КРИСТАЛЛАМ СФЕРИЧЕСКОЙ И ЭЛЛИПСОИДАЛЬНОЙ ФОРМЫ

Для прецизионного определения структуры дифракционные данные набираются на кристаллах сферической формы, поскольку именно для сферы учет поглощения и экстинкции относительно легок. Если кристалл имеет форму полиэдра, то при расчете экстинкции его можно аппроксимировать эллипсоидом. Обозначим ρ_{10} и ρ_{20} - радиусы эллипсоида вдоль i_1 и i_2 и преобразуем его в сферу единичного радиуса / θ при этом переходит в θ' /, тогда /33/ и /35/ преобразуются в

$$x = Q \sqrt{a_1 a_2 \rho_{10} \rho_{20}} \cdot t'(a_0, a_e),$$

$$y_0 = 3[4\pi A(\zeta, a_0)]^{-1} \int_{-\infty}^{\infty} \int d\gamma \phi(\gamma) \int dV' \exp[-\zeta(t_1' \sqrt{a_0} + t_2' / \sqrt{a_0})]. \quad /33/$$

$$\cdot \exp\left[x \phi(\gamma) \frac{t_1' \sqrt{a_e} + t_2' / \sqrt{a_e}}{t'(a_0, a_e)}\right] I_0\left[2x \phi(\gamma) \frac{\sqrt{t_1' t_2'}}{t'(a_0, a_e)}\right], \quad /34/$$

где S_1 - означает сферу единичного радиуса,

$$\zeta = \mu \sqrt{\rho_{10} \rho_{20}}; \quad A(\zeta, a_0) = 3(4\pi)^{-1} \int_{S_1} dV' \exp[-\zeta(t_1' \sqrt{a_0} + t_2' / \sqrt{a_0})], \quad /35a, б/$$

$$t'(a_0, a_e) = 3[4\pi A(\zeta, a_0)]^{-1} \int_{S_1} dV' (t_1' \sqrt{a_e} + t_2' / \sqrt{a_e}) \exp[-\zeta(t_1' \sqrt{a_0} + t_2' / \sqrt{a_0})]. \quad /36/$$

В этих формулах через $\phi(\gamma)$ обозначена функция $\exp(-\pi\gamma^2)$ или $(1 + \pi^2 \gamma^2)^{-1}$ и через a_0, a_e два параметра анизотропии

$$a_0 = \rho_{10} / \rho_{20}; \quad a_e = a_0 / a. \quad /37a, б/$$

Первое из соотношений /37/ дает анизотропию формы кристалла, второе связано с рассеянием и включает все виды анизотропии в кристалле - анизотропию мозаичности, формы блоков и формы кристалла. Поэтому a_e можно назвать эффективной анизотропией.

Для вычисления коэффициента экстинкции при уточнении структуры в программе для ЭВМ обычно используется эмпирическая формула, численно воспроизводящая точное выражение. Из /34/ видно, что y_0 содержит пять параметров: x, θ, ζ, a_0 и a_e , причем y_0 зависит от ζ, a_0 и a_e как явно, так и неявно через параметр x . Явная зависимость y_0 от ζ и a_0, a_e более слабая, чем неявная, и ею можно пренебречь при малых ζ и a_0, a_e , близких к 1. Если эти условия не выполнены, то аппроксимация будет очень приближенной. Кроме того, при вычислениях на малых ЭВМ поиск эмпирической формулы с пятью переменными представляется весьма затруднительным, т.к. требуется большая память и большое время счета, поэтому ниже рассматривается более простой случай зависимости только от 4 переменных.

Для сферического кристалла / $a_0 = 1$ / остается четыре параметра, коэффициент экстинкции y_0 был вычислен по формуле /34/ в 3864 точках в объеме: $0 \leq x \leq 30; 0,05 \leq \eta \leq 0,95; 0 \leq \zeta \leq 3$ и $1 \leq a \leq 5$; здесь $\eta = \sin \theta$. Для интегрирования использовался алгоритм Гаусса, обеспечивший точность расчета y_0 в три десятичных знака. Подгонка вычисленных значений по методу наименьших квадратов привела к следующей формуле:

$$y_0(x, \eta, \zeta, a) = y_{00}(x, \eta) \left(1 + \zeta \frac{A_2 x^{1,5}}{1 + B_2 x^{1,5}}\right) \left(1 - X^2 \frac{A_3 x}{1 + B_3 x} + X^4 \frac{C_3 x}{1 + D_3 x}\right),$$

где $\chi = \ln a$, коэффициенты A_2, \dots, D_3 являются полиномами η и ζ . Для $y_{00}(x, \eta)$ была сделана попытка использовать функцию, предложенную Беккером и Копенсом¹², но некоторые значения y_{00} получались при этом с ошибкой до 10%, хотя R-фактор /при подгонке только y_{00} / был хороший. Поэтому БК-формула была модифицирована следующим образом /для распределений Гаусса и Лоренца соответственно/:

$$y_{00}^{(G)}(x, \eta) = \left[1 + x \left(D_1 + \frac{A_1 x}{1 + B_1 x} + \frac{C_1}{C_1} \right) \right]^{-1/2}; \quad D_1 = \sqrt{2} \quad /39/$$

$$y_{00}^{(L)}(x, \eta) = \left[1 + x \left(D_1 + \frac{A_1 x}{1 + B_1 x} + \frac{C_1 x^2}{(1 + B_1 x)^2} \right) \right]^{-1/2}; \quad D_1 = 1, \quad /40/$$

коэффициенты A_1, B_1, C_1 - полиномы по η . Выражения для коэффициентов A_1, \dots, D_3 получались такими:

а/ распределение Гаусса

$$\begin{aligned} A_1 &= 0,721 + 0,12 \eta - 0,736 \eta^2 \\ B_1 &= 0,11 + 0,603 \eta - 0,709 \eta^2 \\ C_1 &= 1 - 0,505 \eta^2 \\ 10 A_2 &= 0,08 + 0,877 \eta - 0,577 \eta^2 - 0,068 \eta \zeta \\ B_2 &= 0,502 - 0,912 \eta - 0,15 \zeta + 0,734 \eta \zeta + 0,138 \eta \zeta + 0,021 \zeta^2 \\ 10 A_3 &= (0,298 - 0,038 \zeta) \eta^2 \\ B_3 &= -0,048 + 0,41 \eta - 0,346 \eta^2 \\ 100 C_3 &= (0,432 - 0,078 \zeta) \eta^2 \\ D_3 &= 0,203 - 0,21 \eta, \end{aligned} \quad /41/$$

б/ распределение Лоренца

$$\begin{aligned} A_1 &= 0,227 + 0,248 \eta - 0,54 \eta^2 \\ B_1 &= 0,784 - 0,351 \eta \\ C_1 &= 0,132 - 0,577 \eta + 0,379 \eta^2 \\ 10 A_2 &= 0,046 + 0,527 \eta - 0,336 \eta^2 - 0,042 \eta \zeta \\ B_2 &= 0,616 - 0,928 \eta - 0,166 \zeta + 0,713 \eta \zeta + 0,147 \eta \zeta + 0,023 \zeta^2 \\ 10 A_3 &= (0,178 - 0,02 \zeta) \eta^2 \\ B_3 &= -0,012 + 0,577 \eta - 0,539 \eta^2 \\ 100 C_3 &= (0,257 - 0,037 \zeta) \eta^2 \\ D_3 &= 0,489 - 0,493 \eta. \end{aligned} \quad /42/$$

R - фактор составил 0,0053 в первом и 0,0028 во втором случаях соответственно. Абсолютная точность вычислений такова, что $|\Delta y_0| < 4 \cdot 10^{-3}$, за исключением некоторых точек при больших η и a . Но как для больших, так и для малых углов рассеяния величины a и a_e близки к единице.

Если $\zeta = 0$, то найденная формула справедлива и для эллипсоидального кристалла, при условии замены η на $\eta'_0 = \sin \theta'_0$ и χ на $\chi_e = \ln a_e$. Для $\zeta \neq 0$ точность описания ухудшается, но фор-

мула /38/ все же дает правильные два десятичных знака для y_0 , если $a_0 < 5$.

В изложенной теории /так же как в теориях Захариазена и Беккера-Копенса/ учитываются и эффекты первичной экстинкции, но к этому следует относиться осторожно. Для определения эффекта первичной экстинкции нужно в формулах /33/-/36/ положить $\zeta = 0$, $\rho_{i0} = \rho_i$ и $\phi(\gamma) = \Phi_1(4\pi\gamma/3)$, где Φ_1 дается формулой /A.156/. Так как $a_e = 1$, то y_0 просто равен y_{00} и зависит от $\eta' = \sin \theta'$ и x_P , причем

$$x_P = (9/4)Q \rho_1 \rho_2 \sin 2\theta / \lambda. \quad /43/$$

В этом случае хорошее описание получается с помощью /40/, в которой надо положить $D_1 = 1,25714$ /как и выше, D_1 выбирается из условия равенства первых производных точного и аппроксимирующего выражений для y_0 в точке $x = 0$ /. Для остальных коэффициентов было получено:

$$\begin{aligned} A_1 &= 0,509 + 0,255 \eta' - 0,718 \eta'^2, \\ B_1 &= 0,139 + 0,436 \eta' - 0,166 \eta'^2, \\ C_1 &= -0,512 - 0,53 \eta'^2 \end{aligned} \quad /44/$$

Поправку к y_0 в формуле /23/ нужно рассчитать, положив $(\delta_1 \delta_2)_P = \sin^2 2\theta'$.

3. СРАВНЕНИЕ С ТЕОРИЕЙ БЕККЕРА - КОПЕНСА

Как было показано выше, отличия излагаемой теории от теории Беккера - Копенса проявляются только в том случае, когда кристалл не принадлежит к типу I. Следует различать ситуации, когда форму среднего мозаичного блока можно аппроксимировать сферой, и когда этого сделать нельзя. В первом случае отличия в коэффициенте экстинкции возникают только во втором десятичном знаке, в то время как анизотропия в форме блоков /2-й случай/ приводит к значительным как качественным, так и количественным различиям. В частности, во втором случае отличие от БК-теории проявляется в том, что коэффициент экстинкции становится инвариантным по отношению к перестановке направлений первичного и дифрагированного пучков. Это можно непосредственно видеть из формул /21/. Действительно, общий член суммы в /21/ пропорционален $a_1^{n_t(n)}$ и после инверсии путей он становится равным $a_2^{n_t(n)} / a^n = a_1^{n_t(n)}$ /принимая во внимание симметрию коэффициентов $v_{nm}^{(n)}$ и члена $\binom{n}{m}$ /. В БК-теории последнее равенство несправедливо, и для кристалла смешанного типа с анизотропией формы блоков коэффициент экстинкции является физически некорректным. Это обстоятельство было бы неважным, если бы количественные различия были малы. Ситуация поясняется на рис.2, где представлена величина $1/y_0$ для сферического кристалла

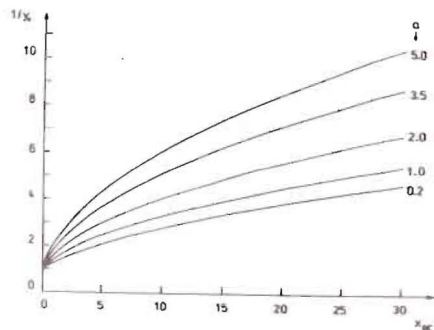


Рис.2. Зависимость y_0^{-1} от $x_{БК}$ для различных a , кристаллы сферической формы, $\theta = 45^\circ$, $\mu = 0$, распределение мозаичности по Лоренцу.

с $\mu = 0$ при $\theta = 45^\circ$ и для распределения мозаичных блоков по Лоренцу в зависимости от параметра x из БК-теории. В этом конкретном случае наше значение x и $x_{БК}$ связаны соотношением $x = x_{БК}(1+a)/2$. Для $a = 1$ кривая соответствует БК-теории. Видно, однако, что даже для умеренных отклонений a от 1 относительные разности достигают 40 - 50%. Для распределения мозаичных блоков по Гауссу отклонения становятся еще больше.

Таким образом, результаты, полученные в настоящей работе, являются практически важными и могут объяснить некоторые случаи неудачного учета экстинкции в кристаллах типа II или смешанного типа.

Автор благодарен А.М.Балагурову за поддержку, полезные обсуждения и помощь в подготовке текста статьи.

ПРИЛОЖЕНИЕ А. Кинематическое сечение рассеяния для совершенного блока эллипсоидальной формы

Рассмотрим эллипсоид с полуосями r_i , которые ориентированы вдоль единичных векторов \vec{c}_i ($i = 1, 2, 3$). Если эллипсоид преобразовать в сферу единичного радиуса (см. приложение Б), то интеграл в /1,3/ легко вычисляется, и для наиболее вероятного блока получаем

$$\sigma(\Gamma_1, \Gamma_2, \Gamma_3) = (4\pi/3) r_1 r_2 r_3 n^2 |F|^2 \Phi_3(\beta), \quad /A.1a/$$

$$\Phi_3(\beta) = 9(\sin \beta - \beta \cos \beta)^2 / \beta^6, \quad /A.16/$$

где $\vec{\beta} = \sum_i r_i h_i \vec{c}_i$. Принимая во внимание /1.7/, /7/ и преобразование /см. рис. 1.1/:

$$\vec{r}_i = (1 - \delta_{i3}) [(-1)^{i-1} \sin \theta \vec{n}_1 + \cos \theta \vec{n}_2] + \delta_{i3} \vec{n}_3; \quad (i = 1, 3) \quad /A.2/$$

для модуля β получим:

$$\beta = k_0 (\Gamma^* A \Gamma^*)^{1/2}, \quad /A.3/$$

где $\Gamma^* = (-\Gamma_1, \Gamma_2, \Gamma_3)$, $A = BVB'$, $/A.4a,6/$

$R_{ij} = r_i \delta_{ij}$, $/A.5a,6/$

δ_{ij} - символ Кронекера, B - матрица преобразования /A.2/. Для получения $\sigma(\Gamma_1, \Gamma_2)$ теперь необходимо проинтегрировать /A.1/ по Γ_3 . В принципе этот интеграл берется точно /формула/A.13//, но свертку результата и $W(\epsilon_3)$ аналитически получить нельзя. Поэтому лучше найти подходящую аппроксимацию для $\Phi_3(\beta)$ и затем вычислять интеграл по Γ_3 . Если $W(\epsilon_3)$ - гауссово распределение, то удобно выбрать

$$\Phi_3(\beta) \approx \exp[-c_0^2 \beta^2 / (4\pi)], \quad /A.6/$$

где $c_0 = 1,612 \approx 5/3$ определяется из условия нормировки для $\sigma(\Gamma_1, \Gamma_2, \Gamma_3)$. В этом случае интегрирование по Γ_3 дает гауссиан, аргумент которого пропорционален

$$\omega = \left[\sum_{i,j=1}^2 (A_{ij} A_{33} - A_{i3} A_{j3}) \Gamma_i^* \Gamma_j^* / A_{33} \right]^{1/2}. \quad /A.7/$$

Принимая во внимание /A.4б/, $/A.8/$

$$A_{ij} A_{33} - A_{i3} A_{j3} = |P| [\cos^2 \theta P_{11}^{-1} + (-1)^{1+\delta_{ij}} \sin^2 \theta P_{22}^{-1} + (-1)^i \delta_{ij} \sin 2\theta P_{12}^{-1}].$$

Обратные величины P^{-1} легко получаются из /A.5a/; заменяя их в /A.8/ и сравнивая с /9/ и /10/, запишем

$$A_{ij} A_{33} - A_{i3} A_{j3} = |P| \cos(1 - \delta_{ij}) 2\theta' / (\rho_1 \rho_2). \quad /A.9/$$

С другой стороны,

$$A_{33} = P_{33} = |P| [P_{11}^{-1} P_{22}^{-1} - (P_{12}^{-1})^2] = |P| \sin^2 2\theta' / (\rho_1^2 \rho_2^2 \sin^2 2\theta). \quad /A.10/$$

В результате

$$\omega = (\sin 2\theta / \sin 2\theta') (\rho_2^2 \Gamma_1^2 + \rho_1^2 \Gamma_2^2 - 2\rho_1 \rho_2 \cos 2\theta' \Gamma_1 \Gamma_2)^{1/2}, \quad /A.11/$$

$$\sigma(\Gamma_1, \Gamma_2) = 4\pi \sin 2\theta / (3c_0 \sin 2\theta') n^2 |F|^2 \lambda \rho_1 \rho_2 \exp(-\pi c_0^2 \omega^2 / \lambda^2). \quad /A.12/$$

Точное выражение для $\sigma(\Gamma_1, \Gamma_2)$ есть /выкладки опущены/:

$$\sigma(\Gamma_1, \Gamma_2) = 4\pi \sin 2\theta / (5 \sin 2\theta') n^2 |F|^2 \lambda \rho_1 \rho_2 \Phi_2(2\pi\omega/\lambda), \quad /A.13a/$$

$$\Phi_2(x) = 15 \sum_{k=0}^{\infty} (-1)^k x^{2k} / [(2k+3)(2k+5)k!(k+1)!]. \quad /A.13b/$$

Интегрирование /A.12/ по Γ_2 дает

$$\sigma_{11}(\Gamma_1) = Q(c_0/\lambda) \rho_2 \sin 2\theta \exp[-\pi(c_0^2/\lambda^2) \rho_2^2 \sin^2 2\theta \Gamma_1^2], \quad /A.14/$$

в то время как точное выражение есть^{/2,4/}

$$\sigma_{11}(\Gamma_1) = 3Q/(2\lambda) \rho_2 \sin 2\theta \Phi_1 \{ (2\pi/\lambda) \rho_2 \sin 2\theta \Gamma_1 \}, \quad /A.15a/$$

$$\Phi_1(x) = (x^2 - x \sin 2x + \sin^2 x) / x^4. \quad /A.156/$$

Аппроксимация /A.156/ с помощью функции Лоренца /что требуется в п.1/ дает

$$\Phi_1(x) \approx (1 + 9x^2/16)^{-1}. \quad /A.16/$$

Для $\sigma_2(\Gamma_2)$ получается такое же выражение, но вместо ρ_2 стоит ρ_1 .

ПРИЛОЖЕНИЕ Б. Преобразование эллипсоида в сферу единичного радиуса

Здесь приведены некоторые математические соотношения, используемые в тексте /см. также /4/. Уравнение поверхности эллипсоида в системе координат (\vec{c}_i) , совпадающей с направлениями его

полуосей есть $\sum_i z_i^2 / \Gamma_i^2 = 1$. Если произведено преобразование

$z_i = \Gamma_i z'_i$, то уравнение переходит в $\sum_i z_i'^2 = 1$, т.е. представляет сферу единичного радиуса. Но это преобразование переводит произвольный единичный вектор $\vec{u} = \sum_i u_i \vec{c}_i$ в вектор $\vec{U}' = \sum_i U_i' \vec{c}_i = \sum_i u_i \vec{c}_i / \Gamma_i$.

Если ρ_u - радиус эллипсоида вдоль \vec{u} , то вектор $\rho_u \vec{u}$ преобразуется в $\vec{u}' = \rho_u \vec{U}'$ с длиной, равной единице. Таким образом, можно написать

$$1/\rho_u^2 = \sum_i u_i^2 / \Gamma_i^2. \quad /B.1/$$

Пусть теперь \vec{u} и \vec{v} - два единичных вектора, а ϕ - угол между ними. После преобразования ϕ переходит в угол ϕ' , который определяется из равенства

$$\cos \phi' = \vec{u}' \cdot \vec{v}' = \rho_u \rho_v \sum_i u_i v_i / \Gamma_i^2. \quad /B.2/$$

Наконец, если t есть отрезок прямой, лежащей в направлении \vec{u} , то вектор $t\vec{u}$ переходит в $t\vec{U}' = t|\vec{U}'|\vec{u}' = t'\vec{u}'$. Т.е. для t' получаем

$$t' = t/\rho_u. \quad /B.3/$$

ЛИТЕРАТУРА

1. Попа Н. ОИЯИ, P14-85-423, Дубна, 1985.
2. Becker P.J., Coppens P. Acta Cryst., 1974, A30, p.129.
3. Becker P.J., Coppens P. Acta Cryst., 1974, A30, p.148.
4. Becker P.J., Coppens P. Acta Cryst., 1975, A31, p.417.

Рукопись поступила в издательский отдел
19 июля 1985 года

Попа Н.

P14-85-556

Экстинкция в кристаллах с заданной формой и мозаичным распределением

Общие формулы для учета вторичной экстинкции, полученные ранее в рамках теории переноса, конкретизируются для двух возможных мозаичных распределений. В сравнении с предыдущими работами полученный результат отличается по двум параметрам. Один из параметров дает вклад, не превышающий 7%, тогда как по второму параметру различия могут достигать 50%. Для кристаллов сферической и эллипсоидальной формы найдены эмпирические формулы, которые могут быть использованы в вычислительных программах при уточнении структуры кристалла.

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1985

Перевод О.С.Виноградовой

Попа Н.

P14-85-556

Extinction in Crystals with a Given Shape and Mosaic Distribution

The general formula of the secondary extinction factor obtained in a previous paper in the frame of the transport theory is particularized for two possible mosaic distributions. The result differs from that already existing in literature by two parameters. One parameter has a contribution not greater than 7% but the second one gives differences up to 50%. For spherical and ellipsoidal crystals an empirical formula is found which can be used in the structure refinement computer programs.

The investigation has been performed at the Laboratory of Neutron Physics, JINR.

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1985