

**МАТЕМАТИЧКА ГИМНАЗИЈА**

# **МАТУРСКИ РАД**

**из физике**

## **ОСОБИНЕ ИНТЕРФЕРЕНЦИОНЕ СЛИКЕ РАСЕЈАНИХ РЕНДГЕНСКИХ ЗРАКА СА ИДЕАЛНЕ КРИСТАЛНЕ РЕШЕТКЕ**

**Ученик:**

**Петар Митрић, 4а**

**Ментор:**

**Јовица Милисављевић**

**Београд, јун 2014.**

## Садржај

1. Увод .....	3
2. Интерференциона Лауеова функција .....	3
3. Анализа интерференционих функција .....	7
4. Реципрочна решетка .....	11
5. Представљање интерференционе функције у реципрочном простору. Интерференциона једначина и њена графичка интерпретација .....	14
6. Рендгенски дифракциони експеримент на монокристалним плочицама силицијума ...	16
7. Закључак .....	19
8. Литература.....	20

## 1. Увод

Рендгенски зраци се, пролазећи кроз кристалну средину, расејавају на атомима. Расејање се одвија на атомском електронском облаку који постаје извор сферних таласа рендгенског зрачења. Интерференција тих зрака доводи до настанка дифракционе слике чији је интензитет и геометријски распоред максимума одређен атомском структуром кристала. За истраживање ове врсте потребно је развити теорију интерференције рендгенских зрака и у овом раду изложићемо само њене основне појмове. У том циљу размотрићемо веома поједностављен модел кристалне средине али ћемо са друге стране настојати да изведемо детаљно и математички строго одређивање геометрије интерференционе слике.

Наш поједностављени модел дифракције на кристалу узима у обзир следеће претпоставке:

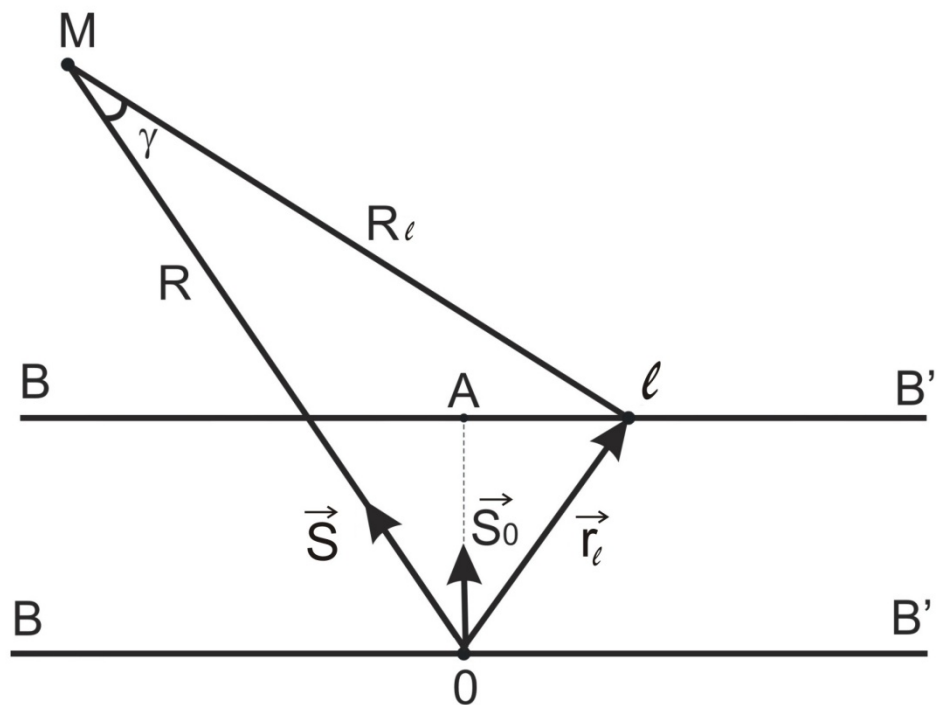
1. Упадни рендгенски зраци су строго паралелни и строго монохроматски.
2. Кристална решетка је примитивна што значи да на једну елементарну кристалну ћелију долази само један чвор кристалне решетке.
3. Електрони који припадају атомима кристала су концентрисани у геометријску тачку која представља чвор кристалне решетке (другим речима занемарене су димензије атома).
4. Атоми кристала су непокретни (занемарујемо топлотне осцилације атома око њихових равнотежних положаја у кристалној решети).
5. Апсорпција рендгенских зрака у кристалу је потпуно занемарена.
6. Кристал има идеалну грађу (отсуство сваке мозаичност), то јест постоји строга трансляциона симетрија.
7. Дифрактовани таласи не интерагују са упадним таласима.

Указане претпоставке не уносе промене на израчунату геометрију распореда дифракционих максимума, али значајно утичу на њихов интензитет. Овај рад је и схваћен као увод у теорију дифракције рендгенског зрачења на кристалима са могућношћу да се касније постепено одбацују направљене претпоставке и израчунају различити чиниоци интензитета урачунавајући утицаје горе наведених фактора. Треба још напоменути да се теорија која не израчунава интеракције између примарних и расејаних таласа назива кинематичка за разлику од динамичке теорије која ову интеракцију урачунава.

## 2. Интерференциона Лауеова функција

Претпоставимо да кристал има форму паралелопипеда са размерама ивица  $L_1 = N_1 a_1$ ,  $L_2 = N_2 a_2$ ,  $L_3 = N_3 a_3$ , где  $N_1$ ,  $N_2$  и  $N_3$  представљају бројеве чворова (или елементарних ћелија) дуж главних кристалних праваца (оса), док  $a_1$ ,  $a_2$  и  $a_3$  представљају дужине елементарних трансляција дуж тих праваца. Тада је број чворова то јест центара расејања једнак  $N = N_1 \cdot N_2 \cdot N_3$ .

Нека на кристал пада раван електромагнетни талас рендгенског зрачења. Под дејством тог таласа електрони атома ( за које сматрамо да су сконцентрисани у чворовима кристалне решетке) долазе у осцилаторно кретање. Као резултат тога осцилаторног кретања електрони постају извор сферних таласа чија је таласна дужина поклапа са таласном дужином примарног зрачења. Таласи израчени различитим атомима интерферирају: гасе један другог у појединим правцима, а појачавају у другим.



Слика 1. Интерференција равног таласа рендгенског зрачења

Нађимо интензитет рендгенског зрачења расејаних у произвољним правцима. Нека је  $BB'$  линија таласног фронта равног таласа примарног зрака (слика 1.) чија је амплитуда  $A_0$ , фреквенција  $\nu$ ,  $\vec{s}_0$  јединични вектор нормале на таласни фронт,  $\vec{r}_l$  радијус вектор постављен између нултог чвора кристалне решетке који смо означили са  $O$  до произвољног чвора који смо означили са  $l$ .

Вектор  $\vec{r}_l$  одређен је преко вектора елементарних translација са релацијом:

$$\vec{r}_l = l_1 \vec{a}_1 + l_2 \vec{a}_2 + l_3 \vec{a}_3 \quad (1)$$

где су  $\vec{a}_1, \vec{a}_2$  и  $\vec{a}_3$  вектори елементарних translација, док су  $l_1, l_2$  и  $l_3$  цели бројеви који уједно и индексирају чворове кристалне решетке.

Једначину упадног таласа у тачки  $O$  можемо представити у облику равног таласа:

$$E_0 = A_0 \exp(i\omega t), \quad (2)$$

где је  $E_0$  јачина електричног поља у тачки  $O$ ,  $A_0$  амплитуда таласа у тој тачки;  $\omega = 2\pi\nu$  кружна фреквенција и  $t$  је време. Као што се види из релације (2), без губитка општости, изабрали смо да је у тренутку  $t = 0$  фаза таласа у тачки  $O$  једнака нули.

У чвору  $l$ , одређеним вектором  $\vec{r}_l$  талас долази са кашњењем које налазимо по разлици оптичког пута  $D$ . Фазно кашњење у тачки  $l$  биће  $\varphi = (2\pi/\lambda)D = kD$ , где је  $k = 2\pi/\lambda$ . Са слике 1 се уочава да је:

$$D = OA = |\vec{r}_l| \cos \widehat{\vec{r}_l \vec{s}_0} = (\vec{r}_l \circ \vec{s}_0). \quad (3)$$

Тада је

$$\varphi = k \cdot (\vec{r}_l \circ \vec{s}_0). \quad (4)$$

У складу са нашим претпоставкама да су упадни зраци строго паралелни и да апсорпција одсуствује једначина таласа ће у тачки  $l$  бити одређена изразом

$$E_l = A_0 \exp\{i[\omega t - k \cdot (\vec{r}_l \circ \vec{s}_0)]\}. \quad (5)$$

Тада ће једначина таласа расејаног чвором  $l$  у некој удаљеној тачки  $M$  имати облик

$$E_M = \left(\frac{\Phi}{R_l}\right) A_0 \exp\{i[\omega t - k \cdot (\vec{r}_l \circ \vec{s}_0) - kR_l]\}, \quad (6)$$

где је  $E_M$  јачина електричног поља таласа у тачки  $M$ ;  $R_l$  је растојање од те тачке до чвора  $l$ ;  $\Phi$  је расејавајућа способност атома; члан  $kR_l$  израчунава кашњење таласа при преласку растојања  $R_l$ . Појава  $R_l$  у имениоцу условена је тиме што расејани зраци нису паралелни и према томе је њихова амплитуда обрнуто пропорционална растојању од центра расејања.

Означимо јединични вектор у правцу  $OM$  са  $\vec{s}$ , а растојање међу указаним тачкама са  $R$ . У имениоцу једначине (6)  $R_l$  можемо заменити са  $R$  јер ће услед малих размера кристала који се користе за рендгенска истраживања ова растојања од произвољног чвора до тачке  $M$  бити значајно већа од растојања међу чворовима. Зато сва растојања између чворова и тачке  $M$  можемо сматрати једнаким. Са друге стране овакву замену ипак не можемо извести у експоненту израза (6) јер се  $R_l$  разликује за величину која је упоредљива са таласном дужином.

Са тачношћу до инфинитезималне величине другог реда можемо ставити  $R_l = R - (\vec{r}_l \circ \vec{s})$ . Заиста на слици 1 се види да је  $R = (\vec{r}_l \circ \vec{s}) + R_l \cos \gamma$ . Али како је  $\gamma \simeq 1 - \frac{\gamma^2}{2}$  тада због мале вредности  $\gamma$  можемо сматрати да је  $\cos \gamma \simeq 1$ ; зато је:

$$R_l \simeq R - (\vec{r}_l \circ \vec{s}). \quad (7)$$

После стављања (7) у једначину (6) и једноставне трансформације добијамо израз:

$$\frac{E_M}{A_0} = \left(\frac{\Phi}{R}\right) \exp\{i[\omega t - kR + k \cdot (\vec{r}_l, \vec{s}_0 - \vec{s})]\}, \quad (8)$$

За израчунавање амплитуде  $Z$ , посматране у тачки  $M$ , која настаје као резултат расејања са свих атома кристала, неопходно је просумирати вредност  $E_M$  по свим чворовима  $l$ . У склад са претпоставком да сви атоми расејавају зраке једнако, то јест да се кристал састоји од једнаких атома, добијамо израз:

$$Z = \sum_l \left( \frac{E_M}{A_0} \right)_l = \left( \frac{\Phi}{R} \right) \sum_l \exp\{i[\omega t - kR + k \cdot (\vec{r}_l, \vec{s}_0 - \vec{s})]\}. \quad (9)$$

Урачунавајући дефиницију (1) добијамо:

$$\begin{aligned} Z &= \left( \frac{\Phi}{R} \right) \exp[i(\omega t - kR)] \cdot \sum_{l_1} \exp[ikl_1(\vec{a}_1, \vec{s} - \vec{s}_0)] \cdot \\ &\sum_{l_2} \exp[ikl_2(\vec{a}_2, \vec{s} - \vec{s}_0)] \cdot \sum_{l_3} \exp[ikl_3(\vec{a}_3, \vec{s} - \vec{s}_0)] = \\ &\left( \frac{\Phi}{R} \right) \exp[i(\omega t - kR)] \prod_{j=1,2,3} \sum_{l_j} \exp[ikl_j(\vec{a}_j, \vec{s} - \vec{s}_0)]. \end{aligned}$$

Уведимо ознаку  $A_j = k \cdot (\vec{a}_j, \vec{s} - \vec{s}_0)$ . Тада можемо претходни израз записати у облику:

$$Z = \left( \frac{\Phi}{R} \right) \exp[i(\omega t - kR)] \cdot \prod_{j=1,2,3} \sum_{l_j=0}^{N_j-1} \exp(il_j A_j), \quad (10)$$

где је  $N_j$  број чворова по  $j$ -тој координатној оси укључујући и чвор који се налази у координатном почетку.

Као што је познато експериментално ми не можемо измерити амплитуду  $Z$  већ интензитет зрачења  $I$ . Релативни интензитет зрачења  $I$  расејаног кристалом у правцу  $M$ , представља квадрат амплитуде  $Z$ , који може бити добијен множењем  $Z$  његовом комплексно коњугованом величином  $Z^*$ :

$$\begin{aligned} I &= |Z^2| = Z \cdot Z^* = \\ &= \left( \frac{\Phi^2}{R^2} \right) \left( \prod_{j=1,2,3} \left| \sum_{l_j=0}^{N_j-1} \exp(il_j A_j) \right| \right)^2 |\exp[i(\omega t - kR)]|^2. \end{aligned} \quad (11)$$

Развимо израз:

$$|\exp[i(\omega t - kR)]|^2 = \exp[i(\omega t - kR)] \exp[-i(\omega t - kR)] = 1:$$

члан  $\sum_{l_j} e^{il_j A_j}$  је геометријска прогресија типа  $a, aq, aq^2, \dots, aq^{n-1}$ . У датом случају је  $a = 1, q = \exp(iA_j), n = N_j$ . Сума геометријске прогресије је:

$$S = a(q^n - 1)/(q - 1).$$

Зато је у нашем случају

$$S = \sum_{l_j=0}^{N_j-1} \exp(il_j A_j) = \frac{\exp(iN_j A_j) - 1}{\exp(iA_j) - 1} \quad (12)$$

Трансформишимо тај израз по формули:

$$\begin{aligned} [\exp(ix) - 1][\exp(-ix) - 1] &= 1 - \exp(ix) - \exp(-ix) + 1 = \\ &= 2(1 - \cos x) = 4 \sin^2(x/2). \end{aligned}$$

Тада је

$$\left| \sum_{l_j=0}^{N_j-1} \exp(il_j A_j) \right|^2 = \frac{\sin^2\left(\frac{N_j A_j}{2}\right)}{\sin^2\left(\frac{A_j}{2}\right)}. \quad (13)$$

Поставивши добијени резултат у једначину (11) налазимо

$$I = \left(\frac{\Phi^2}{R^2}\right) \prod_{j=1,2,3} \frac{\sin^2(N_j A_j/2)}{\sin^2(A_j/2)} = \left(\frac{\Phi^2}{R^2}\right) \varphi(A_1 A_2 A_3), \quad (14)$$

где се  $\varphi(A_1 A_2 A_3)$  назива Лауеова интерференциона функција.

Математичка анализа интерференционих функција омогићава да се одреди правац интерференционих максимума у односу на кристалну решетку.

### 3. Анализа интерференционих функција

Нађимо вредности које може узимати интерференциона функција  $\varphi(A_1 A_2 A_3)$  за различите вредности  $A_1$ ,  $A_2$  и  $A_3$  посматравши појединачно произвољни од чинилаца у изразу (14).

За  $x = A_j/2 = \pi H_j$  ( $H_j$  је цео број или нула) чинилац  $\frac{\sin^2(N_j x)}{\sin^2 x}$  достиже максималну вредност једнаку  $N_j^2$ . Последње представља одређивање неодређености  $0/0$  двоструком применом Лопиталовог правила. Одавде следи да се интензитет главног максимума одређује изразом

$$I_{max} = \left(\frac{\Phi^2}{R^2}\right) N_1^2 N_2^2 N_3^2. \quad (15)$$

Одредимо сада и правце главних максимума. Сетимо се како смо раније увели ознаку  $A_j = k \cdot (\vec{a}_j, \vec{s} - \vec{s}_0)$ . Узевши у обзир да је услов егзистенције главног максимума једнакост  $A_j = 2\pi H_j$ , можемо записати следеће три једначине:

$$\left. \begin{aligned} A_1 &= k \cdot (\vec{a}_1, \vec{s} - \vec{s}_0) = 2\pi H; \\ A_2 &= k \cdot (\vec{a}_2, \vec{s} - \vec{s}_0) = 2\pi K; \\ A_3 &= k \cdot (\vec{a}_3, \vec{s} - \vec{s}_0) = 2\pi L, \end{aligned} \right\} \quad (16)$$

где су  $H$ ,  $K$  и  $L$  цели бројеви који могу имати целобројни множилац. Како је  $k = 2\pi/\lambda$  горње једначине, познате као Лауеове једначине, можемо другачије записати у облику

$$\left. \begin{aligned} (\vec{a}_1, \vec{s} - \vec{s}_0) &= H\lambda; \\ (\vec{a}_2, \vec{s} - \vec{s}_0) &= K\lambda; \\ (\vec{a}_3, \vec{s} - \vec{s}_0) &= L\lambda; \end{aligned} \right\} \quad (17)$$

где се цели бројеви  $H$ ,  $K$  и  $L$  називају индекси интерференције. Лауеове једначине су далеко више препознатљиве и применљивије када се запишу у тригонометријском облику:

$$\left. \begin{aligned} a_1(\cos \alpha - \cos \alpha_0) &= H\lambda ; \\ a_2(\cos \beta - \cos \beta_0) &= K\lambda ; \\ a_3(\cos \gamma - \cos \gamma_0) &= L\lambda , \end{aligned} \right\} \quad (18)$$

где су  $\alpha_0, \beta_0, \gamma_0$  и  $\alpha, \beta, \gamma$  углови примарног односно дифрактованог зрака у односу на координатне осе. Очеидно да свака од једначина представља једначину конуса а њихово коначно решење одговара пресеку три конуса по заједничкој генератриси.

За вредности  $x = \pm \pi/N_j$  односно за  $A_j = \pm 2\pi/N_j$  налазе се прве нулте вредност функције  $\frac{\sin^2(N_j x)}{\sin^2 x}$ . Зато је ширина максимума тих функција једнака

$$\Delta x = \frac{2\pi}{N_j} \text{ или } \Delta A_j = \frac{4\pi}{N_j} \quad (19)$$

Поред главних максимума у тачкама  $A_j = 2\pi H_j$  постоји још  $N_j - 2$  споредна максимума. Нађимо висину тих максимума. Функција  $L_N(x) = \frac{\sin^2(N_j x)}{\sin^2 x}$  је парна периодична функција са периодом  $\pi$  (слика 2).

Размотримо интервал  $0 - \pi/2$ . Пошто је у том интервалу  $\sin^2 x$  монотона гладка функција то ће максимум функције  $L_N(x)$ , поготово за случај великих вредности  $N_j$ , бити одређен максимумом функције  $\sin^2(N_j x)$ , то јест налазиће се у близини тачке  $\sin^2(N_j x) = 1$ , то јест за  $x_N = \frac{(2n+1)\pi}{2N_j}$ , где је  $n$  цео број. Вредност функције  $L_N(x)$  у тим тачкама је

$$\frac{\sin^2[N_j(2n+1)\pi/(2N_j)]}{\sin^2[(2n+1)\pi/(2N_j)]} = \frac{1}{\sin^2[(2n+1)\pi/(2N_j)]}. \quad (20)$$

За  $N_j \gg n$  функцију  $\sin x_N$  можемо заменити њеним аргументом

$$L_N(x) \simeq \frac{4N_j^2}{(2n+1)^2\pi^2}. \quad (21)$$

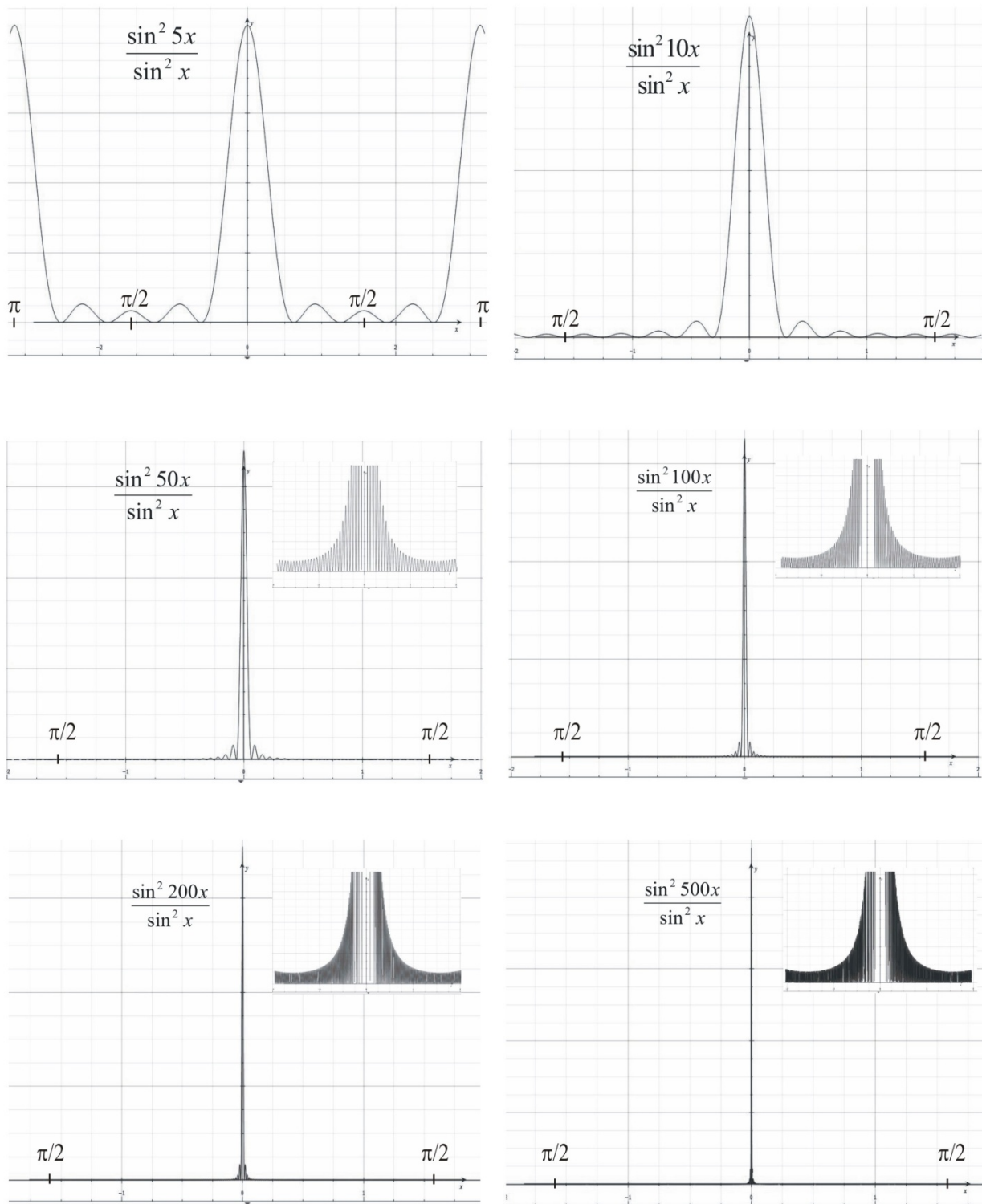
На тај начин висина споредних максимума је, исто као и главних, пропорционална са  $N_j^2$ . Однос висине споредних максимума у односу на висину главног максимума је

$$\frac{L_N(x_N)}{L_N(x_{N=0})} = \frac{4N_j^2}{N_j^2(2n+1)\pi^2} = \frac{4}{(2n+1)^2\pi^2}. \quad (22)$$

Одавде је јасно да релативна висина споредних максимума не зависи од  $N_j$  (за велика  $N_j$ ) и смањује се при повећању  $n$ . Она чини за вредности  $n$  од 1 до 5 респективно 4.50; 1.62; 0.82; 0.50 и 0.33 % висине главног максимума.

Одредимо део енергије који је расејан изван главног максимума. Зато израчунајмо сумарни интензитет расејања  $S$  за један период функције  $L_N(x)$ . Интегралимо функцију  $L_N(x)$  у границама 0 до  $\pi$ . То значи да ћемо сумирати енергију која се односи на један главни максимум и на све споредне максимуме који леже између два главна максимума. Из разлога парности функције  $L_N(x)$  довољно извести интеграле у границама 0 до  $\pi/2$ . Помножимо једначине (12) пре сумирање њеном комплексно коњугованом вредношћу:





Слика 2. График  $L_N(x)$  функција за различите вредности  $N_j$ . Уметнуте сличице на графицима представљају јако развучен део истог графика око  $x$ -осе који илуструје учесталост споредних максимума

$$L_N(x) = \left( \sum_{l_j=0}^{N_j-1} \exp(il_j A_j) \right) \left( \sum_{l'_j=0}^{N_j-1} \exp(il'_j A_j) \right)^* = \left( \frac{\Phi^2}{R^2} \right) \sum_{l_j}^{N_j-1} \sum_{l'_j}^{N_j-1} \exp 2i(l_j - l'_j)x \quad (23)$$

где је  $x = (k/2) \cdot (\vec{r}_{l_j}, \vec{s} - \vec{s}_0)$ . После развијања једначине (23) по Ојлеровој формули, сума синуса ће се претворити у нулу (јер се сумирање врши по позитивним и негативним вредностима разлике  $l_j - l'_j$ ). Зато добијамо

$$\frac{\sin^2(N_j x)}{\sin^2 x} = \sum_{l_j}^{N_j-1} \sum_{l'_j}^{N_j-1} \cos 2(l_j - l'_j)x \quad (24)$$

Издвојивши у двојној суми чланове  $l_j = l'_j$  (њихов број је једнак  $N_j$ , а њихова вредност једнака 1), долазимо до израза

$$\begin{aligned} S &= 2 \int_0^{\pi/2} \left[ \sum_0^{N_j-1} \sum_0^{N_j-1} \cos 2(l_j - l'_j)x \right] dx = \\ &= 2N_j \int_0^{\pi/2} dx + \sum_{l_j \neq l'_j} \sum_{l'_j} \left| \int_0^{\pi/2} \frac{\sin 2(l_j - l'_j)x}{l_j - l'_j} \right. \end{aligned} \quad (25)$$

За  $l_j \neq l'_j$  постављајући доњу и горњу граничну вредност у другом члану добијамо величину једнаку нули док ће први члан бити једнак  $\pi/2$ .

Због тога је

$$S = \pi N_j. \quad (26)$$

За оцену расејање енергије на онај део која се односи на споредне максимуме разбијмо интервал  $(0, \pi)$  од  $x$  на  $N_j$  делова. Тада ће на сваком одсечку  $\pi/N_j$  лежати један споредни максимум. Висина споредних максимума за  $x_N = (2n+1)\pi/2N_j$  као што следи из израза (20) пропорционална је са  $\csc^2 x_N$ . Заменимо криву која пролази кроз врх максимума степенастом.

За  $N_j \rightarrow \infty$  ова крива прелази у полазну. Испод сваке степенице лежи споредни максимум који се описује изразом  $\csc^2 x_N \cdot \sin^2(N_j x)$ , где се  $x$  мења од  $n\pi/N_j$  до  $(n+1)\pi/N_j$ . Споредни максимум у том случају има форму  $\sin^2 t$  где је  $0 < t < \pi$ . Познато је да је површина испод криве  $\sin^2 t$  на интервалу 0 до  $\pi$  једнака  $\pi/2$ , то јест половини површине правоугаоника у којем је уписан споредни максимум. На тај начин површина свих споредних максимума тежи ка половини површине под кривом  $\csc^2 x$  (за  $N_j \rightarrow \infty$ ).

Површина споредних максимума (за довољно велико  $N_j$ ) је у интервалу 0 до  $\pi/2$  једнака

$$S = \frac{1}{2} \int_{\pi/N_j}^{\pi/2} \csc^2 x dx = \frac{1}{2} \operatorname{ctg} \frac{\pi}{N_j} \approx \frac{N_j}{2\pi}, \quad (27)$$

јер је за случај када  $N_j$  има велику вредност  $\operatorname{ctg} \frac{\pi}{N_j} \simeq \frac{N_j}{\pi}$ .

У интервалу од  $-\pi/2$  до  $+\pi/2$  површина споредних максимума је  $S \simeq \frac{N_j}{\pi}$ , а површина под читавом кривом је  $S = \pi N_j$ . Одатле следи да површина споредних максимума чини  $\sim 1/\pi^2$  површине под кривом  $L_N(x)$ , то јест  $\sim 10\%$  укупног интензитета. За произвољну коначну вредност  $N_j$  споредни максимуми се не могу стопити са основним. Међутим за  $N_j \rightarrow \infty$  сви колико год интензивни споредни максимуми ће се бесконачно приближити главном максимуму, то јест за довољно велике вредности  $N_j$  сав интензитет је концентрисан око правца главног максимума (споредни максимуми граде „подножје“ око главних максимума) што је илустровано на слици 2 за случај функција са високим  $N_j$ .

#### 4. Реципрочна решетка

Важну улогу у дифракцији односно интерференцији игра реципрочна кристална решетка, чији се базисни вектори  $\vec{b}_i$  задају релацијом

$$(\vec{a}_i \circ \vec{b}_k) = \delta_{ik}, \quad (28)$$

где је  $\delta_{ik}$  Кронекеров симбол са особиним  $\delta_{ii} = 1$ ;  $\delta_{ik} = 0$  ( $i, k = 1, 2, 3$ ).

Из претходне релације следи да је вектор  $\vec{b}_1$  перпендикуларан векторима  $\vec{a}_2$  и  $\vec{a}_3$  и зато је његов правац одређен векторским производом

$$\vec{b}_1 = \gamma [\vec{a}_2 \times \vec{a}_3] \quad (29)$$

Множећи једначину (29) скаларно са  $\vec{a}_1$  и узимајући у обзир (28) добијамо да је  $\gamma = 1/v$ , где је  $v = \vec{a}_1 \circ [\vec{a}_2 \times \vec{a}_3]$  запремина елементарне ћелије кристала. На овај начин је

$$\vec{b}_1 = \frac{[\vec{a}_2 \times \vec{a}_3]}{v} = \frac{[\vec{a}_2 \times \vec{a}_3]}{\vec{a}_1 \circ [\vec{a}_2 \times \vec{a}_3]}. \quad (30)$$

Базисни вектори  $\vec{b}_2$  и  $\vec{b}_3$  добијају се цикличним пермутацијама релације (30).

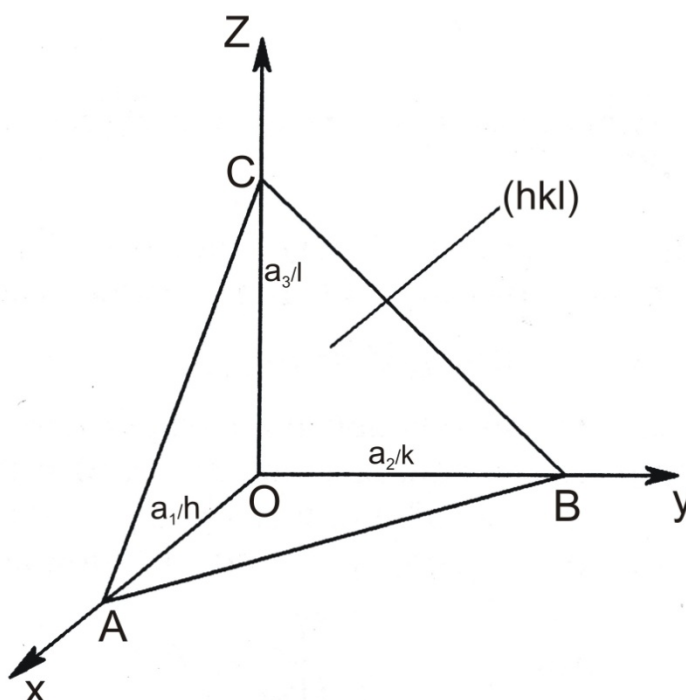
Ако на овим векторима генеришемо скуп вектора облика

$$\vec{H}_{hkl} = h\vec{b}_1 + k\vec{b}_2 + l\vec{b}_3 \quad (31)$$

где су  $h, k, l$  сви могући цели бројеви, овај скуп векторе можемо, аналогно директној кристалној решеци, посматрати као неку решетку коју називамо реципрочна решетка. Произвољни вектор ове решетки назива се вектор реципрочне решетки. Пре него што наведемо најважнију особину ових вектора размотримо појам чворних равни у директној кристалној решеци које су у тесној вези са векторима реципрочне решетки.

Сваку директну кристалну решетку дату једначином (1) можемо представити и као скуп паралелних чворних равни, то јест свака чворна раван је потскуп скуп свих чворова директне решетки који имају особину да припадају једној геометријској равни. Породица паралелних чворних равни из разлога транслационе симетрије је еквиливантна и обухвата све чворове директне решетки то јест кроз сваки чвор кристалне решетки пролази једна и само једна раван из породице оваквих паралелних равни. Породица оваквих равни дели странице елементарних ћелија на једнаке делове, а број тих једнаких одсека на једној страници (параметру) елементарне ћелије традиционално означавамо са

$h, k, l$ . у односу на  $\vec{a}_1, \vec{a}_2, \vec{a}_3$  респективно. Ово следи из чињенице да се између две равни из исте породице паралелних равни које пролазе кроз два темена елементарне ћелије могу налазити само еквидистантне паралелне равни. Према томе раван из породице паралелних равни која је најближа кординатном почетку (осим наравно оне која пролази кроз њега) одсеца на кординатним осама одсечке  $\frac{a_1}{h}, \frac{a_2}{k}$  и  $\frac{a_3}{l}$  (где су  $h, k, l$  цели бројеви) што је и илустровано на слици 3. Потпуно је природно да онда сваку породицу равни паралелну овој равни, као њиховом представнику, можемо једнозначно одредити, односно индексирати, са та три броја  $(hkl)$  који су познати као Милерови индекси (слика 3).



Слика 3. Индексирање паралелних кристалографских чворних равни у складу са бројем одсечака које оваква породица одсеца на осама кристалне решетке

Сада наведимо веома важну особину вектора реципрочне решетке: вектор реципрочне решетке  $\vec{H}_{hkl}$  нормалан је на породицу равни  $(hkl)$  док је његов модуо обрнуто пропорционалан растојању међу суседним равнима дате породице.

$$|\vec{H}_{hkl}| = \frac{1}{d_{hkl}}. \quad (32)$$

Да би доказали перпендикуларност узмимо вектор  $\vec{BA}$  који припада  $(hkl)$  равни и помножимо га скаларно са вектором реципрочне решетке:

$$\begin{aligned}
(\vec{H}_{hkl} \circ \vec{BA}) &= \left( h\vec{b}_1 + k\vec{b}_2 + l\vec{b}_3, \frac{\vec{a}_1}{h} - \frac{\vec{a}_2}{k} \right) = \\
&= \left( \frac{h}{h}(\vec{a}_1 \circ \vec{b}_1) - \frac{k}{k}(\vec{a}_2 \circ \vec{b}_2) + \frac{k}{h}(\vec{a}_1 \circ \vec{b}_2) + \frac{l}{h}(\vec{b}_3 \circ \vec{a}_1) - \frac{h}{k}(\vec{b}_1 \circ \vec{a}_2) - \frac{l}{k}(\vec{b}_3 \circ \vec{a}_2) \right) = 0
\end{aligned}$$

Потпуно аналогно се доказује за  $\vec{CB}$  те пошто је  $\vec{H}_{hkl}$  перпендикуларан на два неколинеарна вектора исте равни  $(hkl)$  онда је он перпендикуларан и на ту раван.

Докажимо сада и једнакост (32). За доказивање ове веома важне формуле поступићемо на следећи начин. Независно од координатног система једначину чворне равни  $(hkl)$  која пролази кроз координатни почетак мажемо записати као

$$\left( \vec{R}_{mnp} \circ \frac{\vec{H}_{hkl}}{|\vec{H}_{hkl}|} \right) = 0 \quad (33)$$

где је  $\vec{R}_{mnp} = m\vec{a}_1 + n\vec{a}_2 + p\vec{a}_3$  радијус вектор чвора који се налази у тој  $(hkl)$  равни, а  $\frac{\vec{H}_{hkl}}{|\vec{H}_{hkl}|}$  јединични вектор нормале на ту раван. Стављајући  $\vec{H}_{hkl} = h\vec{b}_1 + k\vec{b}_2 + l\vec{b}_3$  и узимајући услове одређивања вектора реципрочне решетке добијамо:

$$hm + kn + lp = 0. \quad (34)$$

Ова релација представља једначин чворне равни која пролази кроз координатни почетак, то јест она одређује целобројне вредности  $m$ ,  $n$  и  $p$  (које представљају координате чворова) за дате вредности  $h$ ,  $k$ ,  $l$ . Као што је познато прва раван, то јест она која се налази најближе координатном почетку) се може добити из нулте (односно оне која пролази кроз координатни почетак) транслацијом за  $\frac{\vec{a}_1}{h}$  или  $\frac{\vec{a}_2}{k}$  или  $\frac{\vec{a}_3}{l}$ . Померимо координатни почетак за вектор  $-\frac{\vec{a}_1}{h}$ . Тада ће радијус вектор чвора  $[[mnp]]$  бити једнак

$$\vec{R}'_{mnp} = m\vec{a}_1 + n\vec{a}_2 + p\vec{a}_3 + \frac{\vec{a}_1}{h}. \quad (34)$$

Тада ће раван најближа координатном почетку имати облик

$$\left( \vec{R}'_{mnp} \circ \frac{\vec{H}_{hkl}}{|\vec{H}_{hkl}|} \right) = d_{hkl}, \quad (35)$$

где је  $d_{hkl}$  њено растојање од координатног почетка, то јест међураванско растојање.

Стављајући вредност  $\vec{H}_{hkl}$  добијамо

$$(hm + kn + lp + 1) \cdot \frac{1}{|\vec{H}_{hkl}|} = d_{hkl} \quad (36)$$

а узимајући у обзир једначину (34) на крају добијамо  $d_{hkl} = \frac{1}{|\vec{H}_{hkl}|}$ . Тако је доказано да је вектор реципрочне решетке  $\vec{H}_{hkl}$  перпендикуларан породици  $(hkl)$  равни и по модулу једнак међураванском растојању породице  $(hkl)$  равни.

## 5. Представљање интерференционе функције у реципрочном простору. Интерференциона једначина и њена графичка интерпретација

Интерференциона функција  $\varphi(A_1A_2A_3)$  у релацији (14) описује у директном простору расподелу интензитета рендгенских зрака који се расејавај кристалом. Главни максимум те функције како је било показано раније одговара вредностима  $A_j = 2\pi H_j$  где је  $H_j$  цео број или нула, а

$$A_j = k \cdot (\vec{a}_j, \vec{s} - \vec{s}_0) = 2\pi \cdot [\vec{a}_j, (\vec{s} - \vec{s}_0)/\lambda] \quad (37)$$

Изразимо вектор  $(\vec{s} - \vec{s}_0)/\lambda$  у координатама реципрочног простора:

$$\frac{(\vec{s} - \vec{s}_0)}{\lambda} = \psi_1 \vec{b}_1 + \psi_2 \vec{b}_2 + \psi_3 \vec{b}_3 \quad (38)$$

Поставивши израз (38) у (37) добијама  $A_j = 2\pi\psi_j$ . Тада после замене у релацији (14) координата  $\psi_j$  нађимо расподелу интензитета у реципрочном простору:

$$I(\psi_1\psi_2\psi_3) = \left(\frac{\Phi^2}{R^2}\right) \prod_{j=1,2,3} \frac{\sin^2 \pi\psi_j N_j}{\sin^2 \pi\psi_j}. \quad (39)$$

Максимум интензитета одговара *тачкама* реципрочног простора:

$$\psi_j = H_j, \quad (40)$$

где је  $H_j$  цео број.

На тај начин једначина

$$\frac{(\vec{s} - \vec{s}_0)}{\lambda} = H_1 \vec{b}_1 + H_2 \vec{b}_2 + H_3 \vec{b}_3 = \vec{H} \quad (41)$$

одређује координате главних максимума у реципрочном простору. Једначин (41) носи назив интерференциона једначина.

Нулта вредност  $I(\psi_1\psi_2\psi_3)$  у реципрочном простору налазиће се у тачкама  $\psi_j$  које су одређене једнакошћу  $\sin^2 \pi\psi_j N_j = 0$ . Одатле следи да је  $\psi_j = p \left(\frac{1}{N_j}\right)$  где је  $p$  произвољан цео број. Зато за  $p = 1$  област реципрочног простора у близини главног максимума (чвора реципрочне решетке) можемо условно узети у виду паралелопипеда (или троосног елипсоида) са странама

$$\Delta b_1 = (2/N_1)|\vec{b}_1|, \quad \Delta b_2 = (2/N_2)|\vec{b}_2|, \quad \Delta b_3 = (2/N_3)|\vec{b}_3| \quad (42)$$

Одавде следи да је запремина чвора реципрочне решетке једнака

$$\Delta v^* = \Delta \vec{b}_1 \circ [\Delta \vec{b}_2 \times \Delta \vec{b}_3] = \frac{8v^*}{N_1 N_2 N_3} = \frac{8}{vN} = \frac{8}{V_0}, \quad (43)$$

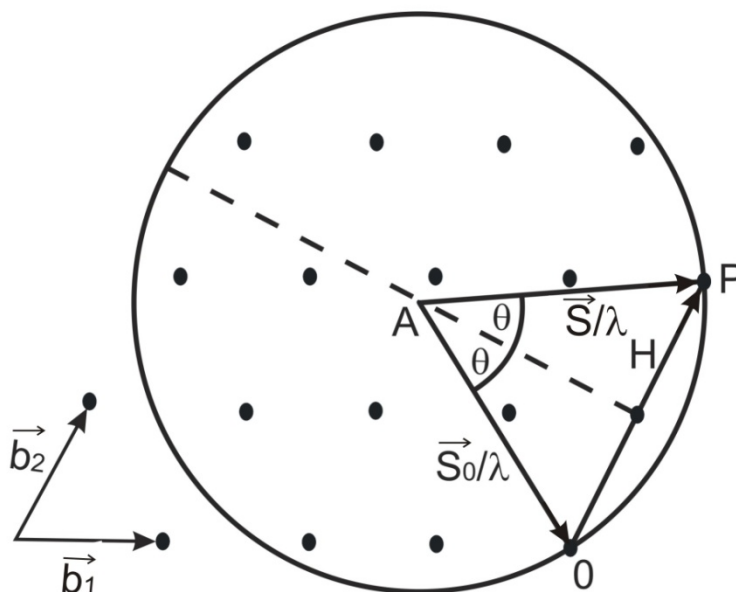
где је  $v$  и  $v^*$  запремина директне и реципрочне елементарна ћелије респективно,  $V_0$  запремина кристала;  $N$  број елементарних ћелија у кристалу.

Из релације (43) следи да се запремина чвора реципрочне решетке која одговара области нултог интензитета повећава са смањењем размера кристала. Супротно, при великим размерама кристала чвор инверзне решетке има веома малу запремину.

Ако је размера кристала по једној од главних оса веома мала, на пример  $N_1 \rightarrow 0$  тада се чворови реципрочне решетке деформишу у издужене цилиндре нормално на раван која садржи базисне векторе директне решетке  $\vec{a}_2$  и  $\vec{a}_3$  то јест дуж правца  $\vec{b}_1$ .

Ако се кристал по форми приближава једнодимензионим облицима, на пример  $N_1 \rightarrow 0, N_2 \rightarrow 0$  тада чворови инверзне решетке представљају плочасте облике чије су равни нормалне на низове чворова директне решетке који садрже базисни вектор  $\vec{a}_3$ .

Интерференциона једначина (41) омогућава једноставну геометријску интерпретацију која је погодна за налажење правца интерференционих максимума. Прво нађемо инверзну решетку кристала израчунавши дужину базисних реципрочних вектора и углове мађу њима користећи формулу (30). Конструиримо у одређеној скали мрежу реципрочне решетке, на пример ону која садржи  $\vec{b}_1$  и  $\vec{b}_2$  (слика 4). Узмимо произвољни угао реципрочне решетке за њен координатни почетак. Допустимо да на кристал пада зрак



Слика 4. Графичка илустрација интерференционе једначине у реципрочном простору

у правцу  $\vec{s}_0$  (у односу на реципрочну решетку). У истој скали одмеримо од координатног почетка одсечак дужине  $1/\lambda$ . Тачку  $A$  узмимо за почетак вектора  $\vec{s}_0/\lambda$ . Опишимо сферу радијуса  $1/\lambda$  са центром у тачки  $A$  и назовимо је сфером распрострањања (позната је и као Евалдова сфера или сфера рефлексије). Сфера распрострањања увек пролази кроз чвор  $O$ . Ако сфера распрострањања пресече још који чвор, на пример  $P$  (слика 4) тада је могућа појава дифракционог максимума јер из једнакокраког троугла  $AOP$  следи да се у том случају испунила једнакост  $\vec{H} = (\vec{s} - \vec{s}_0)/\lambda$ .

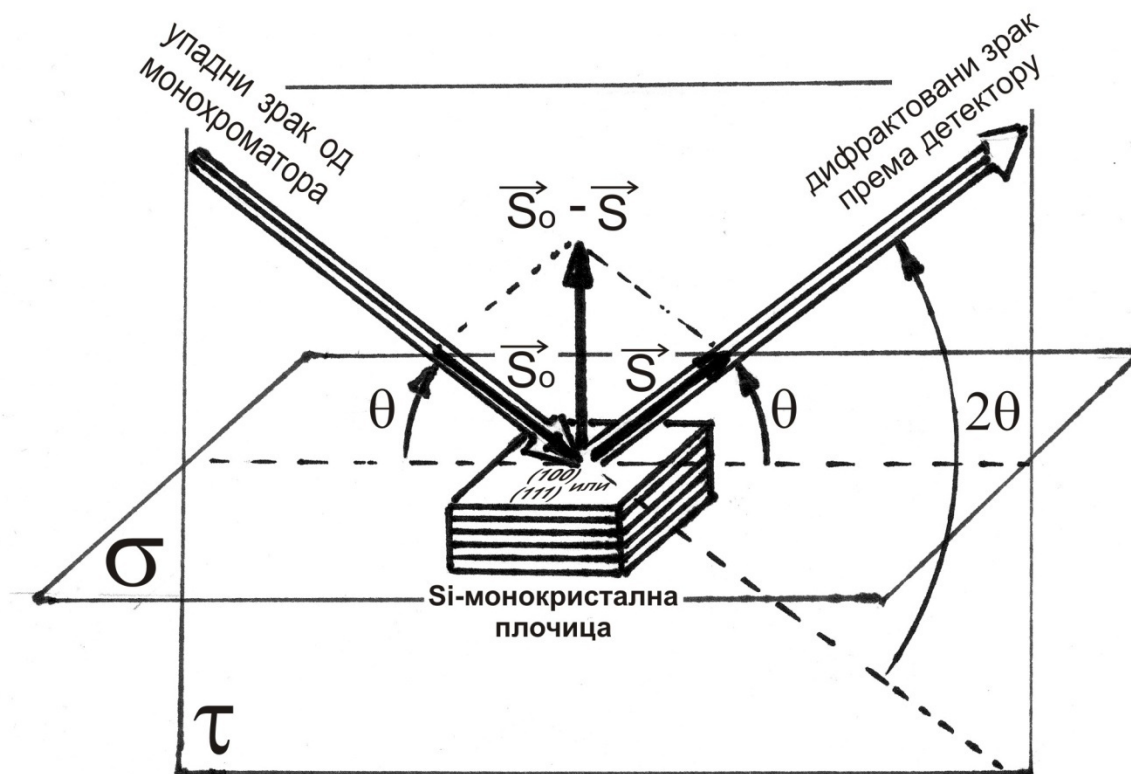
Покажимо сада, користећи се реципрочном решетком да је у интерференциону једначину укључена и чувена Брег-Вулфова једначина. Користићемо се опет геометријском интерпретацијом интерференционе једначине у простору реципрочне решетке (слика 4). Како је вектор реципрочне решетке нормалан на једну од породица рефлексионих равни коју можемо индексирати са  $(hkl)$  тада ће те равни бити нормалне на раван цртежа (слика 4) и биће паралелне са приказаном испрекиданом линијом на истом цртежу. Са слике је очигледно да су углови које заклапају те равни са правцима  $\vec{s}_0$  упадног и  $\vec{s}$  дифрактованог зрака једнаки и они су на слици означени са  $\theta$ . Тек сада је доказано да се породице чворних кристалографских равни могу третирати као рефлексионе равни мада се у већини књига ова чињеница подразумева, а од ње се обично и полази при извођењу Брег-Вулфове једначине.

Тада је  $|\vec{H}|/2 = (1/\lambda) \sin \theta$ , одакле је  $|\vec{H}| = 2 \sin \theta / \lambda$ . Индекси чворова реципрочне решетке  $H_1, H_2, H_3$  једнаки одговарајућим индексима интерференције у исто време су пропорционални индексима рефлексионе равни:  $H_1 = nh$ ,  $H_2 = nk$ ,  $H_3 = nl$ . Зато је  $|\vec{H}| = n|\vec{H}'|$ , где коефицијенти компонената вектора  $\vec{H}'$  немају заједнички чиниоц и они представљају индексе  $hkl$ . Са друге стране  $|\vec{H}'| = 1/d_{hkl}$ , где је  $d_{hkl}$  је међураванско растојање за породицу равни са индексима  $(hkl)$ . Тада  $|\vec{H}| = n|\vec{H}'| = 2 \sin \theta / \lambda$  одакле коначно добијам познату Брег-Вулфову једначину  $n\lambda = 2d \sin \theta$ .

## 6. Рендгенски дифракциони експеримент на монокристалним плочицама силицијума

У циљу провере Лауеових једначина (16) извршен је следећи експеримент са дифракцијом односно интерференцијом рендгенских зрака. Мерење је извршено помоћу дифрактометра BRUKER D8 Advance са улазним монохроматором који је обезбедио паралелни монохроматски снап рендгенског зрачења таласне дужине  $1.54059 \text{ \AA}$ . За кристал на коме је извршен дифракциони експеримент изабран је монокристал силицијума. Елементарни силицијум кристалише на такав начин да елементарна ћелија његове кристалне решетке може бити описана помоћу правилне коцке чије су ивице једнаке  $5.43054 \text{ \AA}$  (Бравеова елементарна ћелија површински центрирана кубне решетке која је четири пута већа од одговарајуће примитивне ћелије). Од монокристалног комада силицијума су изрезана два плочаста узорка ( $5 \text{ mm} \times 5 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$ ) и то на такав начин да је код једног узорка широка страна плоче (паралелна  $\sigma$  равни на слици 5) паралелна кристалним равнима (100) (узорак 1) а код другог узорка кристалним равнима (111) (узорак 2). Геометрија експеримента је приказана на слици 5. Извор зрачења, односно улазни монохроматор и детектор дифрактованог зрачења постављени су у односу на узорак на такав начин да раван коју граде упадни и дифрактрани рендгенски зрак ( $\tau$  раван) лежи нормално на раван узорка. ( $\sigma$  раван). Такође је обезбеђено да је угао који заклапа упадни зрак са равни узорка једнак углу који заклапа дифрактовани зрак са истом равни (означени су са  $\theta$  на слици 5). Овај угао је током експеримента вариран и помоћу детектора посматрана зависност интензитета дифрактованог зрака од двоструке вредности овог угла (двострука вредност овог угла, такозвани угао дифракције, једнака је углу који заклапају дифракциони и упадни снап, означен са  $2\theta$  на слици 5).





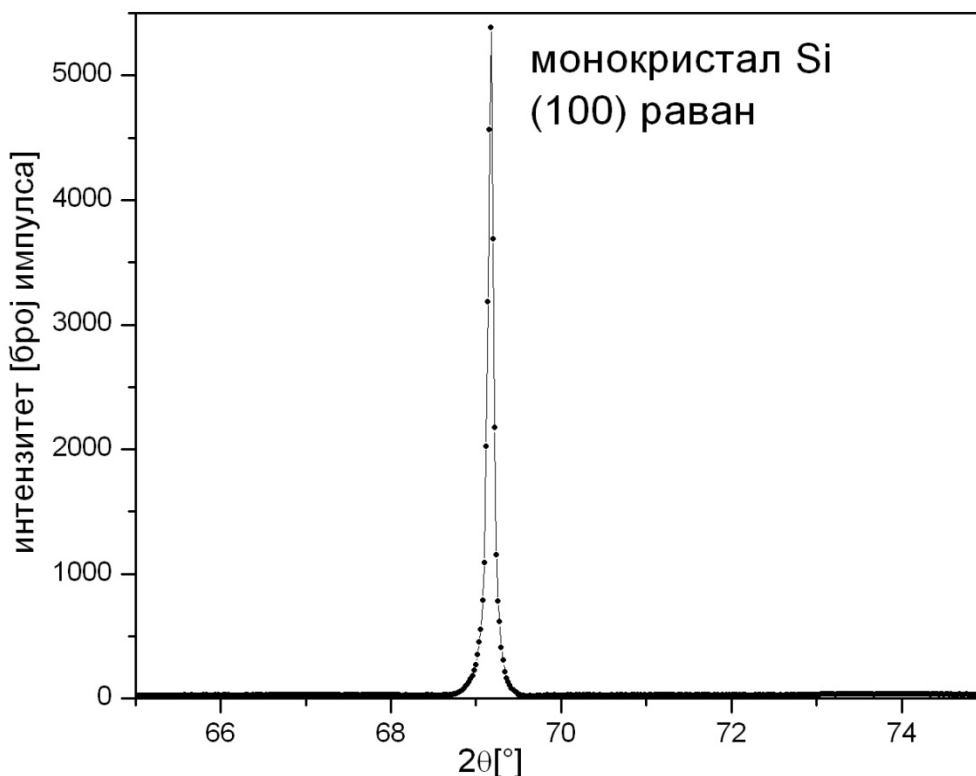
Слика 5 Рендгенски дифракциони експеримент на монокристалним плочицама силицијума са изложеним (100) или (111) кристалним равнинама

На тај начин је вектор разлике јединичних вектора дифрактованог и упадног снопа  $\vec{s} - \vec{s}_0$  у току експеримента увек био нормалан на широку страну узорка ( $\sigma$  раван) па, према томе, и на кристалографске равни (100) за први и (111) за други узорак. Вратимо се сада функцијама  $L_{N_j}(x) = \frac{\sin^2(N_j x)}{\sin^2 x}$  и посматрајмо како се аргументи ових функција  $x = \frac{A_j}{2} = \frac{k}{2} \cdot (\vec{a}_j, \vec{s} - \vec{s}_0)$  мењају током овог експеримента.

За узорак 1 вектор који представља разлику јединичних вектора  $\vec{s} - \vec{s}_0$  је током експеримента увек нормална на  $\vec{a}_2$  и  $\vec{a}_3$  тако да је аргумент функција  $L_{N_2}(x)$  и  $L_{N_3}(x)$  увек једнак нули и оне према томе увек имају максималну вредност то јест одговарају вредности првог главног максимума. Да би се добила конструктивна интерференција дифрактованог зрака потребно је обезбедити још само да током варирања дифракционог угла  $L_{N_3}(x)$  добије максималну вредност, а то ће, из разлога што  $\vec{s} - \vec{s}_0$  није нормално на  $\vec{a}_1$  (они су у овом случају паралелни), бити остварено на првој вредности  $x$  различитој од нуле, а то је вредност  $\pi$ , то јест  $\pi = \frac{k}{2} \cdot (\vec{a}_1, \vec{s} - \vec{s}_0)$ . Одавде добијамо

$$2\theta = 2 \cdot \arcsin\left(\frac{|\vec{s} - \vec{s}_0|}{2}\right) = 2 \cdot \arcsin\left(\frac{\lambda}{2|\vec{a}_1|}\right) \quad (44)$$

Стављајући за  $|\vec{a}_1|$  вредност за примитивну елементарну ћелију (која је четири пута мања од ивице коцке) добијамо вредност  $2\theta = 69.14^\circ$  што се одлично слаже са вредношћу максимума који је приказан на *слици 6*.



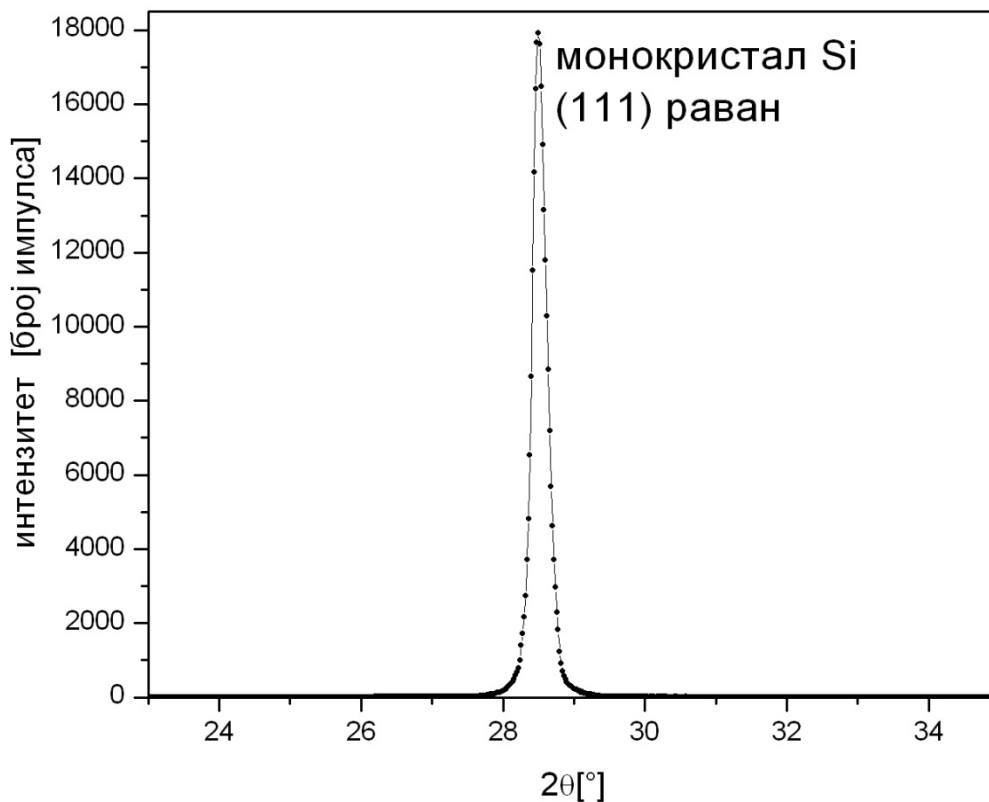
Слика 6 Дифракциони максимум од силицијумове монокристалне плочице када је равана (100) постављена симетрично у односу на упадни и дифрактовани зрак и заузима нормалан положај у односу на равана којју ова два зрака граде

За узорак 1 вектор  $\vec{s} - \vec{s}_0$  заклапа исти угао са сва три вектора  $\vec{a}_j$  који је једнак углу између велике дијагонале коцке и њене стране и износи према томе  $54.73^\circ$ , па за све три  $L_{N_j}(x)$  аргументи  $x$  узимају исте ненулте вредности у њиховим максимумима. Током експеримента  $|\vec{s} - \vec{s}_0|$  мења своју вредност у зависности од угла дифракције. Нађимо угао дифракције за који  $x$  добија вредност  $\pi$ . Пошто је  $\cos(54.73^\circ) = 1/\sqrt{3}$  добијамо

$$2\theta = 2 \cdot \arcsin\left(\frac{\sqrt{3}|\vec{s} - \vec{s}_0|}{2}\right) = 2 \cdot \arcsin\left(\frac{\sqrt{3}\lambda}{2|\vec{a}_i|}\right) \quad (45)$$

Пошто су све вредности  $|\vec{a}_j|$  једнако истовремено су испуњена сва три услова за вредност  $2\theta = 28.45^\circ$  што је као што се може видети са *слике 7* у одличном слагању са дифракционим експериментом за први узорак.

На овај начин смо експериментално показали да је за остварење конструктивне интерференције неопходно да истовремено буду испуњена сва три услова (16).



Слика 7 Дифракциони максимум од силицијумове монокристалне плочице када је раван (111) постављена симетрично у односу на упадни и дифрактовани зрак и заузима нормалан положај у односу на раван којју ова два зрака граде

## 6. Закључак

Теорија структурне анализе кристала заснована је на појави дифракције и интерференције рендгенских зрака. Изучавање рендгенске дифракционе слике омогућава да одредимо геометрију и многе друге одлике атомске структуре кристалне средине. Ова теорија почиње са одређивањем једначина посредством којих можемо израчунати интерференциону слику дифрактованог зрачења за задату кристалну решетку. Проблем дифракције на реалним кристалним структурама је веома сложен и зато је веома важно детаљно и строго развити теорију и основне појмове на веома једноставним моделима кристала. Ипак ова поједностављења модела кристала не уносе промене на израчунату геометрију распореда дифракционих максимума већ само значајно утичу на њихов интензитет што се отклања постепеним урачунавањем различитих чиниоца интензитета. Са друге стране овако детаљан и строг прилаз разматрању интерференционих функција у расположивој литератури о рендгеноструктурној анализи, из разлога економисања,

углавном недостаје и многе релације и тачно дефинисање појмова се подразумевају приликом илустровања и извођења доказа.

## 7. Литература

1. Hammond C., The basics of crystallography and diffraction, University press, Oxford, 2009.
2. Pecharsky V.K.,Zavalij P.Y., Fundamentals of Powder Diffraction and Structural Characterization of Materials, Second edition, Springer, 2009.
3. W.,Borchardt-Ott, Crystallography, An Introduction, Springer, 2011.
4. Чупринов Е.В., Хохлов А.Ф., Фаддеев М.А., Основы кристаллографии, Физматлит, Москва, 2004.
5. Китайгородский А.И., Рентгеноструктурный анализ, Государственное издательство технико-теоретической литературы, Ленинград, 1950.