

Acta Cryst. (1960). 13, 830

Möglichkeiten der Präzisionsgitterkonstantenmessung mit hochmonochromatischer Röntgen-Strahlung. VON H. BARTH, Fritz-Haber-Institut der Max-Planck-Gesellschaft, Berlin-Dahlem, Deutschland

(Eingegangen am 11. Juni 1959)

Die Röntgen-Linien haben bekanntlich eine grosse spektrale Intensitätsverteilung. Die relative spektrale Breite der Röntgen-Linien ist $d\lambda/\lambda \sim 10^{-4}$. Durch Bragg-Reflexion an Einkristallen kann die emittierte Röntgen-Strahlung monochromatisiert werden. Guinier (1939) und später Jagodzinski & Hofmann (1955) konnten mit der Quarznetzebene 10 $\bar{1}1$ in Johansson-Aufstellung bis auf die Gesamtbreite der $\text{Cu } K\alpha_1$ -Linie, also bis auf etwa 4 XE monochromatisieren.

Bei Präzisionsmessungen von Gitterkonstanten erschwert und begrenzt auch die spektrale Verteilung einer Röntgen-Linie die Genauigkeit der Auswertung. Ladell *et al.* (1959), Pike & Wilson (1959) und Parrish & Wilson (1959) bestimmen sehr genau das Linienprofil und berechnen daraus dem Schwerpunkt der Verteilung.

Ein anderer Weg zur Verbesserung der Messgenauigkeit ist die Monochromatisierung der spektralen Verteilung einer Röntgen-Linie (Barth, 1958). Um eine hohe Monochromasie zu erreichen, muss die Winkeldispersion D

$$D = d\theta/d\lambda = \text{tg } \theta/\lambda,$$

z. B. für die $\text{Cu } K\alpha_1$ -Linie gross und die Totalreflexionswinkelbreite $2d\varphi$

$$2d\varphi = \frac{4\delta}{\sin 2\theta} \frac{|F_n|}{|F_o|}$$

der reflektierenden Kristallnetzebene klein sein.

Die Quarznetzebene 23 $\bar{5}4$ erfüllt diese Bedingungen nach bisherigen Erfahrungen am besten. Der Netzebenenabstand ist

$$d_{23\bar{5}4} = 789,1 \text{ XE}.$$

Der Bragg-Reflexionswinkel für das Maximum der $\text{Cu } K\alpha_1$ -Linie ist

$$\theta_{23\bar{5}4} = 76^\circ 56'.$$

Die Winkeldispersion ist für Cu-Strahlung

$$D = 540''/\text{XE}.$$

Die Winkelbreite der spektralen Halbwertbreite von $\text{Cu } K\alpha_1$ beträgt

$$d\theta_{1/2} \sim 350''.$$

Die Totalreflexionswinkelbreite ist dagegen, für symmetrische Reflexion ohne Absorption berechnet, nur

$$2d\varphi \sim 2''.$$

Nach Prüfung vieler Quarzexemplare konnte eine Quarzplatte gefunden werden, die über einer Fläche von 6 cm.² in der Oberfläche und im Kristallinneren ideal im Sinne der dynamischen Theorie ist. Stellt man diesen idealen Quarzkristall K mit der Netzebene 23 $\bar{5}4$ in der Oberfläche in grösserem Abstände von dem Strichfokus F einer Röntgen-Röhre auf, wie in Fig. 1, so wird nach der Bragg'schen Gleichung für jeden Reflexionswinkel θ eine bestimmte Wellenlänge λ der spektralen Verteilung von $\text{Cu } K\alpha_1$ und $K\alpha_2$ reflektiert. Bringt man dicht vor den

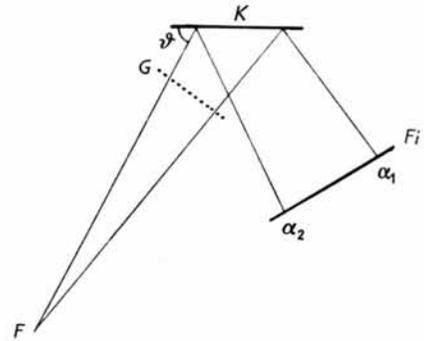


Fig. 1. Reflexion von $\text{Cu } K\alpha_{12}$ an der Quarznetzebene 23 $\bar{5}4$. F Strichfokus. G Strichgitter. K idealer Quarzkristall. F_i photographische Platte. $FK = 1000$ mm.; $KF_i = 380$ mm.

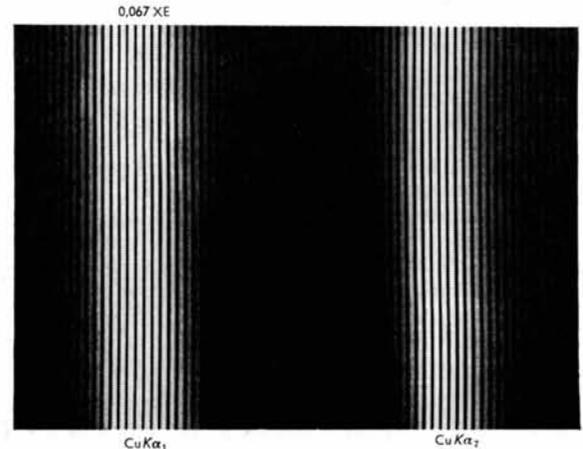


Fig. 2. Schattenbild eines Strichgitters in der spektralen Verteilung von $\text{Cu } K\alpha_{12}$. Die ausgeblendeten Teilbereiche haben eine spektrale Breite von 0,067 XE.

Kristall ein feines Strichgitter in den Strahlengang, so können noch Teilbereiche aus der spektralen Verteilung von $\text{Cu } K\alpha_{12}$ ausgeblendet werden, wie es in Fig. 2 zu sehen ist. Der spektrale Abstand von $\text{Cu } K\alpha_1$ zu $K\alpha_2$ ist 3,84 XE, und die spektrale Breite der ausgeblendeten Teilbereiche ist 0,067 XE. Verwendet man an Stelle des Strichgitters eine kontinuierlich veränderliche Spaltblende, so kann die Monochromasie als Funktion der Ausblendung gemessen werden. In Fig. 3 ist die Halbwinkelbreite $\bar{d}\theta$ der mit einem feinem Zählrohrspalt registrierten Ausblendungsverteilung als Funktion des Ausblendungswinkels $\bar{d}K$ aufgetragen. Eine Verkleinerung des Ausblendungswinkels $\bar{d}K$ unter $10''$ hat keine Verkleinerung der Winkelbreite der registrierten Verteilung zur Folge. Die Grenze der in dieser Art erreichbaren Monochromasie liegt bei etwa 0,02 XE, also bei 1/30 der Halbwertbreite von $\text{Cu } K\alpha_1$.

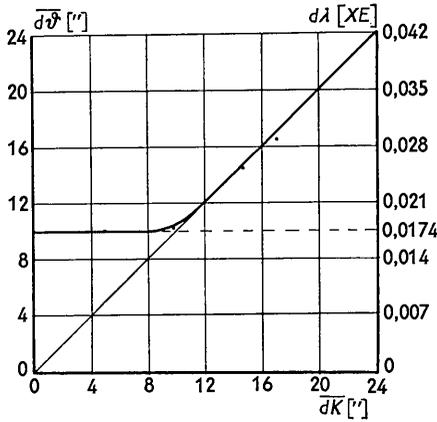


Fig. 3. Monochromatisierung der $\text{Cu } K\alpha_1$ -Linie durch Ausblendung an der 2354 Netzebene eines idealen Quarzkristalles. dK Ausblendungswinkel. $d\delta$ Halbwinkelbreite der registrierten Ausblendungsverteilung.

Um zu beweisen, dass aus der an einem Kristall ausgeblendeten Verteilung unmittelbar die spektrale Breite nach der Bragg'schen Gleichung berechnet werden kann, wurden Doppelkristallmessungen mit zwei idealen 2354-Quarznetzebenen gemacht.

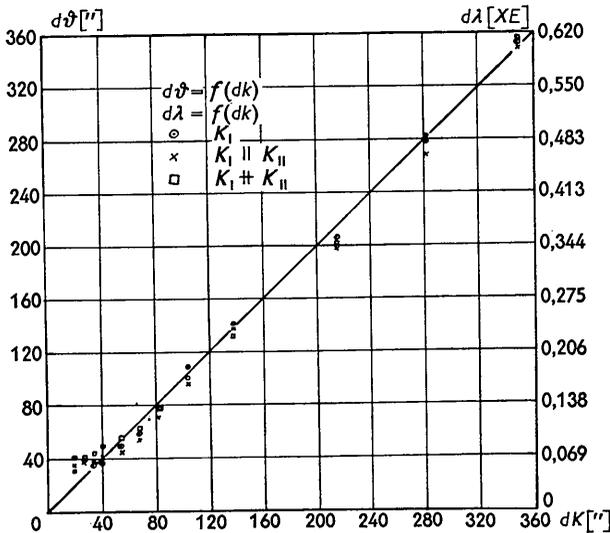


Fig. 4. Doppelkristallmessungen von Teilbereichen der spektralen Verteilung von $\text{Cu } K\alpha_1$.

○ = 1, 0. x = 1, 1. □ = 1, -1.

1. Die am ersten Kristall ausgeblendete Verteilung wird mit einem feinen Zählrohrspalt registriert und die spektrale Halbwertbreite unmittelbar nach der Bragg'schen Gleichung berechnet. Die Messpunkte sind in Fig. 4 durch ○ gekennzeichnet.

2. Die am ersten Kristall ausgeblendete Verteilung wird von einem zweiten Kristall geprüft, indem der zweite Kristall bei weitgeöffnetem Zählrohr durch die antiparallele Stellung gedreht und die spektrale Breite gemessen wird. Die Messpunkte sind in Fig. 4 durch □ gekennzeichnet.

3. Die am ersten Kristall ausgeblendete Verteilung wird von einem genau parallel zum ersten Kristall (Maximum der Reflexionskurve) gestellten zweiten Kristall geprüft, indem die vom zweiten Kristall reflektierte Verteilung von einem feinen Zählrohrspalt registriert und daraus die spektrale Verteilung berechnet wird. Diese Messpunkte sind in Fig. 4 durch x gekennzeichnet.

Diese Messungen sind für verschiedene Ausblendungswinkelbreiten wiederholt worden. Die Werte liegen, wie in Fig. 4 zu sehen, innerhalb der Messgenauigkeit zusammen und auf einer Geraden. Das beweist aber die Richtigkeit der Schlussfolgerung von der am ersten Kristall ausgeblendeten Verteilung auf die spektrale Verteilung.

Es ergeben sich prinzipiell zwei Möglichkeiten der Anwendung hochmonochromatisierter Röntgen-Strahlung zur Präzisionsmessung von Gitterkonstanten.

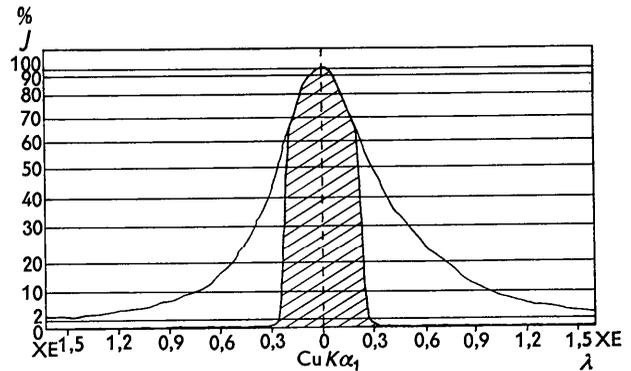


Fig. 5. Spektrale Verteilung von $\text{Cu } K\alpha_1$ mit einer Ausblendung, die das Linienprofil korrigiert. Die Ausblendungsverteilung hat eine Halbwertbreite von etwa 0,4 XE und liegt symmetrisch zum Maximum von $\text{Cu } K$ (nach einer Originalregistrierung).

1. Werden die Messungen an gedrehten Pulverpräparaten gemacht, so wird die spektrale Verteilung von $\text{Cu } K\alpha_1$ so ausgeblendet, dass die spektrale Verteilung symmetrisch zum Maximum von $\text{Cu } K\alpha_1$ liegt. Fig. 5 zeigt eine Originalregistrierung von $\text{Cu } K\alpha_1$ und hineinregistriert eine Ausblendung, die das Linienprofil korrigiert. Die Halbwertbreite der Ausblendung ist etwa

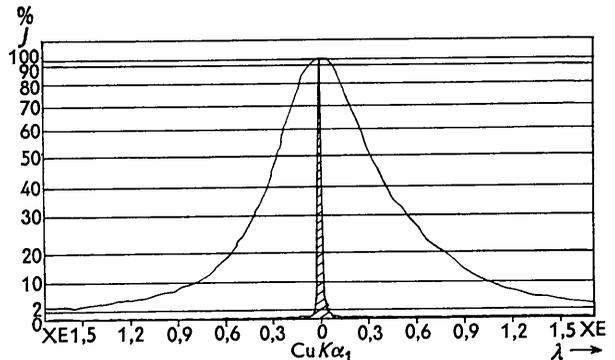


Fig. 6. Spektrale Verteilung von $\text{Cu } K\alpha_1$ mit einer sehr schmalen Ausblendung im Maximum von $K\alpha_1$. Die spektrale Halbwertbreite der ausgeblendeten Verteilung ist etwa 0,03 XE (nach einer Originalregistrierung).

0,4 XE. Die Schwänze der spektralen Verteilung sind völlig weggeschnitten. Durch Anschleifen der Kristalloberfläche kann das Profil der Linie so korrigiert werden, dass die Ausblendung eine Gauss-Verteilung erhält. Man braucht dann bei der Auswertung nur noch die Lage der Spitzen der Präparatreflexe und nicht mehr ihre Profile auszumessen.

2. Werden Messungen an stehenden Präparaten (nach Frohnmeyer & Glocker, 1953) mit Korngrößen zwischen 10μ und 40μ gemacht, so wird die spektrale Verteilung von $\text{Cu } K\alpha_1$ möglichst hoch monochromatisiert. Fig. 6 zeigt wieder die Registrierung der spektralen Verteilung von $\text{Cu } K\alpha_1$ und hineinregistriert eine hochmonochromatische Ausblendung im Maximum von $\text{Cu } K\alpha_1$. Die Halbwertbreite der Ausblendung ist etwa 0,03 XE. Mit dieser hohen Monochromasie können noch Unterschiede der Gitterkonstanten von Korn zu Korn bis zu 1/100 XE gemessen werden.

Diese Art der Monochromatisierung und ihre Anwendungsmöglichkeiten sind im Prinzip sehr einfach. Eine brauchbare technische Lösung ist dagegen schwierig. Obwohl die prozentuale Reflexion der 2354 Quarznetzebene fast 60% beträgt, ist die Integralintensität der

reflektierten hochmonochromatischen Strahlung wesentlich geringer als die Integralintensität einer emittierten Röntgen-Linie. Die Belichtungszeiten sind mit einem ebenen Rückstrahl-Monochromator um den Faktor 20 bis 50 höher als ohne Monochromator.

Eine technische Anwendung ist nur mit einer Hochstrom-Röntgen-Röhre und einem nach Johansson (1933) fokussierenden Rückstrahl-Monochromator möglich.

Literatur

- BARTH, H. (1958). *Z. Naturforsch.* **13a**, 680.
 FROHNMEYER, G. & GLOCKER, R. (1953). *Acta Cryst.* **6**, 19.
 GUINIER, A. (1939). *Ann. d. Phys.* **12**, 161.
 JAGODZINSKI, H. & HOFMANN, E. (1955). *Z. f. Metallk.* **46**, 601.
 JOHANSSON, T. (1933). *Z. Phys.* **82**, 507.
 LADELL, J., PARRISH, W. & TAYLOR, J. (1959). *Acta Cryst.* **12**, 253.
 PARRISH, W. & WILSON, A. J. C. (1959). *International Tables for X-Ray Crystallography*, II, 216.
 PIKE, E. R. & WILSON, A. J. C. (1959). *Brit. J. Appl. Phys.* **10**, 57.

Acta Cryst. (1960). **13**, 832

The intensity distribution in the focus of curved-crystal monochromators and an estimate of its influence on precision measurements of lattice parameters. By JAN ČERMÁK, *Institute of Technical Physics, Czechoslovak Academy of Sciences, Praha, Czechoslovakia*

(Received 10 June 1959 and in revised form 22 January 1960)

Introduction

Most of the geometrical factors which influence the precision measurements of lattice parameters have been investigated relatively thoroughly up to now (see for example, Parrish & Wilson, 1959). The influence of physical factors, particularly the spectral energy distribution of the direct beam, is not known so well. The effects of a distribution of lattice spacings and X-ray wavelengths on line position have been studied, for example by Lang (1956). Pike (1959) derived expressions for the shift of the centroid of a line due to dispersion, Lorentz and polarization factor with regard to the distribution of wavelengths, and Ladell, Parrish & Taylor (1959) have computed these factors for several common wavelength distributions using the classical formulae.

In estimating these effects on accurate measurements the non-monochromatized radiation has been considered thus far. Sometimes it appears necessary to monochromatize the radiation. The purpose of this paper is to investigate more closely the effect of accuracy of the Johansson monochromator alignment on the distribution of reflected X-ray wavelengths. (See also Čermák, 1960). The computations in a particular case will show the shift of the centroid and the variation of intensity of $K\alpha_1$ compared to $K\alpha_2$ due to the alignment and will make it possible to draw some conclusions concerning this type of monochromator.

Method of computation

The focus F of a tube (Fig. 1) is projected into F' as a part of focal circle k . F' will be considered henceforth to be the source of radiation. This approximation is sufficient if the aperture of crystal C is not great. The angle of incidence θ on reflecting planes of any ray

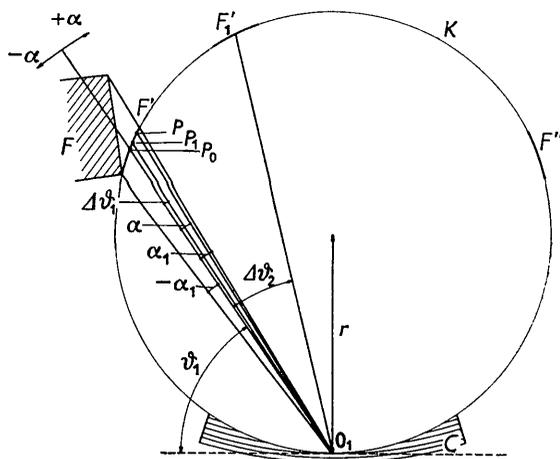


Fig. 1. Geometry of Johansson alignment.