

# La extinción primaria y el factor estático de Debye-Waller en la caracterización de níquel con textura mediante difracción de rayos X

T. Kryshab<sup>a,\*</sup>, A. Cadena Arenas<sup>b</sup>, A. Kryvko<sup>c</sup> y J. Palacios Gómez<sup>a</sup>  
<sup>a</sup>Instituto Politécnico Nacional, Escuela Superior de Física y Matemáticas,  
Av. IPN, Ed. 9, U.P.A.L.M., 07738, México D.F., México.

\*e-mail: kryshab@gmail.com

<sup>b</sup>Instituto Politécnico Nacional, Escuela Superior de Ingeniería Química e Industrias Extractivas,  
Av. IPN, Ed. 8, U.P.A.L.M., 07738, México D.F., México.

<sup>c</sup>Instituto Politécnico Nacional, Escuela Superior de Ingeniería Mecánica y Eléctrica, Unidad Zacatenco,  
Av. IPN, Ed. Z4, U.P.A.L.M., 07360, México D.F., México.

Received 6 January 2015; accepted 5 May 2015

El análisis de textura mediante difracción de rayos X (DRX) implica la medición de figuras de polos (FPs) a partir de las intensidades difractadas, considerando el modelo de la dispersión cinemática. El fenómeno de extinción resulta en una disminución de la intensidad difractada, que a su vez disminuye las densidades de polos (DPs). El fenómeno aparece en la teoría cinemática de DRX como extinción primaria y extinción secundaria, para caracterizar la pérdida de la intensidad de dispersión cinemática. A su vez, el factor estático de Debye-Waller es una característica integral de los defectos en cristales introducida en la teoría cinemática de DRX y también se utiliza en la teoría dinámica de DRX. En este trabajo se determinó la correlación entre el coeficiente de extinción primaria y el factor estático de Debye-Waller en el caso de níquel con textura. El valor del factor estático de Debye-Waller se determinó a partir del valor del coeficiente de extinción primaria calculado. Para la evaluación, se utilizaron las DPs en el máximo de las FPs obtenidas para las reflexiones 111 y 200 con radiación de  $\text{MoK}\alpha$ , y también las obtenidas para los órdenes primero y segundo de estas reflexiones, con radiaciones de  $\text{Cu K}\alpha$  y de  $\text{Co K}\alpha$ . Usando el valor del factor estático de Debye-Waller y los coeficientes de extinción, se calcularon las densidades de dislocaciones en los granos. Las densidades de dislocaciones calculadas usando estas dos características son prácticamente iguales.

*Descriptores:* Difracción de rayos X; extinción; factor estático; textura; microestructura.

The texture analysis using X-ray diffraction (XRD) implies measurement of pole figures (PFs) from the diffracted intensities considering the model of kinematical dispersion. The extinction phenomenon results in a decrease of diffracted intensity and that in turn in a decrease of pole densities (PDs). The phenomenon appears in the kinematical theory of XRD as the primary extinction and the secondary extinction to characterize the loss of intensity of kinematical dispersion. In turn, the static Debye-Waller factor is an integral characteristic of defects in crystals that is introduced in the kinematical theory of XRD and also is used in dynamical theory of XRD. In this work the correlation between the primary extinction coefficient and the static Debye-Waller factor in the case of textured nickel was determined. The value of static Debye-Waller factor was determined from the value of the calculated primary extinction coefficient. For the evaluation there were used PDs in the maxima of PFs obtained for 111 and 200 reflections with  $\text{MoK}\alpha$  radiation, and the PDs in the maxima of PFs obtained for the first and second orders of these reflections with  $\text{Cu K}\alpha$  and  $\text{Co K}\alpha$  radiations. There were calculated the dislocation densities in grains using values of static Debye-Waller factor and the extinction coefficients. The dislocation densities calculated from these two characteristics are practically equal.

*Keywords:* X-ray diffraction; extinction; static factor; texture; microstructure.

PACS: 61.72.Dd; 61.10.-i

## 1. Introducción

La difracción de rayos X (DRX) es una técnica experimental de investigación de estructura, microestructura y, en particular, textura en materiales policristalinos. La textura cristalográfica es un aspecto de la microestructura desde el punto de vista de la orientación cristalográfica preferencial de los granos que forman un policristal con respecto a un sistema de referencia. La textura surge debido a la anisotropía de un material cristalino. La microestructura también se considera como la distribución y densidad de algunos defectos de la red cristalina en los granos. El análisis cuantitativo de la textura mediante la DRX está basado en las mediciones de las figuras de polos (FPs), que están caracterizadas por las den-

sidades de polos (DPs), obtenidas a partir de las intensidades difractadas de rayos X, aplicando el modelo de la dispersión cinemática [1]. La dispersión cinemática se realiza en cristales pequeños (menores que  $1\ \mu\text{m}$ ) y/o en cristales (los granos de un policristal) con alta densidad de defectos. En la teoría cinemática de DRX se introducen ciertas aproximaciones, en particular, que cada onda dispersada pasa a través del cristal sin reiteración de dispersión, y no hay interferencia entre la onda incidente y la dispersada.

Darwin propuso un modelo de cristal mosaico [2], donde un cristal se describe como un mosaico de bloques cristalinos (dominios) con dimensión promedio  $\sim 10^{-4}\ \text{cm}$ , inclinados uno con respecto al otro, hasta unos minutos de arco formados por dislocaciones en las fronteras de dominios. La

intensidad difractada por todo el cristal es la suma de las intensidades difractadas por todos los dominios, y coincide con la intensidad dispersada de acuerdo con la teoría cinemática. En cristales reales (granos de un policristal) suficientemente grandes y con baja densidad de defectos (dislocaciones), el proceso de dispersión dinámica de rayos X ocurre dentro de los cristales disminuyendo la intensidad difractada, hecho conocido como el fenómeno de extinción (FE). En este caso la teoría cinemática de DRX no es aplicable directamente, y por lo tanto se le introducen correcciones por extinción usando el modelo del cristal mosaico real, tomando en cuenta dos tipos de extinción: la extinción primaria (EP) y la extinción secundaria (ES) [2-4]. La EP aparece en dominios perfectos con tamaño alrededor o más de  $1 \mu\text{m}$  y la ES ocurre en los cristales con dominios similarmente orientados. Las características del FE se determinan por los coeficientes de EP ( $\varepsilon$ ) y de ES ( $g$ ) y se relacionan con las características de la microestructura de los granos del material. En el trabajo [5] se propuso una técnica para la corrección de la DP en el máximo de la FP, y la evaluación de los parámetros de la extinción, bajo ciertas suposiciones para un material que tiene su borde K de absorción lejos de las longitudes de onda de rayos X comúnmente usadas para el análisis de textura.

Muchas observaciones directas de los defectos en cristales demuestran que el modelo de cristal mosaico se tiene en muy pocas ocasiones en cristales reales, y más frecuentemente se observa una distribución arbitraria (caótica) o una agrupación de dislocaciones.

La teoría dinámica de dispersión de rayos X en cristales perfectos ideales está bien desarrollada [6], mientras que no existe una teoría dinámica completa para un cristal real, donde es necesario considerar la influencia de diferentes tipos de defectos sobre la dispersión de rayos X. Los defectos (puntuales o extendidos) inducen desplazamientos estáticos (fijos) entre los átomos de la red cristalina. Para los defectos puntuales, llamados como de primera clase por la clasificación de Krivoglaz [7], las distorsiones disminuyen rápidamente con la distancia como  $\Delta d/d \propto 1/r^2$ , donde  $d$  es la distancia interplanar,  $\Delta d$  es el desplazamiento de átomos y  $r$  es la distancia entre el defecto y el punto de observación. Pero para los defectos extendidos, tales como las dislocaciones (de segunda clase), estas distorsiones disminuyen lentamente de la forma  $\Delta d/d \propto 1/r^{2/3}$  [7]. Los términos de la serie de Fourier de la susceptibilidad eléctrica de rayos X de la red cristalina distorsionada por defectos ( $\chi_{hkl} \propto F_{hkl}$ , donde  $F_{hkl}$  es el factor de estructura), disminuyen de manera similar a la de los desplazamientos térmicos, y pueden ser descritos por el factor estático de Debye-Waller ( $L_c$ ), similar al caso del factor de temperatura de Debye-Waller, y se consideran mutuamente independientes. El factor estático de Debye-Waller está determinado por el campo de desplazamiento alrededor de un defecto individual, y en la teoría cinemática  $L_c \ll 1$  para defectos puntuales, y para dislocaciones  $L_c > 1 \sim N_D$  ( $N_D$  es número total de dislocaciones), respectivamente [7]. El factor estático de Debye-Waller se puede usar para la determinación de los desplazamientos inducidos por los defec-

tos de primera clase y, como propuso Krivoglaz, la distribución de probabilidad de desplazamiento estático no es Gaussiana [8,9].

El desarrollo teórico y experimental de la dispersión dinámica de rayos X demuestra que para los defectos de primera clase, el concepto del factor estático de Debye-Waller coincide y es análogo a  $L_c$  en la teoría cinemática ( $L \ll 1$ , donde  $L$  es el factor para la dispersión dinámica). La intensidad dispersada contiene una componente de dispersión coherente de un cristal perfecto disminuida debido a que la susceptibilidad eléctrica cambia como  $\chi_{hkl}e^{-L}$  y una componente de dispersión difusa (incoherente) proporcional a  $L$  [10,11]. Sin embargo, los conceptos de la teoría cinemática para las dislocaciones como defectos de segunda clase no pueden trasladarse directamente a la teoría dinámica porque esto implicaría que el factor estático es del orden del número total de dislocaciones en el cristal [7], cancelando completamente la componente coherente y solo resulta en la componente de dispersión difusa.

Las investigaciones de dispersión de rayos X en cristales con baja densidad de dislocaciones (hasta  $10^9 \text{ cm}^{-2}$ ) indican que parcialmente se tiene la componente coherente. Por ejemplo, las oscilaciones de la intensidad difractada en dependencia del espesor de la muestra (efecto pendellösung) han sido observadas para cristales de silicio que tienen dislocaciones [12]. El periodo de estas oscilaciones se usó para determinar  $L$ , el cual fue mucho menor que la unidad. La observación del efecto Borrmann (transmisión de rayos X anómala) en cristales con dislocaciones también confirma la presencia de una parte coherente en la dispersión dinámica [13]. Aún no ha sido encontrada la solución exacta como una expresión general para la dispersión dinámica de rayos X en un cristal que contiene dislocaciones. En el artículo [14] se propone representar los cristales reales con baja densidad de dislocaciones como un cristal ideal, donde existen regiones distorsionadas alrededor de cada dislocación en forma de un cilindro de radio  $\sim 10^{-4} \text{ cm}$ , que ocupan una parte del volumen de cristal, donde la dispersión es cinemática y en el volumen restante la dispersión es dinámica. Con los mismos fundamentos físicos se ha desarrollado una teoría aproximada [15] en la cual se propone que en los cristales con dislocaciones, la dispersión de rayos X dinámica ocurre lejos de las dislocaciones a una distancia aproximadamente igual a la longitud de extinción  $\Lambda$  en el campo de deformaciones, donde la deformación  $\Delta d/d$  es menor que el ancho natural de la curva de dispersión dinámica, lo cual efectivamente incrementa el tamaño de las regiones que dispersan coherentemente y reduce el factor estático  $L_c$  introducido en la teoría cinemática. En la teoría aproximada se propone una normalización del factor estático de Debye-Waller de la teoría cinemática de DRX como  $L \sim N_d/N_{dc}$ , donde  $N_d$  es la densidad de dislocaciones en un cristal, y  $N_{dc} \sim \Lambda^{-2}$  es una densidad de dislocaciones crítica. En el caso cuando  $N_d < N_{dc}$  el cristal en su totalidad dispersa como una componente de dispersión dinámica de dominios coherentes y la componente difusa proporcional al factor estático  $L$  normalizado, y bajo la condición

$N_d \geq N_{dc}$  los efectos dinámicos desaparecen y ocurre la dispersión cinemática [15]. En el artículo [16] fue analizada la determinación de la densidad de dislocaciones en monocristales usando el fenómeno de extinción mediante la teoría de dispersión dinámica aproximada y la teoría estadística de Kato de dispersión dinámica.

Por lo tanto, cuando existe dispersión dinámica parcial de rayos X, la intensidad difractada de un cristal real, puede ser considerada desde dos puntos de vista: la teoría cinemática con la corrección por el fenómeno de extinción y la teoría dinámica con el factor estático de Debye-Waller.

En este trabajo, se busca encontrar la relación entre el coeficiente de extinción primaria y el factor estático de Debye-Waller, determinar el valor del factor estático, usando el valor del coeficiente de extinción primaria obtenido para diferentes direcciones de difracción, en las muestras policristalinas de níquel con textura utilizando las DPs en el máximo de las FPs, y calcular las densidades de dislocaciones usando el factor estático de Debye-Waller y los parámetros de extinción obtenidos.

## 2. Muestras y métodos de investigación

Muestras de níquel comercial con un porcentaje de laminado en frío de 75 % y muestras con laminado y recocido posterior a temperatura de 600°C durante 30 minutos, fueron utilizadas para las mediciones de FPs mediante la técnica de DRX. Las FPs se midieron usando una malla de colección de 5 × 5 grados (inclinación y rotación) para las direcciones cristalográficas  $\langle 111 \rangle$  y  $\langle 200 \rangle$ . Dos radiaciones no polarizadas de Cu K $\alpha$  y Co K $\alpha$  fueron utilizadas para las mediciones de primeros y segundos órdenes de reflexión para determinar los parámetros de extinción. También se midieron FPs para reflexiones 111 y 200 usando radiación de Mo K $\alpha$  no polarizada. Para mejorar la estadística de datos, se dio a las muestras un movimiento oscilatorio a lo largo de la dirección de laminación con una amplitud de 4-6 mm para obtener un promedio sobre un número representativo de granos difractados de la muestra. Las correcciones convencionales (por normalización, desenfoque y fondo) de las FPs se realizaron elaborando una muestra de polvo de Ni estándar y midiéndola con las mismas condiciones de medición que las muestras con textura, para todas las reflexiones con todas las radiaciones mencionadas. El tiempo de medición de las FPs para los segundos órdenes de reflexión fue varias veces mayor que el de las de los primeros órdenes de reflexión. Estas mediciones se realizaron usando la cuna de Euler asociada a un difractómetro D8 Discover marca Bruker. El análisis de los datos se realizó usando el paquete para textura de popLA (preferred orientation package - Los Alamos).

## 3. Resultados experimentales

Como se mencionó anteriormente, la técnica del análisis de textura mediante DRX [5] en el caso de la influencia del

fenómeno de extinción sobre las intensidades difractadas para la corrección de DP por la extinción, y la determinación de las características de extinción primaria y secundaria utiliza ciertas suposiciones para un material que tiene su borde K de absorción lejos de las longitudes de onda de rayos X comúnmente usadas. Para las muestras de níquel la técnica puede ser aplicada después de haber validado las suposiciones propuestas, puesto que la longitud de onda del borde K de absorción para níquel ( $\lambda_{K(\text{Ni})} = 0.149$  nm) está localizada dentro de dichas longitudes de onda.

La primera aproximación fue usada para el coeficiente de la extinción primaria ( $\varepsilon$ ), se asumió que el coeficiente para bajos índices de reflexión no depende de la longitud de onda usada, y se consideró constante e igual al valor promedio para diferentes longitudes de onda.

El coeficiente de extinción primaria  $\varepsilon$  comúnmente se presenta en la forma [17]:

$$\varepsilon = \frac{\tanh(pq)}{pq}, \quad (1)$$

donde  $p$  es la cantidad de capas atómicas en el volumen del cristalito en la dirección de difracción,  $q$  es la amplitud dispersada por un plano atómico.

Por otra parte, la teoría dinámica introduce el concepto de la longitud de extinción  $\Lambda$  [6] y en el caso de la aproximación de dos ondas para la geometría simétrica de Bragg (reflexión), es posible presentar la longitud de extinción  $\Lambda$  [5] como:

$$\Lambda = \frac{\nu_a \sin \theta}{|C_{\text{din}}| r_0 \lambda F_T} = \frac{1}{2d} \frac{\nu_a}{|C_{\text{din}}| r_0 F_T}, \quad (2)$$

donde  $\nu_a$  es el volumen de la celda unitaria,  $\theta$  es el ángulo de difracción,  $d$  es la distancia interplanar,  $r_0$  es el radio clásico de electrón,  $\lambda$  es longitud de la onda dispersada,  $C_{\text{din}} = (1 + |\cos 2\theta|)/2$  es el factor de polarización para la dispersión dinámica,  $F_T$  es el factor de estructura con el factor de temperatura de Debye-Waller. Usando la ecuación para la longitud de extinción  $\Lambda$  y la ecuación para la amplitud dispersada  $q$  por un plano atómico [17], se obtiene que el producto de  $pq$  es:

$$pq = l/\Lambda, \quad (3)$$

donde  $l$  es el espesor de cristalito en la dirección de difracción. Así, el coeficiente de extinción primaria queda en términos de la longitud de extinción y del espesor  $l$  de los cristalitos (dominio coherente), es decir el tamaño del bloque de mosaico [5]:

$$\varepsilon = \frac{\tanh(l/\Lambda)}{(l/\Lambda)}. \quad (4)$$

El valor de la longitud de extinción (Ec. 2) depende del factor de estructura que a su vez depende de la amplitud de dispersión atómica, la cual para una reflexión dada es una constante para diferentes longitudes de onda y también depende de las correcciones de dispersión, las cuales son

TABLA I. Valores de las longitudes de extinción para níquel calculados para el primer y segundo orden de reflexión usando las radiaciones de Cu, Co, y Mo  $K\alpha$ .

Radiación	$\Lambda_{111}$ ( $\mu\text{m}$ )	$\Lambda_{222}$ ( $\mu\text{m}$ )	$\Lambda_{200}$ ( $\mu\text{m}$ )	$\Lambda_{400}$ ( $\mu\text{m}$ )
Co	0.73	2.76	1.02	—
Cu	0.68	3.42	0.91	3.44
Mo	0.49	1.69	0.59	2.26

determinadas por la razón de la longitud de onda del borde  $K$  de absorción para la muestra y la radiación usada. Por lo tanto, la variación de la longitud de extinción para una reflexión dada en dependencia de la longitud de onda usada debe ser examinada para las muestras de níquel.

La siguiente aproximación importante de la técnica propuesta [5] establece que para las reflexiones de segundo orden el coeficiente de extinción primaria ( $\varepsilon$ ) es igual a la unidad. Esta aproximación es aplicable cuando el incremento de las longitudes de extinción para las reflexiones de segundo orden es varias veces mayor que las longitudes de extinción para las reflexiones de primeros órdenes y en consecuencia la sensibilidad a la extinción primaria decrece notablemente.

Las longitudes de extinción calculadas para las diferentes radiaciones y para los primeros y segundos órdenes de reflexión para níquel se presentan en la Tabla I.

De la Tabla I es posible ver que las longitudes de extinción para las reflexiones de primer orden (reflexiones 111 y 200) no cambian esencialmente para las radiaciones de Cu  $K\alpha$  y Co  $K\alpha$ , sin embargo para la radiación de Mo  $K\alpha$  esta diferencia es superior al 25%. Esto justifica que la primera aproximación es aplicable para el uso del promedio del coeficiente de extinción primaria para radiaciones de Cu  $K\alpha$  y Co  $K$ . También la segunda aproximación es válida para radiación de Cu  $K\alpha$  ya que las longitudes de extinción para los segundos órdenes de reflexión se incrementan en 4-5 veces con respecto a las longitudes para los primeros órdenes de reflexión.

Por lo tanto, se puede aplicar el siguiente sistema de tres ecuaciones para la corrección de las DPs en el máximo de FPs ( $P_{\text{cor}}$ ) para muestras de níquel, usando dos ecuaciones para DPs medidas para la reflexión de primer orden con radiaciones de Cu  $K\alpha$  y Co  $K\alpha$ , y una ecuación para la DP medida para segundo orden de reflexión con radiación de Cu  $K\alpha$ , como fue propuesto por [5]:

$$\begin{aligned}
 P_{m(\lambda_1)}^{hkl}(\mu_1 + g\varepsilon Q_{\text{cin}1} C_2/C_1^2) &= P_{\text{cor}}\mu_1\varepsilon \\
 P_{m(\lambda_2)}^{hkl}(\mu_2 + g\varepsilon Q_{\text{cin}2} C_2/C_1^2) &= P_{\text{cor}}\mu_2\varepsilon, \\
 P_{m(\lambda_2)}^{2(hkl)}(\mu_2 + gQ_{\text{cin}3} C_2/C_1^2) &= P_{\text{cor}}\mu_2
 \end{aligned}
 \tag{5}$$

donde  $P_m$  es la DP medida,  $\lambda$  es la longitud de onda usada. El efecto de la extinción secundaria está introducido como el término adicional  $gQ_{\text{cin}} C_2/C_1^2$  al coeficiente de absorción lineal  $\mu$  [2,3]. Este término depende de la potencia integrada de reflexión cinemática por unidad de volumen  $Q_{\text{cin}}$  [17]:

$$Q_{\text{cin}} = \frac{r_0^2 \lambda^3 |F_H|^2}{\text{sen } 2\theta \nu_a^2}, \tag{6}$$

así como del factor de polarización para dispersión cinemática  $C_n = (1 + \cos^{2n} 2\theta)/2$ , y del coeficiente de la extinción secundaria  $g$  que es constante para un cristal mosaico en cada dirección cristalográfica  $\langle hkl \rangle$ . El coeficiente de la extinción secundaria  $g$  depende del ángulo promedio  $\bar{u}$  de desorientación de los dominios (cristalitos) en los granos de la muestra para una distribución Gaussiana [14] como  $g = 1/(2\bar{u}\sqrt{2\pi})$ . Es posible evaluar la influencia de la extinción secundaria como la razón entre los valores de  $\mu$  y  $Q_{\text{cin}} C_2/C_1^2$  para diferentes longitudes de onda de radiación y ordenes de reflexión. Los valores del coeficiente de absorción lineal  $\mu$  para níquel con diferentes radiaciones son:  $\mu_{\text{Co}} = 628.15 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\mu_{\text{Cu}} = 407.19 \text{ cm}^{-1}$  y  $\mu_{\text{Mo}} = 415.21 \text{ cm}^{-1}$  [18]. Los valores del término  $Q_{\text{cin}} C_2/C_1^2$  calculados están presentados en la Tabla II.

Resolviendo el sistema de tres ecuaciones (5) se determinan los valores de los coeficientes de la extinción primaria y de la extinción secundaria. A partir del parámetro de la extinción primaria se determina la razón  $l/\Lambda$  usando las Tablas Internacionales para Cristalografía de rayos X [18] y se obtiene el valor del espesor promedio del cristalito  $l$ , así como el parámetro de extinción secundaria y el ángulo promedio  $\bar{u}$  de desorientación de los dominios. Partiendo del concepto de un cristal mosaico es posible evaluar la densidad de dislocaciones  $N_d$  en las fronteras de los cristalitos usando los valores del espesor de cristalito y ángulo promedio de desorientación como [19]:

$$N_d = \frac{\sqrt{2} \bar{u}}{3\sqrt{\pi} lb}, \tag{7}$$

donde  $b$  es la magnitud del vector de Burgers para níquel. El níquel tiene la estructura cúbica centrada de las caras, y para los cálculos de densidad de dislocaciones se usó como primera aproximación solo el valor del vector de Burgers para dislocaciones de borde perfectas, como  $b = (a/2)$  [110], donde  $a$  es el parámetro de celda unitaria de níquel.

Como se ha mencionado anteriormente, la intensidad dispersada por los cristales con dislocaciones se puede presentar en base a los conceptos de la teoría dinámica aproximada y el factor estático de Debye-Waller normalizado. Tomado en

TABLA II. Valores del término ( $Q_{\text{cin}} C_2/C_1^2$ ) calculados para níquel usando las radiaciones de Co  $K\alpha$ , Cu  $K\alpha$  y Mo  $K\alpha$ .

hkl	$(Q_{\text{cin}} C_2/C_1^2)_{\text{Co}}$ ( $\text{cm}^{-1}$ )	$(Q_{\text{cin}} C_2/C_1^2)_{\text{Cu}}$ ( $\text{cm}^{-1}$ )	$(Q_{\text{cin}} C_2/C_1^2)_{\text{Mo}}$ ( $\text{cm}^{-1}$ )
111	1.424	1.034	0.273
200	1.236	0.849	0.206
222	0.468	0.449	0.063
400	-	0.267	0.047

cuenta que en el caso de relativamente baja densidad de dislocaciones ( $N_d < N_{dc}$ ), el factor estático de Debye-Waller es menor que la unidad, y el cristal dispersa como una componente de dispersión dinámica de dominios coherentes, disminuida por el factor estático ( $e^{-L}$ ) y la componente difusa, proporcional al factor estático  $L$  normalizado, es posible presentar la potencia de reflexión integrada de un cristal con defectos  $R_i$  como [10,11]:

$$R_i = R_i^p e^{-L} + R_i^c (1 - e^{-2L}), \quad (8)$$

donde  $R_i^p$  y  $R_i^c$  - son las potencias de reflexión integradas para un cristal perfecto ideal (dispersión dinámica) y un cristal de modelo mosaico ideal (dispersión cinemática), respectivamente. Los valores de las potencias de reflexión  $R_i^p$  y  $R_i^c$  dependen del material investigado, de la longitud de onda de rayos X usada y del factor de estructura  $F$ , que a su vez depende del orden de reflexión. Estos valores se calculan a partir de las ecuaciones [20]:

$$R_i^p = \frac{8\lambda^2 F r_0}{3\pi\nu_a \sin(2\theta)} C_{\text{din}} \quad (9)$$

$$R_i^c = \frac{\lambda^3 F^2 r_0^2}{2\mu\nu_a^2 \sin(2\theta)} C_{\text{cin}} = \frac{Q}{2\mu}. \quad (10)$$

La potencia de reflexión integrada por un cristal con defectos (las dislocaciones aleatoriamente distribuidas)  $R_i$  desde el punto de vista de la teoría cinemática con corrección por el fenómeno de extinción primaria  $\varepsilon$  es:

$$R_i = R_i^c \varepsilon. \quad (11)$$

La razón de la potencia de reflexión de un cristal mosaico ideal y un cristal perfecto ideal se define como  $B = R_i^c/R_i^p$ . Al dividir las Ecs. (8) y (11) entre  $R_i^c$  se obtiene una ecuación para la razón de la potencia de reflexión de un cristal real con las dislocaciones aleatoriamente distribuidas y un cristal mosaico ideal, y su valor es igual al coeficiente de la EP  $\varepsilon$ :

$$R_i/R_i^c = e^{-L}/B + (1 - e^{-2L}) = \varepsilon. \quad (12)$$

En los materiales con textura la densidad de polos se determina como  $P = I_m/I_p$ , donde  $I_m$  e  $I_p$  son las intensidades difractadas de un policristal con textura y del polvo estándar, respectivamente. Tomando en cuenta que las mediciones se realizan con las mismas condiciones es posible presentar la razón entre las intensidades, como la razón entre la potencia de reflexión de una muestra con textura, y la del polvo estándar (mosaico ideal). Utilizando una radiación con longitud de onda de rayos X corta, tal como la Mo  $K\alpha$ , para los primeros índices de reflexión de níquel, en los cuales la dispersión dinámica es fuerte, puesto que sus longitudes de extinción para los primeros índices de reflexión son menores con respecto a las de otras radiaciones usadas (Tabla I), el efecto de la extinción secundaria se puede despreciar ya que el valor del término ( $Q_{\text{cin}} C_2/C_1^2$ ) es pequeño con respecto al coeficiente de absorción lineal  $\mu$  comparando con las otras radiaciones (Tabla II). Por lo tanto es posible no tomar en

cuenta la extinción secundaria y presentar la DP afectada por el fenómeno de extinción como  $P_m = P_{\text{real}} \cdot \varepsilon$ , donde  $P_{\text{real}}$  es la DP no afectada por la extinción (dispersión cinemática). Para observar la dispersión cinemática en muestras de níquel con textura usando radiación de Mo  $K\alpha$  es necesario realizar mediciones de altos órdenes de reflexión para los cuales la longitud de extinción es suficientemente grande, y se llega al límite de aumento de la DP, es decir que no está afectada por el fenómeno de extinción. No obstante, las intensidades difractadas para estas reflexiones son muy bajas y para el polvo estándar se confunden con el fondo. Una opción es utilizar las densidades de polos corregidas  $P_{\text{corr}}$  por extinción para las reflexiones 111 y 200 obtenidas resolviendo el sistema de tres Ecs. (5).

De esta manera, para encontrar la relación entre el coeficiente de extinción primaria y el factor estático en los materiales con textura es necesario resolver la ecuación:

$$e^{-L} + B - B e^{-2L} = B\varepsilon = B P_m / P_{\text{corr}}. \quad (13)$$

El factor estático de Debye-Waller ( $L$ ) se calculó usando la ecuación:

$$L = -\ln \left\{ \frac{1}{2B} + \frac{1}{2} \sqrt{\frac{1}{B^2} + 4(1 - \varepsilon)} \right\}. \quad (14)$$

Además es posible calcular la densidad de dislocaciones  $N_d$  usando el factor estático de Debye-Waller para diferentes reflexiones  $H$  como:

$$N_d = \frac{4\pi}{(Hb\lambda)^2} L_H, \quad (15)$$

donde  $H$  es la magnitud del vector de red recíproca ( $H = 4\pi \sin \theta / \lambda$ ) y  $b$  es la magnitud del vector de Burgers.

Al principio, la formación de textura en las muestras con laminado en frío y con laminado y recocido posterior se verificó comparando los patrones de difracción medidos y el patrón de difracción simulado para Ni con radiación de Cu  $K\alpha$ . Las posiciones de los picos medidos no varían para diferentes muestras y coinciden con los ángulos de difracción simulados. Mientras que las distribuciones de las intensidades de los picos no coinciden con las simuladas y cambian dependiendo del tratamiento de la muestra, debido a la textura.

La información sobre el tamaño y forma de los granos fue obtenida usando la metalografía en la cara de uno de los bordes de las muestras. En la muestra laminada se observan granos de tamaños heterogéneos con las longitudes del orden de 500  $\mu\text{m}$  en la dirección de laminación y del ancho de 30  $\mu\text{m}$  en la dirección transversal. En el proceso de recocido los granos cambian de tamaño y forma. Los granos se vuelven casi equiaxiales con longitudes del orden de 70  $\mu\text{m}$ . Tomando en cuenta los valores de las longitudes de extinción para el níquel calculadas (Tabla I), las variaciones dentro del tamaño de grano no pueden producir modificaciones a los parámetros de extinción. En este caso, los parámetros de extinción varían en dependencia de los cambios en la microestructura dentro

TABLA III. Valores de las DPs en el máximo de las FPs obtenidos ( $P_{(hkl)\lambda}$ ) y corregidos ( $P_{corr}$ ), parámetros de extinción ( $\varepsilon, g$ ) calculados y características de microestructura de granos ( $l, \bar{u}$ ) evaluados.

Muestra	$\langle hkl \rangle$	$P_{(hkl)Cu}$	$P_{(hkl)Cu}$	$P_{2(hkl)Cu}$	$P_{corr}$	$\varepsilon$	$g$	$l, \mu m$	$\bar{u}, min$
Laminada	$\langle 111 \rangle$	6.89	7.38	8.94	9.62	0.93	83	0.3	8.42
Recocida	$\langle 111 \rangle$	4.57	5.00	11.74	14.07	0.46	162	1.54	4.21
Laminada	$\langle 200 \rangle$	6.68	6.94	9.11	10.39	0.83	192	0.87	3.58
Recocida	$\langle 200 \rangle$	9.78	11.49	20.13	25.80	0.41	661	1.94	1.03

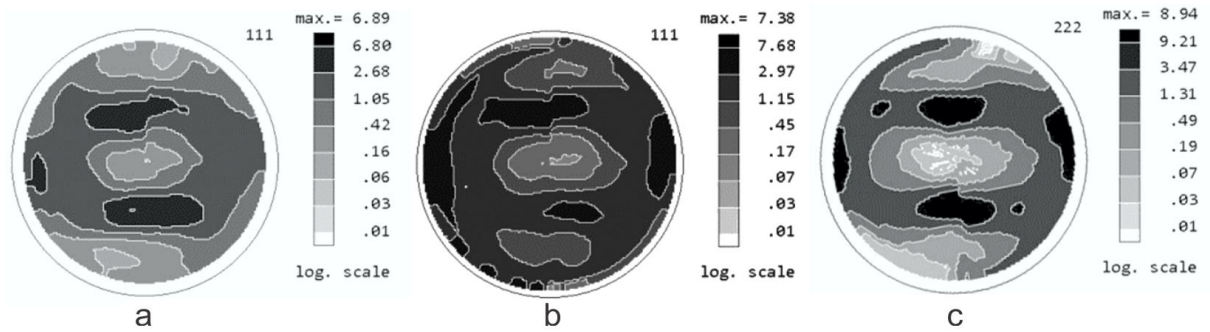


FIGURA 1. Figuras de polos normalizadas de níquel laminado en frío al 75 %, medidas para la reflexión 111 con radiación de Cu  $K\alpha$  (a) y Co  $K\alpha$  (b), y para la reflexión 222 con radiación de Cu  $K\alpha$  (c).

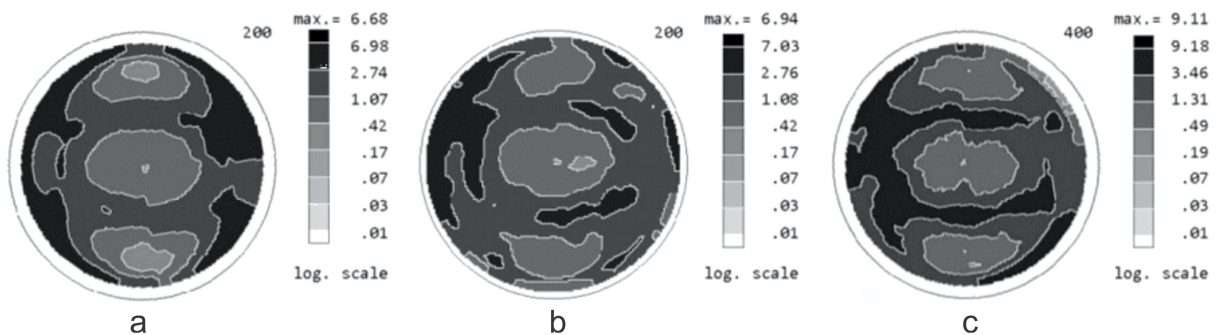


FIGURA 2. Figuras de polos normalizadas de níquel laminado en frío al 75 %, medidas para reflexión 200 con radiación de Cu  $K\alpha$  (a) y Co  $K\alpha$  (b), y para reflexión 400 con radiación de Cu  $K\alpha$  (c).

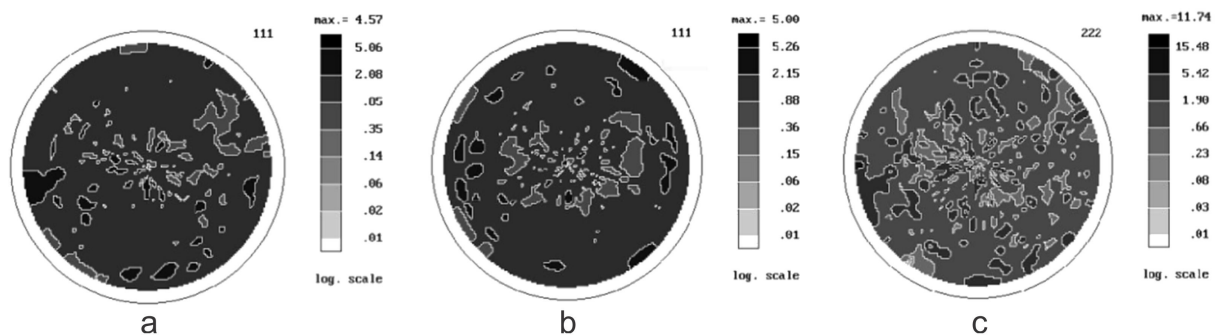


FIGURA 3. Figuras de polos normalizadas de níquel laminado en frío y recocido a 600°C, medidas para la reflexión 111 con radiación de Co  $K\alpha$  (a) y Cu  $K\alpha$  (b), y para la reflexión 222 con radiación de Co  $K\alpha$  (c).

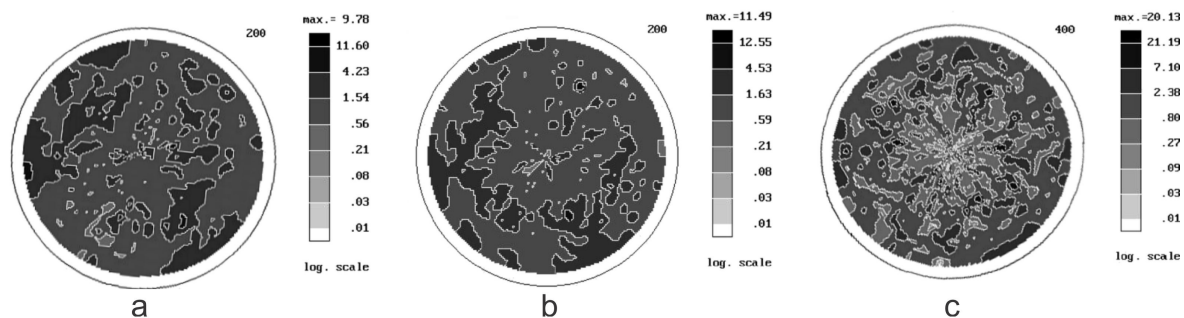


FIGURA 4. Figuras de polos normalizadas de níquel laminado en frío y recocido a  $600^{\circ}\text{C}$ , medidas para la reflexión 200 con radiación de  $\text{Cu K}\alpha$  (a) y  $\text{Co K}\alpha$  (b), y para la reflexión 400 con radiación de  $\text{Cu K}\alpha$  (c).

de los granos, tales como la distribución y densidad de dislocaciones en los granos.

Para determinar los parámetros de extinción y de la DP en el máximo corregida ( $P_{\text{real}}$  no afectada por la extinción) se midieron las FPs para la muestra de níquel laminada en frío para los órdenes primero y segundo de reflexión para las direcciones  $\langle 111 \rangle$  y  $\langle 200 \rangle$  con radiaciones de  $\text{Cu K}\alpha$  y  $\text{Co K}\alpha$ . FPs normalizadas se presentan en las Figs. 1 y 2. Para ambas direcciones se observa una diferencia insignificante entre los máximos de DPs medidas para el primer orden de reflexión con radiaciones diferentes, lo cual concuerda con la primera aproximación para el coeficiente de extinción primaria para níquel usando radiaciones de  $\text{Cu K}\alpha$  y  $\text{Co K}\alpha$ . También se observa un incremento en el máximo de la DP en la FP medida para el segundo orden de reflexión con respecto a los máximos de las DPs en las FPs medidas para el primer orden de reflexión lo que confirma la presencia del fenómeno de extinción.

Las Figs. 3 y 4 muestran las FPs medidas para las direcciones  $\langle 111 \rangle$  y  $\langle 200 \rangle$  con radiaciones de  $\text{Cu K}\alpha$  y  $\text{Co K}\alpha$  para el primer y segundo órdenes de reflexión para la muestra de níquel laminada con recocido posterior a temperatura de  $600^{\circ}\text{C}$ . Para esta muestra los máximos de la DPs para la reflexión 111 son de 5.0 y de 4.57 medidas con radiación de  $\text{Cu K}\alpha$  y con  $\text{Co K}\alpha$ , respectivamente (Figs. 3a y 3b). Una vez más se observa una diferencia insignificante entre los máximos de DPs medidas para el primer orden de reflexión con radiaciones diferentes. La DP para la reflexión 222 es de 11.74 en la FP medida con radiación de  $\text{Cu K}\alpha$ , es decir la DP para el segundo orden de reflexión aumentó más que en dos veces con respecto al primer orden de reflexión (Fig. 3c). La Fig. 4 muestra los resultados similares para las FPs normalizadas medidas para la dirección  $\langle 200 \rangle$  usando las radiaciones  $\text{Cu K}\alpha$  y  $\text{Co K}\alpha$  para el primer orden de reflexión 200 y para el segundo orden de reflexión 400 con radiación de  $\text{Cu K}\alpha$ . Los resultados obtenidos implican que el efecto del fenómeno de extinción disminuye considerablemente. Para validar la segunda aproximación para las reflexiones del segundo orden, donde se supone que el coeficiente de extinción primaria ( $\varepsilon$ ) es igual a la unidad, se evaluaron los resultados obtenidos. Cuando se desprecia la extinción

secundaria ( $g = 0$ ), la evaluación muestra que la razón  $P_{(hkl)}/P_{2(hkl)} = \varepsilon$  está asociada con el coeficiente de extinción primaria. El valor de  $\varepsilon$  para la reflexión de primer orden es alrededor de 0.4 y la razón  $l/\Lambda$  es aproximadamente igual a 2 [18]. El tamaño del dominio coherente  $l$  es constante para una microestructura de granos dados en una dirección cristalográfica fija. Tomando en cuenta los valores calculados de longitudes de extinción  $\Lambda$  para los primeros, y los segundos ordenes de reflexiones (Tabla I) se puede ver que la razón  $l/\Lambda$  para las reflexiones de segundo orden con radiación de  $\text{Cu K}\alpha$  disminuye hasta 0.3-0.4 y el coeficiente de extinción primaria es aproximadamente de 0.96-0.95.

También se observa que en la muestra laminada con recocido posterior a temperatura de  $600^{\circ}\text{C}$  se tiene una fuerte influencia del fenómeno de extinción sobre las intensidades difractadas comparando con la muestra solo laminada en frío.

Los valores de las DPs en el máximo de las FPs medidas para las muestras de níquel laminadas y con recocido posterior usando radiaciones de  $\text{Cu K}\alpha$  y  $\text{Co K}\alpha$  para primer y segundo orden de reflexión para diferentes direcciones cristalográficas, las DPs corregidas ( $P_{\text{corr}}$ ), los parámetros de extinción primaria ( $\varepsilon$ ) y extinción secundaria ( $g$ ) calculadas usando el sistema de Ecs. (5), así como los valores de los tamaños del cristalito ( $l$ ) [18] y el ángulo promedio de desorientación ( $\bar{u}$ ) se presentan en la Tabla III.

Las mismas muestras de níquel se utilizaron para las mediciones de las FPs para las direcciones cristalográficas  $\langle 111 \rangle$  y  $\langle 200 \rangle$  usando la radiación de  $\text{Mo K}\alpha$ . Se presentan las FPs para las muestras de níquel laminado en frío y laminado en frío con recocido posterior a temperatura de  $600^{\circ}\text{C}$  obtenidas para la reflexión 111 en Figs. 5a y 5b y para la reflexión 200 en las Figs. 6a y 6b.

Se hace notar que los valores de DPs en el máximo de las FPs obtenidos con radiación de  $\text{Mo K}\alpha$  son menores a los obtenidos con respecto a las radiaciones de  $\text{Cu K}\alpha$  y de  $\text{Co K}\alpha$  para el primer orden de las reflexiones. Esta diferencia se debe a un efecto mayor de la extinción primaria en las mediciones con radiación de molibdeno.

En la Tabla IV se presentan los valores de las DPs en el máximo de las FPs medidas para las muestras de níquel laminado y con recocido posterior usando la radiación de

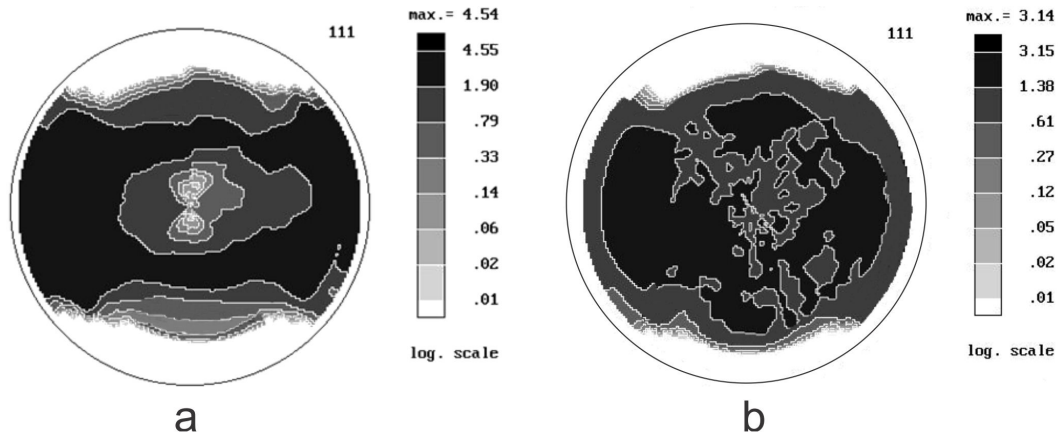


FIGURA 5. FPs normalizadas para las muestras de níquel laminado en frío (a) y laminado con un recocido posterior a temperatura de 600°C (b) para la reflexión 111 (radiación de Mo K $\alpha$ ).

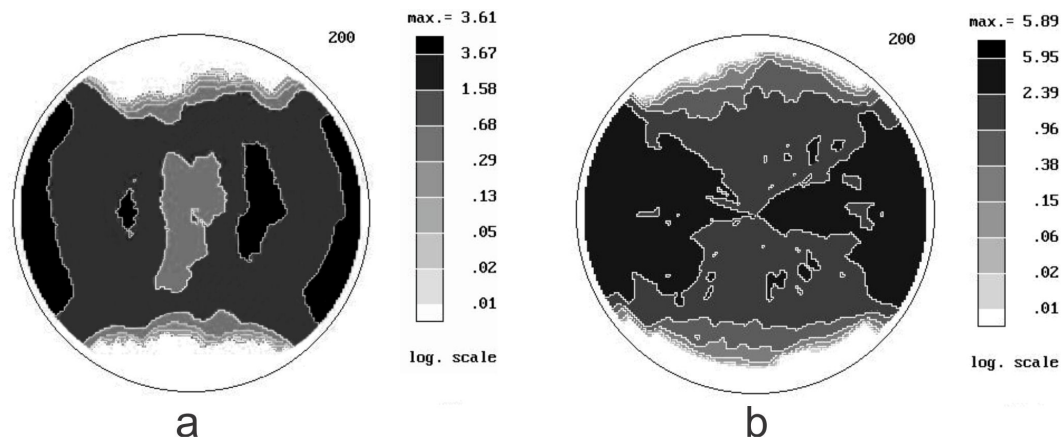


FIGURA 6. FPs normalizadas para las muestras de níquel laminado en frío (a) y laminado con un recocido posterior a temperatura de 600°C (b) para la reflexión 200 (radiación de Mo K $\alpha$ ).

TABLA IV. Valores de las DPs en el máximo de las FPs medidas con radiación de Mo K $\alpha$  para las reflexiones 111 y 200 ( $P_m$ ) y de las DP corregidas por extinción ( $P_{corr}$ ), los coeficientes de EP calculados ( $\epsilon_{Mo}$ ), los factores estáticos de Debye-Waller ( $L$ ) y las densidades de dislocaciones ( $N_d$ ).

Muestra	$\langle hkl \rangle$	$P_m$	$P_{corr}$	$\epsilon_{Mo}$	$L$	$N_d \times 10^{-8} \text{cm}^{-2}$	$N_d(g,\epsilon) \times 10^{-8} \text{cm}^{-2}$
Laminado	111	4.54	9.62	0.472	0.188	6.57	8.72
Recocido	111	3.14	14.07	0.223	0.019	0.68	0.85
Laminado	200	3.61	10.39	0.347	0.087	2.09	1.32
Recocido	200	5.89	25.80	0.228	0.014	0.33	0.20

Mo K $\alpha$  ( $P_m$ ) y las DPs corregidas ( $P_{corr}$ , Tabla III) para diferentes direcciones cristalográficas  $\langle hkl \rangle$ , los valores del coeficiente de extinción primaria calculados para las mediciones con radiación de molibdeno ( $\epsilon_{Mo}$ ), el factor estático de Debye-Waller  $L$  y las densidades de dislocaciones evaluadas usando el factor estático ( $N_d$ , Ec. 15) y las densidades de

dislocaciones evaluadas usando los valores de los parámetros de extinción ( $N_d(g, \epsilon)$ , Ec. 7) para las muestras de níquel laminado en frío y con un recocido posterior.

De la Tabla IV es posible observar que los valores del factor estático de Debye-Waller normalizado son menores que la unidad, aun para la muestra laminada (alta densidad de dis-



locaciones), lo que nuevamente puede confirmar la necesidad de normalizar el factor estático de Debye-Waller para la dispersión dinámica en cristales con dislocaciones. Las densidades de dislocaciones calculadas usando un modelo de cristal mosaico y la distribución arbitraria (caótica) de dislocaciones tienen el mismo orden y no difieren mucho. La densidad de dislocaciones  $N_d$  calculada usando la distribución de dislocaciones arbitraria (por ejemplo, muestra recocida, reflexión 111), indica que se puede observar casi una dislocación por  $\mu\text{m}^2$ , lo cual quiere decir que se tiene un área coherente de  $1.47 \mu\text{m}^2$ . En el caso del modelo de cristal mosaico se menciona que las dislocaciones están en las fronteras de los dominios coherentes, y de la Tabla III para esta muestra y reflexión se obtiene que los tamaños del cristalito (área coherente) son de  $1.54 \mu\text{m}$ , es decir que estas dos presentaciones de la microestructura dan resultados parecidos.

Las densidades de dislocaciones son diferentes para las diferentes direcciones cristalográficas lo cual está relacionado con la anisotropía de la deformación inelástica de níquel y disminuyen después del recocido a causa de la modificación de la microestructura en los granos durante el proceso de recristalización.

#### 4. Conclusiones

Usando la teoría dinámica para los cristales con dislocaciones aleatoriamente distribuidas y una corrección de la teoría

cinemática por el fenómeno de extinción para cristales reales presentados con un modelo de cristal mosaico se encontró la relación entre el factor estático de Debye-Waller y el coeficiente de extinción primaria en los materiales con textura. Los valores del factor estático de Debye-Waller calculados son menores que la unidad lo cual confirma la validez de la normalización del factor estático de Debye-Waller por longitud de extinción para la dispersión dinámica en cristales con dislocaciones. Los valores de densidades de dislocaciones calculadas usando el factor estático de Debye-Waller y los parámetros de extinción para los dos modelos de distribuciones de dislocaciones, respectivamente, son prácticamente iguales para cada dirección cristalográfica en muestras de níquel con textura.

#### Agradecimientos

Uno de los autores (J. Palacios) desea agradecer a su institución por la concesión de un período sabático para este proyecto.

- 
1. V. Randle, and O. Engler, *Introduction to Texture Analysis Macrotexture, Microtexture and Orientation Mapping* (Gordon and Beach Science Publisher, Amsterdam, 2000).
  2. C.G. Darwin, *Philos. Mag.* **43** (1922) 800.
  3. W.H. Zachariasen, *Acta Cryst.* **16** (1963) 1139.
  4. W.H. Zachariasen, *Acta Cryst.* **23** (1967) 558.
  5. T. Kryshstab, J. Palacios Gómez, M. Mazin, and G. Gómez Gasga, *Acta Materialia* **52** (2004) 3027.
  6. Z.G. Pinsker, *Dynamical Scattering of X-Rays in Crystals* (Springer-Verlag, New York - Berlin - Heidelberg, USA, 1978).
  7. M.A. Krivoglaz, *Theory of X-ray and Thermal Neutron Scattering by Real Crystals* (New York: Plenum, 1969).
  8. H. Metzger, H. Behr, and J. Peisl, *Z. Phys. B - Condensed Matter* **46** (1982) 295.
  9. H. Behr, H. Metzger, and J. Peisl, *J. Appl. Cryst.* **16** (1983) 251.
  10. P.H. Dederichs, *Phys. Rev. B* **1** (1970) 1306-1317.
  11. P.H. Dederichs, *Phys. Rev. B - Solid State* **4** (1971) 1041.
  12. N.M. Olekhovich, A.L. Karpei, A.I. Olekhovich, and L.D. Puzenkova, *Acta Cryst A* **39** (1983) 116.
  13. O.N. Efimov, E.G. Sheikhet, and L.I. Datsenko, *Physica Status Solidi (b)* **38** (1970) 489.
  14. A.N. Ivanov, P.I. Klimanek, and Yu.A. Skakov, *Sov. Phys. Crystallography* **28** (1983) 58.
  15. L.I. Datsenko, M.E. Osinivskii, V.I. Khrupe, T.G. Kryshstab, V.V. Nikolaev, and M.Ya. Skorohod, *Phys. Metals* **9** (1990) 285.
  16. M. Masimov, *Applied Crystallography* **40** (2007) 990.
  17. R.W. James, *The Optical Principles of the Diffraction of X-Rays* (3rd ed. London: G.Bell, 1965).
  18. *International Tables for X-ray Crystallography* (Dordrecht, Boston, London: Kluwer Acad. Publ., 1992).
  19. I.A. Larson, and C.L. Corey, *J. Appl. Phys* **40** (1969) 2708.
  20. B.E. Warren, *X-Rays Diffraction* (Dover publications, INC, New York, 1990).