

(19)



Bureau voor de
Industriële Eigendom
Nederland

(11)

1009012

(12)

C OCTROOI²⁰

(21)

Aanvraag om octrooi: 1009012

(51)

Int.Cl.⁷

G01N23/20

(22)

Ingediend: 28.04.98

(41)

Ingeschreven:
29.10.99

(47)

Dagtekening:
29.10.99

(45)

Uitgegeven:
03.01.2000 I.E. 2000/01

(73)

Octrooihouder(s):
Stichting voor de Technische Wetenschappen
te Nieuwegein.

(72)

Uitvinder(s):
Robertus Wilhelmus Wouterus Hooft te Den
Haag
Albert Jozef Maria Duisenberg te Utrecht
Antonius Matthias Maria Schreurs te
Nieuwerbrug

(74)

Gemachtigde:
Drs. A. Kupecz c.s. te 1000 HB Amsterdam.

(54)

Werkwijze voor het bepalen van celparameters van een kristalstructuur onder toepassing van diffractie.

(57)

De uitvinding heeft betrekking op een werkwijze voor het bepalen van celparameters van een kristalstructuur onder toepassing van diffractie, omvattende de volgende stappen:
a. het met röntgen- of neutronenstralen aanstralen van een over een voorafbepaalde hoek roterend kristal;
b. het detecteren van de door het kristal gereflecteerde straling op een tweedimensionaal detectie-oppervlak;
c. het bepalen van de plaats op het detectie-oppervlak waar de gereflecteerde straling terechtkomt. De stappen a, b en c worden herhaald uitgevoerd waarbij in stap a het kristal telkens over dezelfde hoek roteert. De relatieve beweging van het kristal ten opzichte van het detectie-oppervlak wordt bij de eerste uitvoering van de stappen a, b en c door slechts de rotatie van het kristal bepaald. De relatieve beweging van het kristal ten opzichte van het detectie-oppervlak wordt bij een herhaalde uitvoering van de stappen a, b en c door een aan de eerste uitvoering van de stappen a, b en c gelijke rotatie van het kristal bepaald en door een verdere daaraan gekoppelde relatieve beweging van het kristal ten opzichte van het detectie-oppervlak. Uit de combinatie van de plaatsbepalingen in de herhaald uitgevoerde stappen c wordt de hoekpositie van het kristal ten opzichte van een referentiewaarde bepaald, waarbij reflectie van de straling optreedt.

NL C 1009012

De inhoud van dit octrooi komt overeen met de oorspronkelijk ingediende beschrijving met conclusie(s) en eventuele tekeningen.

Werkwijze voor het bepalen van celparameters van een kristalstructuur onder toepassing van diffractie

De uitvinding heeft betrekking op een werkwijze voor het bepalen van celparameters van een kristalstructuur, in het bijzonder de dimensies en oriëntatie van een eenheidscel, onder toepassing van diffractie, omvattende de volgende stappen: a. het met röntgen- of neutronenstralen aanstralen van een over een voorafbepaalde hoek roterend kristal; b. het detecteren van de door het kristal gereflecteerde straling op een tweedimensionaal detectie-oppervlak; c. het bepalen van de plaats op het detectie-oppervlak waar de gereflecteerde straling terechtkomt.

Een dergelijke werkwijze is bekend uit de praktijk. In de bekende werkwijze wordt op een positiegevoelige detector, bijvoorbeeld een fotogevoelige plaat, gedetecteerd waar de reflecties van de straling die op het kristal is gericht, terechtkomen teneinde uit deze posities door een verdere bewerking de celparameters van de kristalstructuur te bepalen die de desbetreffende reflectieposities op het detectie-oppervlak kan verklaren. In de bekende stand van de techniek wordt het kristal herhaaldelijk over een hoek van bijvoorbeeld 1 of 2° geroteerd. De celparameters van de kristalstructuur die volgens deze bekende stand van de techniek bepaald wordt, is daardoor behept met relatief grote onnauwkeurigheid. Weliswaar is de positie van de reflecties in de twee richtingen van het detectoroppervlak zeer goed bepaald; de stand van het kristal heeft echter een onzekerheid die oploopt tot vele tienden van graden. De eenheidscellen waaruit de kristalstructuur is samengesteld, vertonen dan afwijkingen van enkele honderdsten tot een tiende graad of zelfs meer voor wat betreft de hoeken die in de eenheidscellen kunnen worden onderscheiden. Deze nauwkeurigheid kan worden verbeterd door de rotatie van het kristal tijdens een meting te beperken tot ca. 0,1 of 0,2°, echter het aantal benodigde metingen neemt dan dienovereenkomstig toe.

Met de uitvinding wordt nu beoogd een werkwijze voor het bepalen van de celparameters van een kristalstructuur te

verschaffen, die zich snel laat uitvoeren en weinig meettijd vergt.

Daartoe wordt de werkwijze voor het bepalen van de celparameters van een kristalstructuur onder toepassing van diffractie volgens de uitvinding erdoor gekenmerkt, dat de stappen a, b en c herhaald worden uitgevoerd waarbij in stap a het kristal telkens over dezelfde hoek roteert, dat de relatieve beweging van het kristal ten opzichte van het detectie-oppervlak bij de eerste uitvoering van de stappen a, b en c door slechts de rotatie van het kristal wordt bepaald, dat de relatieve beweging van het kristal ten opzichte van het detectie-oppervlak bij een herhaalde uitvoering van de stappen a, b en c door een aan de eerste uitvoering van de stappen a, b en c gelijke rotatie van het kristal wordt bepaald en door een verdere daaraan gekoppelde relatieve beweging van het kristal ten opzichte van het detectie-oppervlak, en dat uit de combinatie van de plaatsbepalingen in de herhaald uitgevoerde stappen c de hoekpositie van het kristal ten opzichte van een referentiewaarde wordt bepaald, waarbij reflectie van de straling optreedt.

De uitvindingsgedachte is gebaseerd op het inzicht dat tijdens de herhaalde uitvoering van de meting, de plaats van de reflecties op het detectie-oppervlak ten opzichte van de eerdere meting slechts beïnvloed kan zijn door de toegevoegde relatieve beweging van het kristal ten opzichte van het detectie-oppervlak. Doordat de relatieve beweging van het kristal ten opzichte van het detectie-oppervlak die toegevoegd is aan de eveneens bekende rotatie van het kristal bekend is, kan hieruit met op zichzelf bekende technieken de stand van het kristal waarbij de reflecties zijn opgetreden, bepaald worden. Deze stand van het kristal biedt te zamen met de positie van de reflecties op het detectie-oppervlak voldoende informatie om nauwkeuriger dan in de stand van de techniek de celparameters die de kristalstructuur bepalen, af te leiden. De verdere bepaling van de kristalstructuur kan verder buiten toelichting blijven, aangezien deze voor de vakman volledig bekend is.

Diverse uitvoeringsvormen van de werkwijze volgens de uitvinding zijn denkbaar. Een eerste uitvoeringsvorm van

de werkwijze volgens de uitvinding is erdoor gekenmerkt, dat in de eerste uitvoering van de stappen a, b en c het kristal over een eerste voorafbepaalde hoek roteert, en dat in de herhaalde uitvoering van de stappen a, b en c het kristal over de eerste voorafbepaalde hoek roteert en het detectie-oppervlak wordt verplaatst.

Daarbij is wenselijk dat in de herhaalde uitvoering van de stappen a, b en c het kristal over de eerste voorafbepaalde hoek roteert en het detectie-oppervlak over een tweede voorafbepaalde hoek wordt geroteerd. Deze uitvoering laat zich geschikt toepassen in bestaande diffractie-apparatuur, zoals deze bijvoorbeeld op de markt worden gebracht door Nonius B.V. te Delft.

Een tweede uitvoeringsvorm van de werkwijze volgens de uitvinding is erdoor gekenmerkt, dat in de eerste uitvoering van de stappen a, b en c het kristal over de eerste voorafbepaalde hoek roteert, en dat in de herhaalde uitvoering van de stappen a, b en c het kristal over de eerste voorafbepaalde hoek roteert en voorts een op deze rotatie gesuperponeerde beweging ondergaat.

Daarin is het wenselijk dat de gesuperponeerde beweging van het kristal een rotatie in een vlak is dat het rotatievlak, waarin de eerste voorafbepaalde hoek ligt, snijdt. Ook deze werkwijze laat zich goed uitvoeren met de op markt beschikbare bestaande diffractie-apparatuur zoals afkomstig van Nonius B.V. te Delft.

De werkwijze volgens de uitvinding wijkt verder in zoverre van de stand van de techniek af, dat de eerste voorafbepaalde hoek van rotatie van het kristal tijdens de meting ca. 20° of meer bedraagt. Door de metingen met deze relatief grote hoekverdraaiing uit te voeren, kan in slechts twee opvolgende metingen alle nodige informatie voor het bepalen van de celparameters van de kristalstructuur worden verkregen, zelfs van zeer kleine eenheidscellen. Door een geschikte keuze van de additionele relatieve beweging van het detectieoppervlak ten opzichte van het kristal kan bovendien voldoende nauwkeurigheid aan de werkwijze volgens de uitvinding gegeven worden. Wanneer voor het verkrijgen van deze additionele relatieve beweging het detectie-oppervlak bijvoorbeeld

wordt geroteerd, kan de tweede voorafbepaalde hoek op ca. 10° zijn ingesteld. Een dergelijke hoekverplaatsing is ook bruikbaar wanneer de additionele beweging wordt uitgevoerd door het kristal.

5 De uitvinding zal nu nader worden toegelicht aan de hand van de tekening, welke

in fig. 1 schematisch de werkwijze voor het bepalen van een kristalstructuur volgens de stand van de techniek toont; en

10 in fig. 2 de werkwijze voor het bepalen van een kristalstructuur volgens de uitvinding in een voorkeursuitvoeringsvorm toont.

In de figuren gebruikte gelijke verwijzingscijfers verwijzen naar dezelfde onderdelen.

15 In de fig. 1 en 2 is met verwijzingscijfer 1 het kristal aangeduid waarvan de structuur en derhalve de celparameters dienen te worden bepaald. Het kristal 1 wordt met een bundel, bijvoorbeeld een röntgenstraal 2, aangestraald, terwijl het kristal 1 tegelijkertijd over een voorafbepaalde
20 hoek roteert. Dit is in de fig. 1 en 2 aangeduid met het elipsvormige rotatiesymbool met verwijzingsteken φ . De röntgenstraling 2 wordt tijdens de rotatie over een hoek φ door het kristal 1 gereflecteerd, waarbij reflectiebeelden 3, 4 en 5 op het detectie-oppervlak 6 ontstaan. In plaats van
25 röntgenstraling kan ook een andere geschikte straling worden toegepast, zoals neutronenstraling. Het detectie-oppervlak 6 is bijvoorbeeld gevormd door een CCD-camera die deel uitmaakt van een inrichting voor het meten van röntgendiffractie. Uit
30 de positie die de beeldpunten 3, 4 en 5 en verdere op het detectie-oppervlak 6 innemen, worden uiteindelijk de celparameters van het kristal 1 bepaald.

Volgens de uitvinding wordt na het uitvoeren van de werkwijze zoals deze hierboven is toegelicht aan de hand van fig. 1 en waarbij de beeldpunten 3, 4 en 5 zijn ontstaan, een
35 herhaalde meting uitgevoerd, waarbij nogmaals het kristal 1 met röntgenstralen 2 wordt aangestraald, en de gereflecteerde röntgenstralen op het detectie-oppervlak 6 worden gedetecteerd ter bepaling van de dan daarbij optredende beeldposities op het detectie-oppervlak 6. Tijdens deze herhaald uit-

gevoerde meting wordt het kristal 1 over een zelfde hoek φ geroteerd, maar is aan deze beweging die het kristal 1 ten opzichte van het detectie-oppervlak 6 uitvoert, nog een verdere relatieve beweging van het kristal 1 ten opzichte van
 5 het detectie-oppervlak 6 toegevoegd, welke in dit voorkeurs-uitvoeringsvoorbeeld wordt gevormd door een tweede rotatie van het kristal 1 over een hoek χ (zie fig. 2) in een vlak dat het rotatievlak van het kristal waarin de eerste voorafbepaalde hoek φ ligt, snijdt. Uit de combinatie van de
 10 plaatsbepalingen van de beeldpunten 3, 4 en 5 uit de eerste meting met de in de herhaalde meting gevormde beeldpunten 3', 4' en 5' kan dan nauwkeurig de stand of standen van het kristal 1 worden bepaald, waarbij de reflecties van de röntgenstraling 2 zijn opgetreden. Deze standen van het kristal te
 15 zamen met de eerdergenoemde positie van de beeldpunten is voldoende voor de nauwkeurige bepaling van de celdimensies en de oriëntatie van het kristal.

De voorgaande beschrijving van een uitvoeringsvoorbeeld dient slechts ter toelichting van de navolgende conclusies, zonder deze in enig opzicht te beperken in beschermingsomvang.
 20

CONCLUSIES

1. Werkwijze voor het bepalen van celparameters van een kristalstructuur onder toepassing van diffractie, omvattende de volgende stappen:

- a. het met röntgen- of neutronenstralen aanstralen van een over een voorafbepaalde hoek roterend kristal;
 - b. het detecteren van de door het kristal gereflecteerde straling op een tweedimensionaal detectie-oppervlak;
 - c. het bepalen van de plaats op het detectie-oppervlak waar de gereflecteerde straling terechtkomt,
- met het kenmerk, dat de stappen a, b en c herhaald worden uitgevoerd waarbij in stap a het kristal telkens over dezelfde hoek roteert,

dat de relatieve beweging van het kristal ten opzichte van het detectie-oppervlak bij de eerste uitvoering van de stappen a, b en c door slechts de rotatie van het kristal wordt bepaald,

dat de relatieve beweging van het kristal ten opzichte van het detectie-oppervlak bij een herhaalde uitvoering van de stappen a, b en c door een aan de eerste uitvoering van de stappen a, b en c gelijke rotatie van het kristal wordt bepaald en door een verdere daaraan gekoppelde relatieve beweging van het kristal ten opzichte van het detectie-oppervlak,

en dat uit de combinatie van de plaatsbepalingen in de herhaald uitgevoerde stappen c de hoekpositie van het kristal ten opzichte van een referentiewaarde wordt bepaald, waarbij reflectie van de straling optreedt.

2. Werkwijze volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat in de eerste uitvoering van de stappen a, b en c het kristal over een eerste voorafbepaalde hoek roteert, en dat in de herhaalde uitvoering van de stappen a, b en c het kristal over de eerste voorafbepaalde hoek roteert en het detectie-oppervlak wordt verplaatst.

3. Werkwijze volgens conclusie 2, met het kenmerk, dat in de herhaalde uitvoering van de stappen a, b en c het kristal over de eerste voorafbepaalde hoek roteert en het

detectie-oppervlak over een tweede voorafbepaalde hoek wordt geroteerd.

4. Werkwijze volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat in de eerste uitvoering van de stappen a, b en c het
5 kristal over een eerste voorafbepaalde hoek roteert, en dat in de herhaalde uitvoering van de stappen a, b en c het kristal over de eerste voorafbepaalde hoek roteert en voorts een op deze rotatie gesuperponeerde beweging ondergaat.

5. Werkwijze volgens conclusie 4, met het kenmerk,
10 dat de gesuperponeerde eenparige beweging van het kristal een rotatie in een vlak is dat het rotatievlak waarin de eerste voorafbepaalde hoek ligt, snijdt.

6. Werkwijze volgens een der conclusies 1-5, met het kenmerk, dat de eerste voorafbepaalde hoek van rotatie van
15 het kristal ten minste ca. 20° bedraagt.

7. Werkwijze volgens conclusie 3 of 6, met het kenmerk, dat de tweede voorafbepaalde hoek van rotatie van het detectie-oppervlak of het kristal ca. 10° bedraagt.

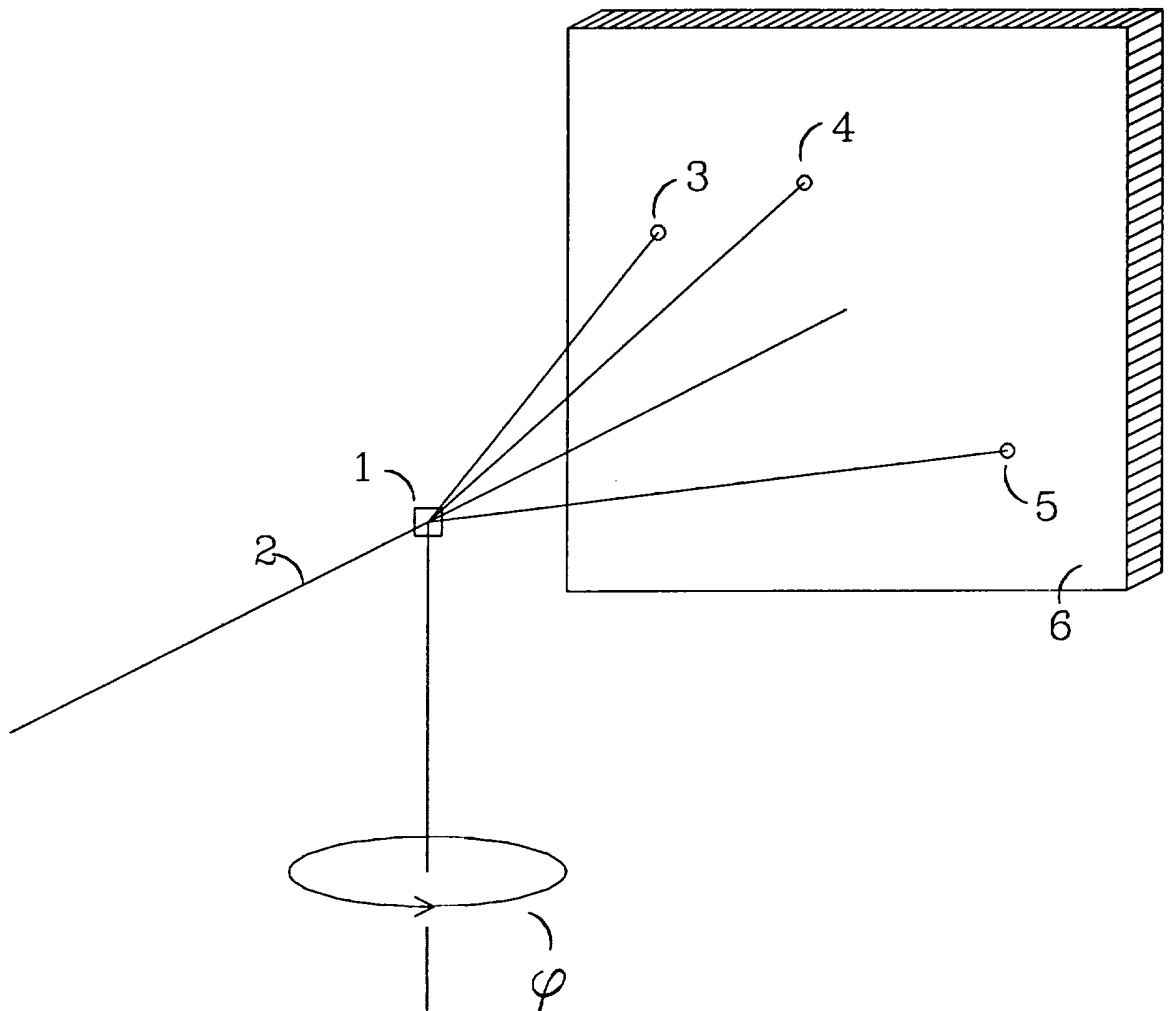


FIG 1 - prior art

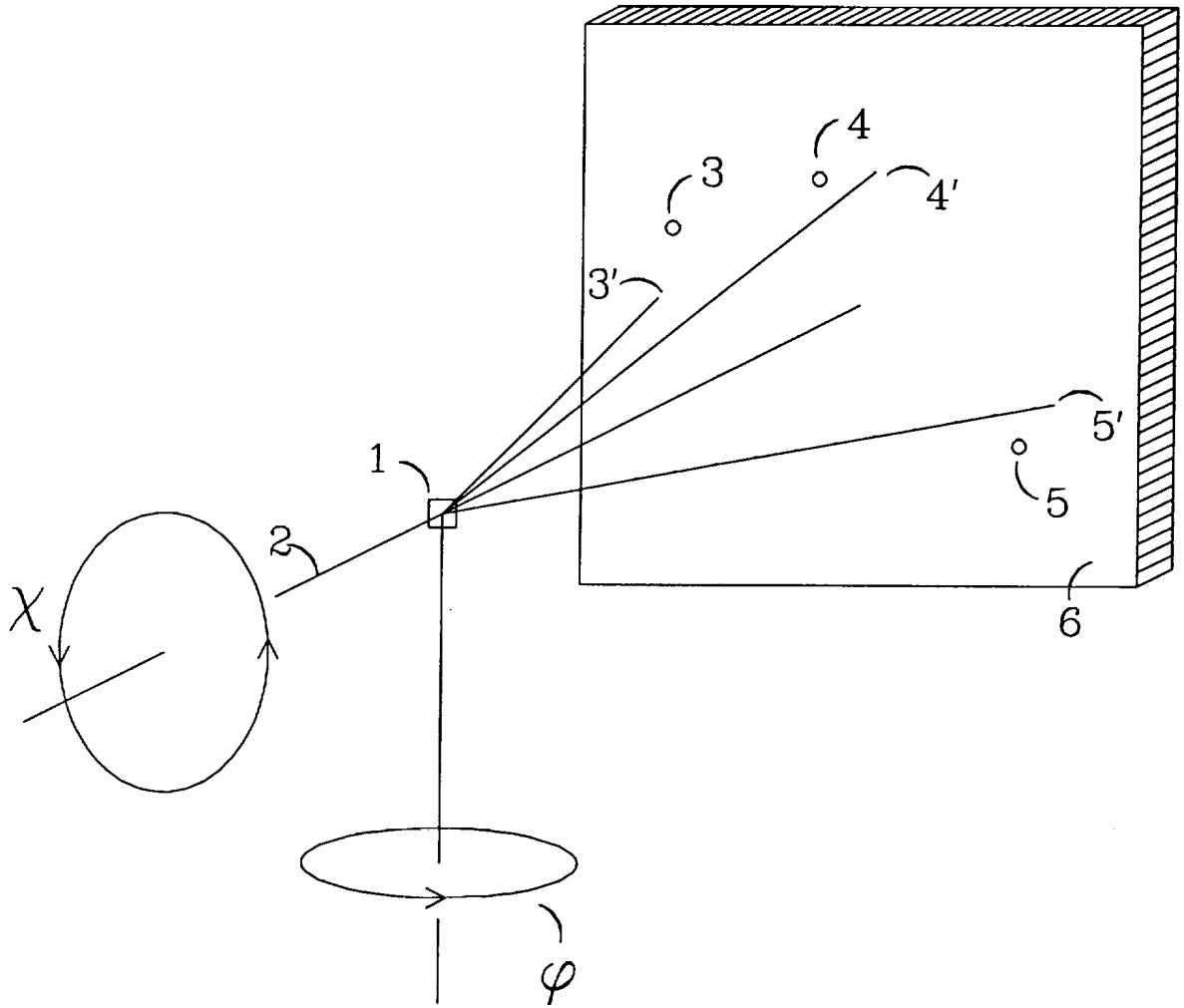


FIG 2

Octrooiaanvraag Nr: **1009012**

RAPPORT BETREFFENDE HET ONDERZOEK NAAR DE STAND VAN DE TECHNIEK

Van belang zijnde literatuur

Categorie *	Vermelding van literatuur met aanduiding, voor zover nodig, van speciaal van belang zijnde tekstgedeelten of figuren.	Van belang voor conclusie(s) Nr.:	International Patent Classification (IPC)
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN Vol. 17, No. 457 (P-1597) 1993 &JP5-107204 (MC SCI) *abstract + figuur *	1-3,6,7	G01N 23/204
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN Vol. 9, No. 239 (P-391) 1985 &JP60-093335 (KAGAKUGIJUTSUCHO MUKI ZAISHITSU KENKYUSHO) * abstract + figuren *	4-7	Onderzochte gebieden van de techniek, gedefinieerd volgens IPC 6 G01N 23/20
A	NL 1003229 C (SHIMATZU) * gehele document *	4-7	
P,A	WO 98/19329 A1 (COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE) * bladzijde 9, regel 32 - bladzijde 11, regel 7; figuur 1 *	4-7	Computerbestanden
A	NL 6817709 (NONIUS) * gehele document *	1	PAJ EPODOC
Indien gewijzigde conclusies zijn ingediend, heeft dit rapport betrekking op de conclusies ingediend op:			* Verklaring van de categorie-aanduiding: zie apart blad

Omvang van het onderzoek: **volledig**

Onderzochte conclusies:

Niet (volledig) onderzochte conclusies met redenen:

Afdelingstelefax:
Doorkiesnummer:

Het Bureau voor de Industriële Eigendom is een onderdeel van het Ministerie van Economische Zaken.

M 1.611 (05/97)

Bureau voor de Industriële Eigendom

Patentlaan 2 • Postbus 5820 • 2280 HV Rijswijk • Postbank rekening 17300 • ABN-AMRO rekening 40.45.00.714
Telefoon 070-3986655 • Centrale telefax 070-3900190

Datum waarop het
onderzoek werd voltooid:

9 november 1998

Vooronderzoeker: Ir. F.A.T. van Looijengoed

Afdelingstelefax:
Doorkiesnummer:

Het Bureau voor de Industriële Eigendom is een onderdeel van het
Ministerie van Economische Zaken.

M 1.611 (05/97)

Categorie van de vermelde literatuur:

- X: op zichzelf van bijzonder belang zijnde stand van de techniek
- Y: in samenhang met andere geciteerde literatuur van bijzonder belang zijnde stand van de techniek
- A: niet tot de categorie X of Y behorende van belang zijnde stand van de techniek
- O: verwijzend naar niet op schrift gestelde stand van de techniek
- P: literatuur gepubliceerd tussen voorrangs- en indieningsdatum
- T: niet tijdig gepubliceerde literatuur over theorie of principe ten grondslag liggend aan de uitvinding
- E: colliderende octrooiaanvraag
- D: in de aanvraag genoemd
- L: om andere redenen vermelde literatuur
- &: lid van dezelfde octrooifamilie; corresponderende literatuur

**AANHANGSEL BEHORENDE BIJ HET RAPPORT BETREFFENDE HET ONDERZOEK NAAR DE
STAND VAN DE TECHNIEK, UITGEVOERD IN OCTROOIAANVRAGE NR.1009012**

Het aanhangsel bevat een opgave van elders gepubliceerde octrooiaanvragen of octrooien (zogenaamde leden van dezelfde octrooifamilie), die overeenkomen met octrooi geschriften genoemd in het rapport.

De opgave is samengesteld aan de hand van gegevens uit het computerbestand van het Europees Octrooibureau 12 november 1998

De juistheid en volledigheid van deze opgave wordt noch door het Europees Octrooibureau, noch door de Octrooiraad gegarandeerd; de gegevens worden verstrekt voor informatiedoeleinden.

In het rapport genoemd octrooi- geschrift	datum van publicatie	overeenkomend(e) geschrift(en)	datum van publicatie
JP-A 5.107.204	27-04-93		
JP-A 60.093.335	18-01-94	US-A 5.236.696	17-08-93
		AT-T 154.512	15-07-97
		AU-B 3.541.793	30-09-93
		BG-B 61.675	31-03-98
		BG-A 97.579	31-03-95
		BR-A 9.301.305	05-10-93
		CN-A 1.083.700	16-03-94
		DE-D 69.311.616	24-07-97
		EP-A 0.565.401	13-10-93
		GR-A 93.100.121	30-11-93
		MX-A 9.301.514	01-12-93
		PL-A 298.264	07-03-94
		US-A 5.320.832	14-06-94
		ZW-A 3.893	11-01-93
		ZA-A 9.301.728	10-09-94
NL-A 1.003.229	03-12-96	JP-A 8.327.565	13-12-96
		NL-C 1.003.229	27-05-98

WO-A	9.819.329	07-05-98	FR-A	2.755.298	30-04-98
NL-A	6.817.709	12-06-70	DE-A	1.961.648	18-06-70
			FR-A	2.025.794	11-09-70
			GB-A	1.267.440	22-03-72
			JP-B	48.024.079	18-07-73
			SE-B	352.453	27-12-72
			US-A	3.636.347	18-01-72