

УДК 539.171.4

Учет геометрических поправок при расчете парной корреляционной функции

© 2025 г. Ф. С. Джепаров^{1,2}, Д. В. Львов^{1,2}, А. Н. Тюлюсов^{1,2}, Й. Шмайснер^{1,2}¹ Национальный исследовательский центр «Курчатовский институт», Москва, 123182, Россия² Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», Москва, 115409, Россия

Парная корреляционная функция неоднородностей образцов активно изучается методом малоуглового рассеяния. В последнее время появилась возможность ее определения из данных атомно-зондовой томографии (АЗТ). Рассмотрено влияние конечного размера и формы образца на парную корреляционную функцию неоднородностей, определяемую из данных АЗТ. В большом кубическом образце, размеры которого во всех направлениях много больше характерного радиуса корреляции, можно считать число примесей вблизи границы образца заметно меньшим, чем в объеме. В случае отказа от такого предположения возникает геометрический множитель, для которого получено общее выражение. Геометрический смысл множителя – вероятность наличия в образце определенного межточечного расстояния. Для случая, когда образец представляет собой вытянутый прямоугольный параллелепипед, получено аналитическое выражение в элементарных функциях для геометрического множителя. В качестве модельных систем были выбраны: полностью нескоррелированное расположение центров, расположение в виде простой кубической решетки и плотноупакованная система полидисперсных твердых шаров. Мотивация выбора состояла в том, что такие системы обладают различной пространственной упорядоченностью. Показано, что учет геометрического фактора приводит к правильной парной корреляционной функции для выбранных модельных систем неоднородностей.

Ключевые слова: парная корреляционная функция, радиальная функция распределения, атомно-зондовая томография.

Введение

В исследованиях мезомасштабной (от нескольких нанометров до нескольких микрон) структуры конденсированного состояния и технологических изделий широко применяется метод малоуглового рентгеновского и нейтронного рассеяния (МУР) [1, 2]. Информативность данных, получаемых методом МУР, зависит от химического состава, формы и пространственной концентрации исследуемых неоднородностей. Наиболее простой системой для применения МУР будет разреженная система монодисперсных неоднородностей, когда их пространственными корреляциями можно пренебречь. При большей концентрации неоднородностей для корректной обработки малоугловых спектров становится необходимым знание пространственной парной корреляционной функции (радиальной функции распределения) расположения рассеивателей. Существуют два способа определения распределения неоднородностей в пространстве. Первый – моделирование на основе известного или предлагаемого в качестве гипотезы взаимодействия рассеивателей [3]. Второй – независимое получение такой информации с помощью микроскопических методов. Одним из методов микроскопического исследования структуры является метод томографического атомного зонда [4–6]. Однако особенностью этого метода является специфическая геометрия исследуемых образцов. Они представляют собой тонкие вытянутые иголки [4], размер которых в одном осевом направлении заметно больше, чем в двух других. При

✉ Ф.С. Джепаров: dzheparov@itep.ru

Поступила в редакцию: 14.05.2025

После доработки: 25.05.2025

Принята к публикации: 03.06.2025

EDN VAOPKG

этом обычно применяемые алгоритмы расчета парной корреляционной функции основываются на предположении о возможности выделить кубический или сферический изучаемый объем, размер которого заметно превосходит характерную длину корреляции, с одной стороны, и содержит достаточное число центров для выделения поведения парной корреляционной функции из статистического шума – с другой. Таким образом, для вытянутого в одном направлении образца требуется построение нового алгоритма расчета парной корреляционной функции.

Задача определения парной корреляционной функции для образца конечного размера имеет давнюю историю, начиная с работы [7], в которой рассмотрены упаковки совокупностей жестких сфер, что важно для изучения термодинамических свойств простых жидкостей. Получение информации о пространственной корреляции имеет важное значение во многих областях науки для изучения как доменных систем [8], реальных физических систем для атомно-зондовой томографии [9], метеорологии [10], лазерной техники [11], коллективных колебаний толпы [12], так и для биологических клеточных систем [13]. Параллельно ведутся работы по разработке правильной методики расчета пространственной парной корреляционной функции с учетом геометрических особенностей систем [14]. В работах [15, 16] была рассмотрена задача определения парной корреляционной функции атомов, входящих в состав частицы нанометрового размера. Было показано, что парная корреляционная функция атомов наночастицы является произведением парной корреляционной функции атомов бесконечного образца и корректирующего множителя, определяемого формой и размером наночастицы, а также рассчитаны корректирующие множители для различных наночастиц.

Последнее время активно проводится изучение внутренней структуры материалов одновременно как микроскопическими, так и спектроскопическими методами. Ярким примером являются исследования сталей с помощью АЗТ и методом малоуглового рассеяния. При этом АЗТ позволяет увидеть тип и состав неоднородностей материала, а малоугловое рассеяние дает возможность получить функцию распределения неоднородностей по размерам. Следующим шагом в развитии совместного применения данных методик является изучение систем с коррелировано расположенными неоднородностями. В методе малоуглового рассеяния наблюдаемая интенсивность рассеяния в случае однократного рассеяния определяется парной корреляционной функцией. Поэтому важная задача – определение данной функции, исходя из данных, полученных на атомно-силовом микроскопе.

Теория

Исходные данные о координатах и размерах неоднородностей материала в методе АЗТ поступают от образцов, которые по форме близки к цилиндрам длиной L , радиусом R и объемом $V = \pi R^2 L$ при $L \gg R$. Далее мы ограничимся рассмотрением неоднородностей, имеющих форму, близкую к сферической.

Пусть имеется двухчастичный коррелятор неоднородностей в таком образце, если в бесконечной среде он равен:

$$C_2(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \frac{1}{\Omega^2} \langle n_{\mathbf{r}_1} n_{\mathbf{r}_2} \rangle = c^2 w(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|). \quad (1)$$

Здесь число заполнения $n_r = 1$, если в узле $\mathbf{r}$ есть центр неоднородности и $n_r = 0$ в обратном случае, $\mathbf{r}_1 \neq \mathbf{r}_2$, $c = f/\Omega$ – концентрация примесей, $f = \langle n_r \rangle$ – вероятность заполнения примесью узла решетки $\mathbf{r}$, а Ω – объем элементарной ячейки. При переходе к непрерывной среде $f \rightarrow 0$, $\Omega \rightarrow 0$, $f/\Omega = c = \text{const}$. Так как две неоднородности не могут находиться в одной точке, а корреляция в их расположении уменьшается с ростом расстояния между ними, то

$$w(r \rightarrow 0) = 0, \quad w(r \rightarrow \infty) = 1 \quad (2)$$

В большом образце

$$\int_V d^3x d^3y C_2(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = c^2 V^2 = N^2. \quad (3)$$

Здесь $N = cV$ – число примесей в образце. Результат (3) верен при $\Lambda = V^{1/3} \gg r_c$, где r_c – радиус корреляции. Соответственно,

$$D_2(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = C_2(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)/N^2$$

есть нормированная плотность вероятности обнаружить примеси в точках $\mathbf{r}_1$ и $\mathbf{r}_2$ в образце.

Нормированная плотность распределения межпримесных расстояний определяется соотношением

$$g(r) = \frac{1}{N^2} \int_V d^3x d^3y \delta(r - |\mathbf{x} - \mathbf{y}|) C_2(\mathbf{x}, \mathbf{y}). \quad (4)$$

Здесь использовано стандартное определение функции распределения для переменной, которая сама является функцией случайных величин. Отметим, что соотношение (4) основано на важнейшем физическом предположении о том, что приготовление образца не влияет на распределение изучаемых объектов, т.е. двухчастичная функция распределения $C_2(\mathbf{x}, \mathbf{y})$ в (1) и (4) – одна и та же.

Пусть $r_{\max}$ – наибольшее межточечное расстояние в образце. Тогда из (4) и (3) следует, что

$$\int_0^{r_{\max}} dr g(r) = \frac{1}{N^2} \int_V d^3x d^3y C_2(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = 1. \quad (5)$$

Это равенство, как и формула (3), верно в главном порядке по $N_{\text{corr}}/N \ll 1$, где $N_{\text{corr}} = c \frac{4\pi}{3} r_c^3$ – число примесей в объеме корреляции.

В большом кубическом образце с ребром $\Lambda = V^{1/3} \gg r_c$ из соотношений (1) и (4) следует, что

$$g(r) = \frac{1}{N^2} \int_V d^3x d^3y \delta(r - |\mathbf{x} - \mathbf{y}|) c^2 w(|\mathbf{x} - \mathbf{y}|) = 4\pi r^2 w(r) c / N. \quad (6)$$

При этом $Ng(r)dr$ есть число примесей в шаровом слое толщиной dr на расстоянии r от начала координат, где достоверно расположена примесь.

При выводе (6) было использовано то, что число примесей вблизи поверхности мало в сравнении с их числом в объеме. Этот критерий и определяет возможные стратегии определения $g(r)$ и $w(r)$ из экспериментальных данных. Основная из них состоит в построении гистограммы, соответствующей $g(r)$, т.е. разбиение всех возможных расстояний на несколько групп и прямой подсчет числа примесей в этих группах.

Связь $g(r)$ и $w(r)$ в общем случае определяется геометрическим множителем $F(r)$, обусловленным формой образца. Из (4) видно, что

$$g(r) = \frac{1}{N^2} c^2 w(r) \int_V d^3x d^3y \delta(r - |\mathbf{x} - \mathbf{y}|) = \frac{1}{N^2} c^2 w(r) F(r), \quad (7)$$

$$F(r) = \int_V d^3x d^3y \delta(r - |\mathbf{x} - \mathbf{y}|). \quad (8)$$

Ясно, что $F(r)$ пропорционально плотности вероятности наличия в образце межточечного расстояния r при $r < r_{\max}$. Точнее, $(1/N^2)c^2 F(r)dr$ есть вероятность попадания межточечного расстояния r в шаровой слой толщиной dr .

В методе АЗТ исследуемый образец имеет вытянутую форму, например цилиндр или брус с высотой много больше поперечного размера. Направим ось 3 вдоль оси цилиндра. При этом

$$F(r) = \int_{V_{\perp}} d^2x_{\perp} d^2y_{\perp} \int_0^L dx_3 dy_3 \delta\left(r - \left((\mathbf{x}_{\perp} - \mathbf{y}_{\perp})^2 + (x_3 - y_3)^2\right)^{1/2}\right). \quad (9)$$

По переменным x_3 и y_3 , по аналогии с теорией Андерсона – Вейсса – Кубо [17, 18], используем тождество

$$\int_0^t dt_1 dt_2 \varkappa(|t_1 - t_2|) = 2 \int_0^t dt_1 (t - t_1) \varkappa(t_1). \quad (10)$$

Поэтому

$$F(r) = 2 \int_{V_{\perp}} d^2x_{\perp} d^2y_{\perp} \int_0^L dz (L - z) \delta\left(r - \left((\mathbf{x}_{\perp} - \mathbf{y}_{\perp})^2 + z^2\right)^{1/2}\right). \quad (11)$$

Рассмотрим случай, когда образец имеет форму бруса толщиной D . Тогда по ортогональным переменным снова можно использовать соотношение (10), что дает

$$\begin{aligned} F(r) &= 2 \int_0^D dx_1 dx_2 dy_1 dy_2 \int_0^L dz (L - z) \delta\left(r - \left((x_1 - y_1)^2 + (x_2 - y_2)^2 + z^2\right)^{1/2}\right) = \\ &= 8 \int_0^D dx dy \int_0^L dz (D - x)(D - y)(L - z) \delta\left(r - \left(x^2 + y^2 + z^2\right)^{1/2}\right). \end{aligned} \quad (12)$$

Учтем, что

$$\delta\left(r - \left(a^2 + z^2\right)^{1/2}\right) = \frac{r}{\left(r^2 - a^2\right)^{1/2}} \delta\left(\left(r^2 - a^2\right)^{1/2} - z\right) \theta(r > a). \quad (13)$$

Здесь $\theta(x)$ – функция Хэвисайда. Тогда из (12) следует, что

$$F(r) = 8 \int_0^D dx dy (D - x)(D - y) \left(L - \left(r^2 - (x^2 + y^2)\right)^{1/2}\right) \frac{r \theta(r^2 > x^2 + y^2)}{\left(r^2 - (x^2 + y^2)\right)^{1/2}}. \quad (14)$$

Рассмотрим случай $r < D$. Сделав в (14) замену переменных $x = \rho \cos \varphi$, $y = \rho \sin \varphi$, имеем

$$F(r < D) = 8 \int_0^{\pi/2} d\varphi \int_0^r \rho d\rho (D - \rho \cos \varphi)(D - \rho \sin \varphi) \left(L - \left(r^2 - \rho^2\right)^{1/2}\right) \frac{r}{\left(r^2 - \rho^2\right)^{1/2}}. \quad (15)$$

Данный интеграл вычисляется аналитически. В итоге получаем

$$F(r < D) = 4\pi D^2 L r^2 - 2\pi D(D + 2L)r^3 + \frac{8}{3}(L + 2D)r^4 - r^5. \quad (16)$$

При малых r геометрический множитель $F(r \rightarrow 0) = 4\pi D^2 L r^2$. Соответственно,

$$N^{-2} c^2 F(r \rightarrow 0) dr = N^{-2} c^2 dr 4\pi D^2 L r^2 = N^{-1} c 4\pi r^2 dr = 4\pi r^2 dr / V,$$

т.е. выражение (16) имеет правильную асимптотику при малых расстояниях.

Моделирование

Для учета влияния геометрического множителя на парную корреляционную функцию были рассмотрены системы с различным пространственным распределением неоднородностей. Был взят модельный образец (рис. 1) с коррелированными центрами общим числом в $N_{cl} = 26000$, распределенными в объеме куба с ребром $D = 125$. В дальнейшем будем полагать расстояния безразмерными, принимая во внимание, что без учета краевых эффектов вид парной корреляционной функции не зависит от масштабного фактора. Данный образец составлялся на основе той же программы, которая была применена ранее для вычисления интенсивности многократного малоуглового рассеяния нейтронов на системах с различной концентрацией неоднородностей [3]. Параметры модельного образца, распределение по размерам и пространственные корреляции, соответствовали гранулам порошка, изученного в эксперименте. Размеры параллелепипеда выбирались исходя из заданного фактора заполнения, равного отношению суммы объемов рассеивателей к объему параллелепипеда.

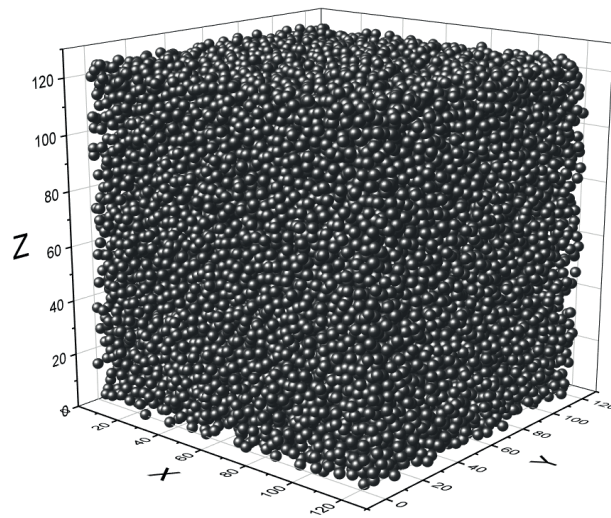


Рис. 1. Кубический образец с коррелированными центрами.
 $L = D = 125$

Для дополнительной проверки выражения (16) геометрического множителя радиальной функции распределения были выбраны бруски квадратного сечения (L – высота, D – ширина бруска), где расположение центров неоднородностей в них принималось в одной из следующих форм: простая кубическая решетка с постоянной решетки $a = 2$ (рис. 2а), случайно распределенные точки общим числом центров $N_{cl} = 1100$ (рис. 2б), а также центры, попавшие в брусок, вырезанный из коррелированного кубического образца, $N_{cl} = 145$ (рис. 2в).

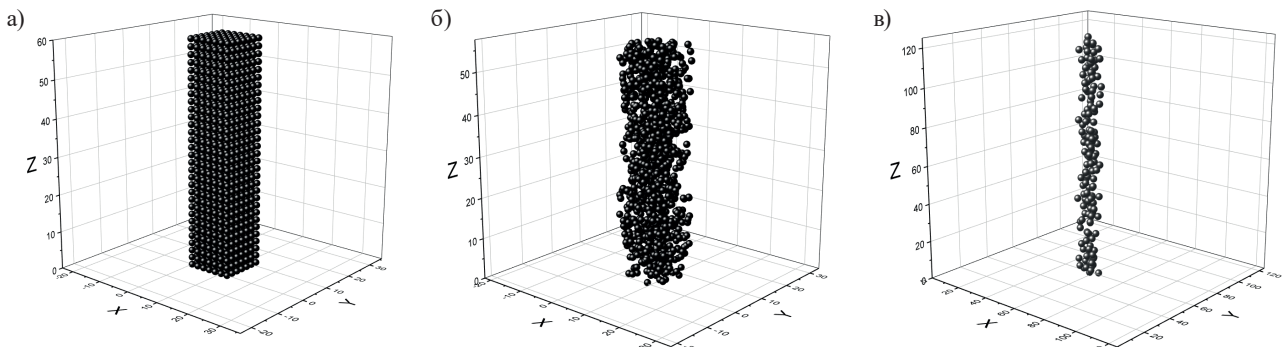


Рис. 2. Распределение центров неоднородностей: а) – простая кубическая решетка; б) – случайно распределенные центры; в) – центры с известной корреляцией

Радиальная функция распределения $w(r)$ (пространственная парная корреляционная функция) определялась в два этапа: сперва рассчитывалась плотность распределения расстояний $g(r)$ по координате r до максимального значения $r_{\max}$, а затем $g(r)$ домножалась на геометрический множитель, в зависимости от выбранной методики расчета. Погрешности значений $w(r)$ определялись из исходных значений $g(r)$ согласно пуассоновскому распределению.

При стандартном методе расчета радиальной функции распределения (далее – метод 1) выбирались периодические граничные условия, при которых вокруг расчетной поисковой области строятся ее «образы» с актуальным положением частиц [10, 14]. Поэтому частицы «реальной» области взаимодействуют с частицами в «образе», а если частица пересекает границу расчетной области, то она появляется с другой стороны. Схема этого процесса для двухмерной системы показана на рис. 3, где часть поискового кругового слоя (серый) в левом нижнем углу выходит за пределы системы и с помощью граничных условий продолжается от других краев системы для нахождения соответствующей пары в левом верхнем углу рисунка. Ограничения описанного метода 1 таковы, что значения функций $g(r)$ и $w(r)$ будут определены без искажений лишь до расстояний r , равных половине минимального линейного размера системы. Так, для кубической системы $2 \cdot r_{\max} = L = D$, а для бруска квадратного сечения $r_{\max} = L/2$. Искажения при $r > r_{\max}$ связаны с двойным подсчетом пар, т.е. включением более одной пары тех же двух центров при расчете $g(r)$ [10].

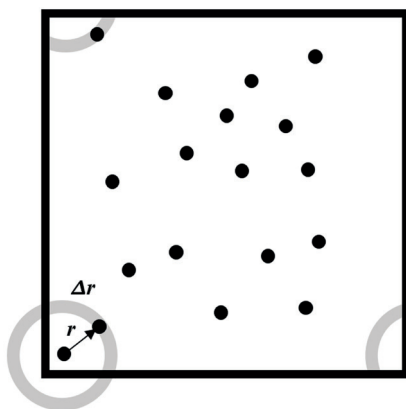


Рис. 3. Схема расчета радиальной функции распределения с учетом периодических граничных условий для двухмерной системы центров

При расчете радиальной функции распределения с учетом геометрической поправки $F(r)$ (далее – метод 2) периодические граничные условия не используются, что позволяет определять пространственную корреляцию частиц в исходном объеме и до максимальных расстояний, ограниченных объемом данной системы.

Существует продолжение методики расчета $g(r)$ для метода 1 (далее – метод 3) [14], при котором вокруг исходного объема системы периодическим продолжением выстраиваются его «образы», тем самым конечный объем системы увеличивается вместе с числом центров (для кубического образца новый объем будет в 27 раз больше исходного) и функция $g(r)$ может быть определена до $r_{\max} = D = L$. Однако такой метод сильно увеличивает вычислительное время, не оперирует исходным числом центров и в нем применяются те же граничные условия, описанные выше, приводящие к ошибке двойного подсчета пар.

Первой системой, для которой проводился расчет радиальной функции распределения, была система со случайно распределенными центрами (рис. 4). На графике видно, что расчет по методу 2 с учетом предлагаемой функции $F(r)$ показывает хорошее совпадение с теоретическим значением $w(r) \rightarrow 1$ для всего диапазона расстояний по r до значения боковой ширины бруска D . В случае расчета по методу 1 функция сперва показывает правильное значение, однако после прохождения отметки $r = D/2$, что соответствует максимальному радиусу вписанной в сечение бруска окружности, зависимость начинает спадать.

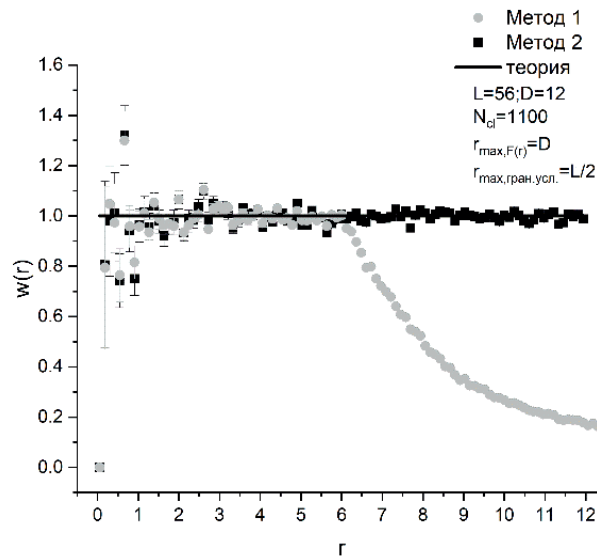


Рис. 4. Расчет радиальной функции распределения центров, случайно распределенных в бруске квадратного сечения высотой $L = 56$ и шириной $D = 12$. Черные точки соответствуют случаю учета геометрической поправки $F(r)$, серые точки – расчет с граничными условиями, прямая линия – теоретический вид для случайного распределения

Также, исходя из определения радиальной функции распределения, возможно решение обратной задачи по нахождению числа центров в отдельном сферическом слое. Так, для рассмотрения строго коррелированной системы в виде простой кубической решетки, замощенной в бруске квадратного сечения, был проведен расчет функции $w(r)$ и построено распределение числа центров, попавших в сферический слой (рис. 5). На графике наблюдается соответствие расчетных значений с известными теоретическими, соответствующими так называемым координационным числам (подробные данные

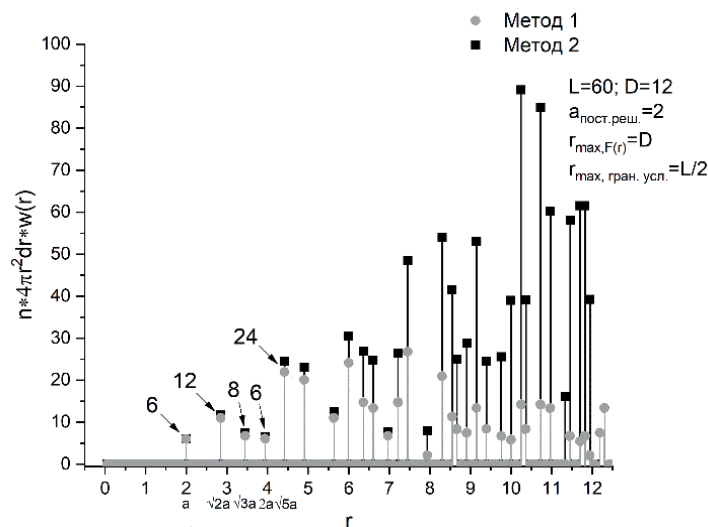


Рис. 5. Расчет числа центров в тонком сферическом слое для простой кубической решетки, замощенной в бруске квадратного сечения высотой $L = 60$ и шириной $D = 12$. Черные точки – расчет с учетом геометрической поправки $F(r)$, серые точки – расчет с граничными условиями. Числами указано теоретическое количество атомов в соответствующих координационных сферах (координационные числа)

по координационным числам для простой кубической решетки указаны в табл. 1). При достижении области расстояний r до $D/2$ расчет функции $w(r)$ методом 1 начинает спадать, в то время как расчет с учетом геометрической поправки $F(r)$ показывает близкое согласие с теоретическими координационными числами.

Таблица 1. Координационные числа K для простой кубической решетки до $n = 9$ порядка

n	r	K
0	0	1
1	a	6
2	$\sqrt{2}a$	12
3	$\sqrt{3}a$	8
4	$2a$	6
5	$\sqrt{5}a$	24
6	$\sqrt{6}a$	24
7	$2\sqrt{2}a$	12
8	$3a$	30
9	$\sqrt{10}a$	24

Ограничение на возможности определения корреляции расстояний между центрами при работе по методу 1 можно пронаблюдать при расчете радиальной функции распределения для исходного кубического образца с коррелированными центрами (рис. 6). Функция $w(r)$ в методе 1 будет определена лишь до расстояния $r = L/2$, соответствующему половине ребра куба, тогда как расчет $w(r)$ по методу 2 будет иметь продолжение вплоть до конечной границы L , т.е. для всего объемного пространства системы. В обоих случаях заметна область запрещенного объема при малых r и радиус корреляции $r_{corr} \sim 9$, основываясь на котором из исходного кубического объема были вырезаны бруски того же размера D для проверки поведения функции $w(r)$ при расстояниях корреляции r_{corr} сравнимых с r_{max} .

Возможности применения функции $F(r)$ не ограничиваются кубическими размерами рассматриваемой системы центров, а позволяют проводить расчеты радиальной функции распределения $w(r)$

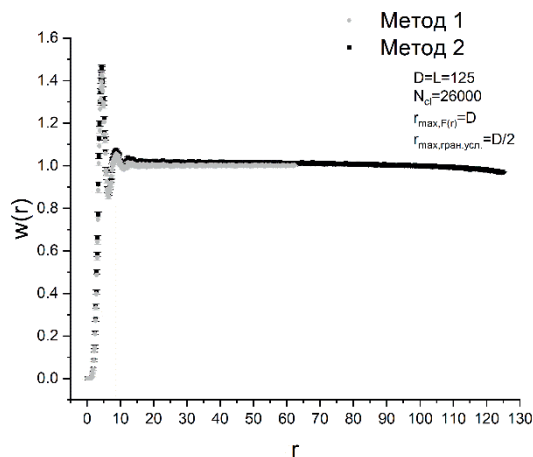


Рис. 6. Расчет радиальной функции распределения для кубического образца размерами $(125 \times 125 \times 125)$, содержащего центры с определенной пространственной корреляцией. Показан случай расчета с учетом геометрической поправки $F(r)$ (черные точки) и расчет с учетом граничных условий (серые точки)

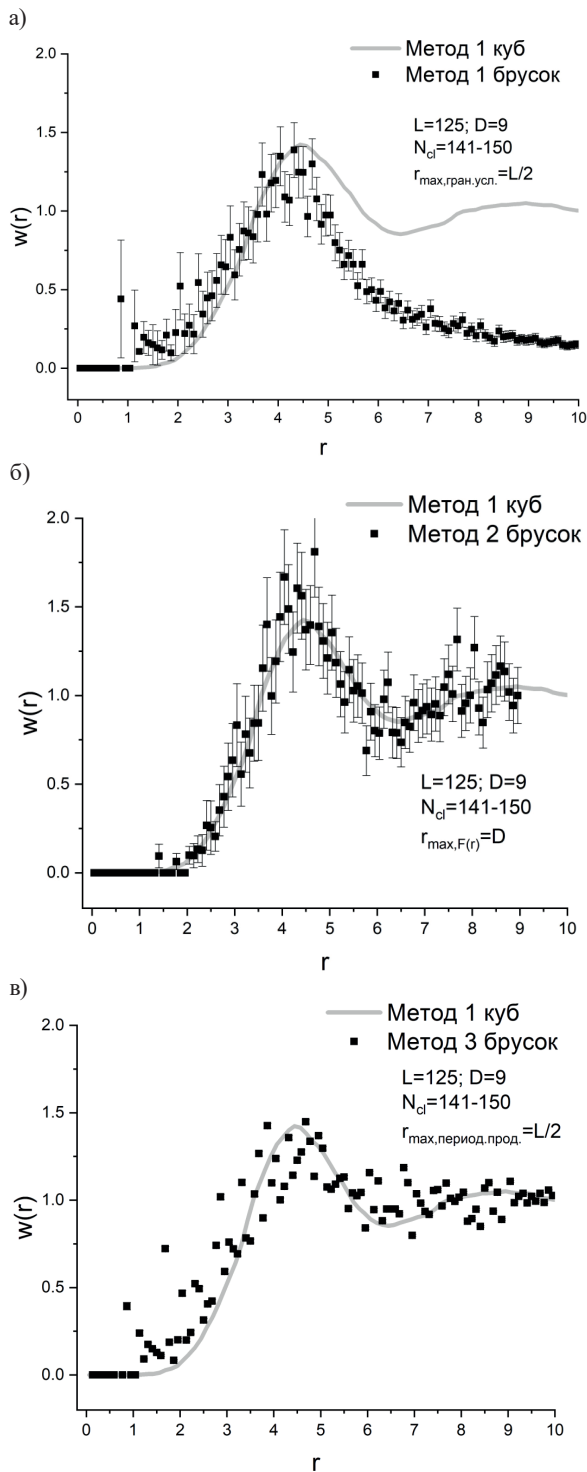


Рис. 7. Расчет усредненной радиальной функции распределения для пяти брусков квадратного сечения высотой $L = 125$ и шириной $D = 9$, выделенных из кубического образца с коррелированными центрами. Показаны случаи расчета: а) – с учетом граничных условий; б) – с учетом геометрической поправки $F(r)$; в) – для периодического продолжения. Для сравнения приведен график функции $w(r)$ исходного кубического образца (сплошная кривая)

и для образцов, геометрия которых имеет прямоугольную вытянутую форму. Так, для пяти брусков квадратного сечения, выделенных из исходного кубического образца, приведен расчет функции $w(r)$ по методам 1, 2 и 3 (рис. 7). Если в случае расчета по методу 1 (см. рис. 7а) зависимость доходит до половины меньшего линейного размера бруска $D/2$ и затем снова спадает, то расчет по методу 2 (см. рис. 7б) показывает совпадение с расчетом $w(r)$ по методу 1 для исходного кубического образца, приведенном на том же рисунке. Расчеты методами 2 и 3 дают близкие результаты и согласие с кубическим образцом. Кажущееся на первый взгляд уменьшение диапазона погрешностей для метода 3 (см. рис. 7в) связано только лишь с периодическим продолжением центров в объеме бруска до кубического объема, т.е. с «искусственным» увеличением статистики, поэтому правильнее будет сравнивать результаты расчета методов 2 и 3 с относительным разбросом точек в каждой серии.

Таким образом, методика, основанная на функции геометрического множителя $F(r)$, не требует периодических граничных условий, работает с исходным числом центров и позволяет проводить вычисления с меньшим временем, что критически важно при работе с системами большого количества частиц.

Заключение

Исследование свойств макро- и микроскопических систем методами атомно-зондовой томографии, малоуглового нейтронного и рентгеновского рассеяния потребовало нахождения пространственного распределения кластерных рассеивающих центров в изучаемых образцах. Были рассмотрены объемные системы с геометрией, близкой к реально используемой в экспериментах. Аналитически получена функция поправки для пространственной парной корреляционной функции рассеивателей (радиальной функции распределения), учитывающая конечные размеры системы. Проведено моделирование систем с различной степенью пространственной корреляции и показаны преимущества нового решения по сравнению со стандартными широко используемыми ранее методами. Предлагаемый метод поможет получить полную картину пространственного распределения центров конечной геометрии при обработке данных для широкого спектра малоугловых исследований.

Финансирование

Работа выполнена в рамках исполнения государственного задания НИЦ «Курчатовский институт».

Конфликт интересов

Конфликт интересов отсутствует.

Вклад авторов

Ф.С. Джепаров – формулировка идеи и целей исследования, постановка задачи, подготовка текста статьи.

Д.В. Львов – разработка концепции исследования, подготовка текста статьи.

А.Н. Тюлюсов – участие в проведении исследования и обсуждении результатов, подготовка текста статьи.

Й. Шмайсер – выявление закономерностей, подбор литературных источников, подготовка текста статьи.

Список литературы

1. Сверхун Д.И., Фейгин Л.А. Рентгеновское и нейтронное малоугловое рассеяние. М.: Наука, 1986. 280 с.
2. Джепаров Ф.С., Львов Д.В. Нейтронные исследования конденсированных сред. Учебное пособие. М.: НИЯУ МИФИ, 2012. 188 с. DOI: 10.13140/2.1.2640.1608
3. Абов Ю.Г., Джепаров Ф.С., Елютин Н.О., Львов Д.В., Тюлюсов А.Н. Исследования с применением тепловых нейтронов // ЖЭТФ, 2013. Т. 143. С. 507–517. DOI: 10.7868/S0044451013030097.
4. Рогожкин С.В., Алеев А.А., Лукьянчук А.А., Шутов А.С., Разницын О.А., Кириллов С.Е. Прототип атомного зонда с лазерным испарением // Приборы и техника эксперимента, 2017. № 3. С. 129–134. DOI: 10.7868/S0032816217020227.
5. Лукьянчук А.А., Алеев А.А., Шутов А.С., Разницын О.А., Кириллов С.Е., Рогожкин С.В. Реконструкция трехмерных распределений атомов в методе атомно-зондовой томографии с учетом плотности материала // Ядерная физика и инжиниринг, 2022. Т. 13. № 3. С. 272–279. DOI: 10.56304/S2079562922010250.
6. Rogozhkin S.V., Klauz A.V., Ke Y., Almásy L., Nikitin A.A., Khomich A.A., Bogachev A.A., Gorshkova Y.E., Bokuchava G.D., Kopitsa G.P., et al. Study of Precipitates in Oxide Dispersion-Strengthened Steels by SANS TEM, and APT. // Nano-materials, 2024. V. 14. № 2. P. 194. DOI: 10.3390/nano14020194.
7. Bell R.J. Pair Distribution Function for Particles in a Box // Nature, 1968. № 218. P. 985–986. DOI: 10.1038/218985b0.
8. Gavagnin E., Owen J., Yates C. Pair correlation functions for identifying spatial correlation in discrete domains // Physical Review E, 2018. V. 97. Iss. 6. DOI: 062104. 10.1103/PhysRevE.97.062104.
9. Moody M., Gault B., Stephenson L., Marceau R., Powles R., Ceguerra A., Breen A., Ringer S. Lattice Rectification in Atom Probe Tomography: Toward True Three-Dimensional Atomic Microscopy // Microscopy and Microanalysis, 2011. V. 17. Iss. 2. P. 226–239. DOI: 10.1017/S1431927610094535.
10. Larsen M.L., Shaw R.A. A method for computing the three-dimensional radial distribution function of cloud particles from holographic images // Atmospheric Measurement Techniques, 2018. V. 11. Iss. 7. P. 4261–4272. DOI:10.5194/amt-11-4261-2018.
11. Melzer A., Nunomura S., Samsonov D., Ma Z., Goree J. Laser-excited Mach cones in a dusty plasma crystal // Physical review. E, Statistical physics, plasmas, fluids, and related interdisciplinary topics, 2000. V. 62. Iss. 3. P. 4162–4176. DOI: 62. 4162-76. 10.1103/PhysRevE.62.4162.
12. Gu F., Guiselin B., Bain N. et al. Emergence of collective oscillations in massive human crowds // Nature, 2025. V. 638. P. 112 – 119. DOI: 10.1038/s41586-024-08514-6.
13. Jacquemin M., Ribeiro F., Aliane K., Broggio D., Franck D., et al. Using radial distribution functions to calculate cellular crossabsorbed dose for β emitters: comparison with reference methods and application for ^{18}F -FDG cell labeling // Physics in Medicine and Biology, 2021. V. 66. Iss. 17. P. 175016. DOI: 10.1088/1361-6560/abe555.
14. Theodorou D.N., Suter U.W. Geometrical considerations in model systems with periodic boundaries // Journal of Chemical Physics, 1985. V.82. Iss.2. P.955–966. DOI:10.1063/1.448472.
15. Gilbert B. Finite size effects on the real-space pair distribution function of nanoparticles // Journal of Applied Crystallography, 2008. V.41. P.554–562. DOI: 10.1107/S0021889808007905.
16. Kodama K., Iikubo S., Taguchi T., Shamoto S. Finite size effects of nanoparticles on the atomic pair distribution functions // Acta Crystallographica Section A, 2006. V. 62. P. 444–453. DOI: 10.1107/S0108767306034635
17. Dzheparov F.S., Lvov D.V. Nuclear Magnetic Resonance in Gaussian Stochastic Local Field // Applied Magnetic Resonance, 2017. V. 48. P. 989–1007. DOI: 10.1007/s00723-017-0923-8.
18. Абрагам А. Ядерный магнетизм. М.: ИЛ, 1963. 612 с.

Geometric corrections for calculating the pair correlation function

F. S. Dzheparov^{1,2,✉}, D. V. Lvov^{1,2}, A. N. Tyulyusov^{1,2}, J. Schmeissner^{1,2}

¹ National Research Center “Kurchatov Institute”, Moscow, 123182, Russia

² National Research Nuclear University MEPhI, Moscow, 115409, Russia

✉ dzheparov@itep.ru

✉ nrcki@nrcki.ru

Received May 14, 2025; revised May 25, 2025; accepted June 3, 2025

The pair correlation function of inhomogeneities in samples is actively studied using small-angle scattering methods. Recently, it has become possible to determine this function from atom probe tomography (APT) data. This work examines the influence of the finite size and shape of a sample on the pair correlation function of inhomogeneities derived from APT data. In a large cubic sample whose dimensions in all directions significantly exceed the characteristic correlation radius, the number of impurities near the sample boundaries can be considered much smaller than in the bulk. If this assumption is not fulfilled, a geometric factor arises, for which a general expression has been derived. The geometric meaning of this factor is the probability of a specific interpoint distance presence within the sample. For the case in which the sample is an elongated rectangular parallelepiped, an analytical expression for the geometric factor in terms of elementary functions is obtained.

The following model systems were considered: a completely uncorrelated distribution of centers, a simple cubic lattice, and a densely packed system of polydisperse hard spheres. These systems were chosen due to their differing degrees of spatial order. It is shown that accounting for the geometric factor yields the correct pair correlation function for the selected model systems of inhomogeneities.

Keywords: pair correlation function, radial distribution function, atom probe tomography.

References

1. *Svergun D.I., Feigin L.A.* Rentgenovskoe i nejtronnoe malouglovoe rasseyanie [X-ray and neutron small-angle scattering]. Moscow, Nauka Publ., 1986. 280 p.
2. *Dzheparov F.S., Lvov D.V.* Nejtronnye issledovaniya kondensirovannyh sred. Uchebnoe posobie. [Neutron studies of condensed matter. Tutorial]. Moscow, NIYaU MIFI Publ., 2012. 188 p. DOI: 10.13140/2.1.2640.1608 (in Russian)
3. *Abov Yu.G., Dzheparov F.S., Elyutin N.O., Lvov D.V., Tyulyusov A.N.* Issledovaniya s primeneniem teplovyh nejtronov [Thermal Neutron Research]. ZhETF, 2013. Vol. 143. Pp. 507–517. DOI: 10.7868/S0044451013030097 (in Russian).
4. *Rogozhkin S.V., Aleev A.A., Luk'yanchuk A.A., Shutov A.S., Raznicyn O.A., Kirillov S.E.* Prototip atomnogo zonda s lazernym ispareniem [Atomic Probe Prototype with Laser Evaporation]. Pribory i tekhnika eksperimenta, 2017. No. 3. Pp. 129–134. DOI: 10.7868/S0032816217020227 (in Russian).
5. *Luk'yanchuk A.A., Aleev A.A., Shutov A.S., Raznicyn O.A., Kirillov S.E., Rogozhkin S.V.* Rekonstrukciya trekhmernykh raspredelenij atomov v metode atomno-zondovoj tomografii s uchetom plotnosti materiala [Reconstruction of three-dimensional distributions of atoms in the atom probe tomography method taking into account the material density]. Yadernaya fizika i inzhiniring, 2022. Vol. 13. No. 3. Pp. 272–279. DOI: 10.56304/S2079562922010250 (in Russian).
6. *Rogozhkin S.V., Klauz A.V., Ke Y., Almásy L., Nikitin A.A., Khomich A.A., Bogachev A.A., Gorshkova Y.E., Bokuchava G.D., Kopitsa G.P., et al.* Study of Precipitates in Oxide Dispersion-Strengthened Steels by SANS TEM, and APT. Nanomaterials, 2024. Vol. 14. No. 2. Pp. 194. DOI: 10.3390/nano14020194.
7. *Bell R.J.* Pair Distribution Function for Particles in a Box. Nature, 1968. No. 218. Pp. 985–986. DOI: 10.1038/218985b0.
8. *Gavagnin E., Owen J., Yates C.* Pair correlation functions for identifying spatial correlation in discrete domains. Physical Review E, 2018. Vol. 97. Iss. 6. DOI: 062104. 10.1103/PhysRevE.97.062104.
9. *Moody M., Gault B., Stephenson L., Marceau R., Powles R., Ceguerra A., Breen A., Ringer S.* Lattice Rectification in Atom Probe Tomography: Toward True Three-Dimensional Atomic Microscopy. Microscopy and Microanalysis, 2011. Vol. 17. Iss. 2. Pp. 226–239. DOI: 10.1017/S1431927610094535.

10. *Larsen M.L., Shaw R.A.* A method for computing the three-dimensional radial distribution function of cloud particles from holographic images. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2018. Vol. 11. Iss. 7. Pp. 4261 – 4272. DOI: 10.5194/amt-11-4261-2018.
11. *Melzer A., Nunomura S., Samsonov D., Ma Z., Goree J.* Laser-excited Mach cones in a dusty plasma crystal. *Physical review. E, Statistical physics, plasmas, fluids, and related interdisciplinary topics*, 2000. Vol. 62. Iss. 3. Pp. 4162 – 4176. DOI: 62. 4162-76. 10.1103/PhysRevE.62.4162.
12. *Gu F., Guiselin B., Bain N. et al.* Emergence of collective oscillations in massive human crowds. *Nature*, 2025. Vol. 638. Pp. 112 – 119. DOI: 10.1038/s41586-024-08514-6.
13. *Jacquemin M., Ribeiro F., Aliane K., Broggio D., Franck D., et al.* Using radial distribution functions to calculate cellular crossabsorbed dose for β emitters: comparison with reference methods and application for 18F-FDG cell labeling. *Physics in Medicine and Biology*, 2021. Vol. 66. Iss. 17. Pp. 175016. DOI: 10.1088/1361-6560/abe555.
14. *Theodorou D.N., Suter U.W.* Geometrical considerations in model systems with periodic boundaries. *Journal of Chemical Physics*, 1985. Vol. 82. Iss. 2. Pp. 955 – 966. DOI: 10.1063/1.448472.
15. *Gilbert B.* Finite size effects on the real-space pair distribution function of nanoparticles. *Journal of Applied Crystallography*, 2008. Vol. 41. Pp. 554 – 562. DOI: 10.1107/S0021889808007905.
16. *Kodama K., Iikubo S., Taguchi T., Shamoto S.* Finite size effects of nanoparticles on the atomic pair distribution functions. *Acta Crystallographica Section A*, 2006. Vol. 62. Pp. 444 – 453. DOI: 10.1107/S0108767306034635.
17. *Dzheparov F.S., Lvov D.V.* Nuclear Magnetic Resonance in Gaussian Stochastic Local Field. *Applied Magnetic Resonance*, 2017. Vol. 48. Pp. 989 – 1007. DOI: 10.1007/s00723-017-0923-8.
18. *Abraham A.* The Principles of Nuclear Magnetism. Clarendon Press, 1961, 599 p.