

## ДИНАМИКА ИЗМЕНЕНИЯ ИНТЕНСИВНОСТИ ЛАУЭ-ОТРАЖЕННОГО ПУЧКА ПРИ НЕПРЕРЫВНОМ ИЗМЕНЕНИИ ВЕЛИЧИНЫ ТЕМПЕРАТУРНОГО ГРАДИЕНТА

М. А. НАВАСАРДЯН, П. А. БЕЗИРГАНЯН

В работе исследован характер изменения интенсивности Лауэ-дифрагированной волны при непрерывном изменении величины градиента температуры для двух конфигураций векторов дифракции  $\vec{S}$  и градиента  $\vec{B}$  (для случаев  $\vec{S} \uparrow \uparrow \vec{B}$  и  $\vec{S} \downarrow \uparrow \vec{B}$ ). Зафиксирована большая чувствительность пучка при параллельном расположении векторов  $\vec{S}$  и  $\vec{B}$ . Наблюдалась также большая чувствительность пучка от градиента при величине произведения  $\mu t \sim 2$ . Утверждается, что при расчете изменения интенсивности необходимо принять во внимание изменение структурной амплитуды. Предложен метод бесконтактного определения некоторых величин, характеризующих напряженное состояние кристалла.

### В в е д е н и е

После обнаружения явления аномального прохождения [1] в большой степени возрос интерес к процессам взаимодействия рентгеновской волны с веществом в высокосвершенных кристаллах.

Появилось много работ, посвященных изучению влияний различных типов на интенсивность Лауэ-отраженного рентгеновского пучка [2—4]. В работах [2, 3] на кристалле кальцита ( $\mu t = 70$ ) было исследовано влияние температурного градиента на интенсивность аномально-проходящего рентгеновского пучка. В этой работе направление градиента составляло малый угол с отражающими плоскостями. Было обнаружено, что градиент снижает интенсивность даже при величине градиента порядка  $0,1 \frac{\text{град}}{\text{см}}$ . Было обнаружено также, что при изменении направле-

ния градиента меняется соотношение интенсивностей аномально-проходящего и Лауэ-дифрагированного пучков. В работе [4] было исследовано влияние градиента на аномально-проходящий пучок в случае кристалла  $\text{Ge}$ . В этой работе изменялось направление градиента в большой области и было найдено, в частности, что влияние градиента оказывается наибольшим при параллельной и антипараллельной ориентациях векторов градиента и дифракции.

Имеется также ряд теоретических работ, среди которых наибольший интерес для нас представляет работа Пеннинга-Полдера [5]. В ней исследовано влияние нарушений кристаллической матрицы (нарушения могут быть обусловлены как механическим изгибом, так и температурным градиентом) на интенсивность аномально-проходящего пучка. Теоретические результаты лишь частично качественно объясняют экспериментально наблюдаемые эффекты. Теория не дает объяснения тем

большим изменениям интенсивности, которые наблюдались в работах [2, 3]. Необходимо отметить, что во всех экспериментальных работах, кроме [6], не было исследовано влияние температурного градиента для области умеренных значений произведения  $\mu t$  ( $1 < \mu t < 10$ ) и в кинематической области ( $\mu t < 1$ ). В указанных работах величина градиента менялась скачкообразно и поэтому не было возможности дать полную картину зависимости интенсивности от величины температурного градиента. В связи с этим имело определенный смысл проводить исследование кристаллов с умеренными значениями величины  $\mu t$  при непрерывном изменении величины градиента. С помощью таких исследований представление о взаимодействии рентгеновского волнового поля с кристаллом стало бы более полным.

В данной работе проводится изучение характера явления асимметрии [6] (при градиенте, направленном перпендикулярно к отражающим плоскостям  $|J_0 - J_{hkl}| \neq |J_0 - J_{\bar{h}\bar{k}\bar{l}}|$ ,  $J_{hkl} \neq J_{\bar{h}\bar{k}\bar{l}}$ , где  $J_0$ ,  $J_{hkl}$  и  $J_{\bar{h}\bar{k}\bar{l}}$  — интенсивности дифрагированного пучка без градиента на образце и с градиентом, направленным параллельно и антипараллельно дифракционному вектору соответственно) у кристаллов *KDP* для различных  $\mu t$  при непрерывном изменении градиента температуры. Проводится сравнение характера явлений для различных  $\mu t$  у одного и того же образца, а также сравнение явления, наблюдаемого у *KDP*, с особенностями этого же явления у других кристаллов.

## § 1. Методика

В качестве основного объекта исследования был выбран кристалл дигидроортофосфата калия (*KDP*), имея в виду его высокую степень совершенства. Признаком высокого совершенства является хорошее аномальное прохождение, которое наблюдается у этих кристаллов.

Разные значения  $\mu t$  достигались соответствующим подбором длин волн рентгеновского излучения (толщину кристалла оставляли неизменной). Исследования проводились с одним и тем же образцом, что было продиктовано тем, чтобы иметь одинаковые условия рассеяния тепла (мощность нагревателя не менялась). При этом изменялись коэффициент поглощения и угол отражения. Работа была проделана на установке УРС-50 ИМ.

Установление кристалла в отражающее положение производилось с помощью гониометра ГУР-4, обеспечивающего поворот образца вокруг вертикальной оси, и гониометрической головки ГП-4, обеспечивающей поворот образца вокруг горизонтальной оси. Благодаря этим поворотным осям любое семейство отражающих плоскостей можно установить в отражающее положение.

Образец вырезался таким образом, чтобы плоскость (100) была перпендикулярна к большим поверхностям. Образец имел форму прямоугольного параллелепипеда с размерами  $20 \times 18 \times 1,7$  мм<sup>3</sup>. Плоскость (100) была параллельна малой грани ( $18 \times 1,7$ ) образца (см. рис. 1).

Градиент создавался горячей струей воздуха, направленной на один конец образца. Поперечное сечение струи было равно  $20 \times 2 \text{ мм}^2$ . Выбор такого метода создания градиента связан с возможностью применения

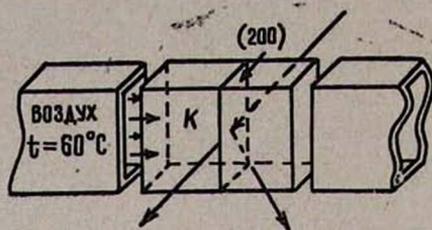


Рис. 1. Схематическое расположение кристалла (К), нагревателей и рентгеновского пучка.

мощного источника тепла с постоянной температурой, а также необходимостью немедленного выключения источника тепла (для сведения к минимуму инерционности нагревателя).

После установления определенного температурного распределения на образце ( $30 \frac{\text{град}}{\text{см}}$ ) источник тепла выключался и начиналось выравнивание температуры между двумя концами образца. С этого момента производилась регистрация интенсивности отраженного рентгеновского пучка. Моменты включения и выключения нагревателя на графиках обозначены буквами „а“ и „б“ соответственно.

В качестве метода создания нарушений в образце был выбран метод температурного градиента с тем, чтобы можно было создавать нарушения правильности кристаллической матрицы не изменяя при этом уже установленного положения кристалла относительно падающего рентгеновского пучка.

Об изменении степени нарушения правильности кристаллической матрицы можно судить по изменению интенсивности дифрагированного рентгеновского пучка. Этот метод удобен также в том отношении, что изменяя величину градиента легко можно менять величину степени нарушения.

## § 2. Результаты

На рис. 2—5 представлены диаграммы, полученные на кристалле *KDP* для различных  $\mu$ . Кривые выражают изменение интенсивности дифрагированного пучка в течение времени, когда был включен нагреватель (от точки а до б), и после выключения нагревателя (после точки б), т. е. в процессе выравнивания температуры. Горизонтальный участок диаграммы дает интенсивность при отсутствии градиента. Направление движения пера ЭПП на рисунках указано стрелкой.

Известно, что интенсивность аномально-проходящего пучка очень чувствительна к нарушениям кристаллической структуры. Как видно из представленных диаграмм 3 и 5, чувствительность при  $\mu = 2,5$

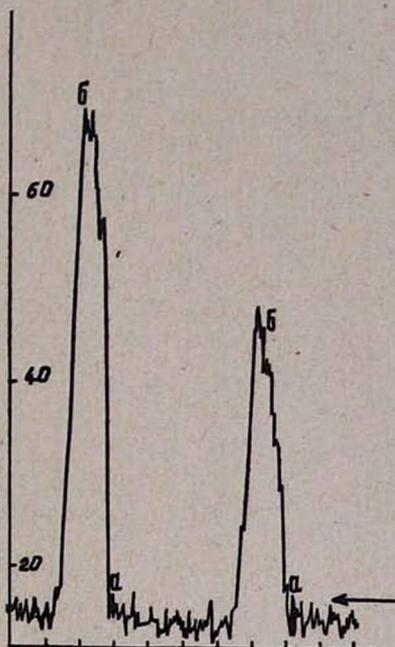


Рис. 2. Изменение интенсивности Лауэ-отраженного пучка у *KDP* при  $\mu t = 0,5$ ,  $\mu = 2,8$ ,  $\lambda = 0,4 \text{ \AA}$ . Отражение  $(200)$  получено излучением непрерывного спектра для случаев: слева —  $\vec{B} \uparrow \downarrow \vec{S}$ ; справа —  $\vec{B} \uparrow \uparrow \vec{S}$ .

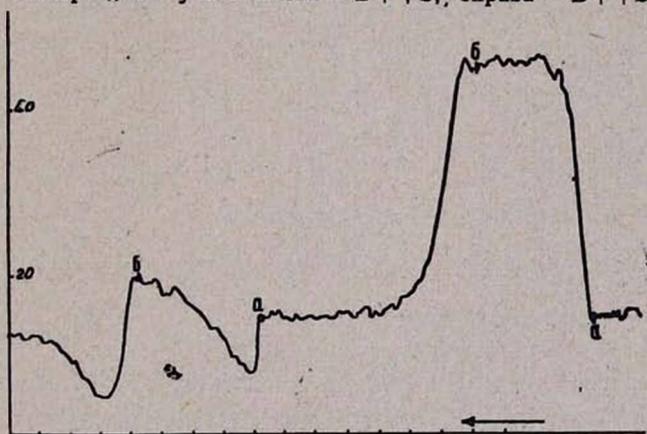


Рис. 3. Изменение интенсивности при  $\mu t = 2,5$ ,  $\mu = 14,6$ ,  $\lambda = 0,71 \text{ \AA}$  ( $\text{MoK}\alpha$ ), слева — при  $B \uparrow \uparrow S$ , справа — при  $\vec{B} \uparrow \downarrow \vec{S}$ .

больше чувствительности при  $\mu t = 37$ , ширина диаграммы (от точки б до горизонтального участка) больше для случая, когда  $\mu t = 2,5$ .

Необходимо отметить еще то, что чувствительность для разных сторон одного и того же семейства плоскостей различна, т. е. диаграммы, полученные от отражений  $(hkl)$  и  $(\bar{h}\bar{k}\bar{l})$ , имеют неодинако-

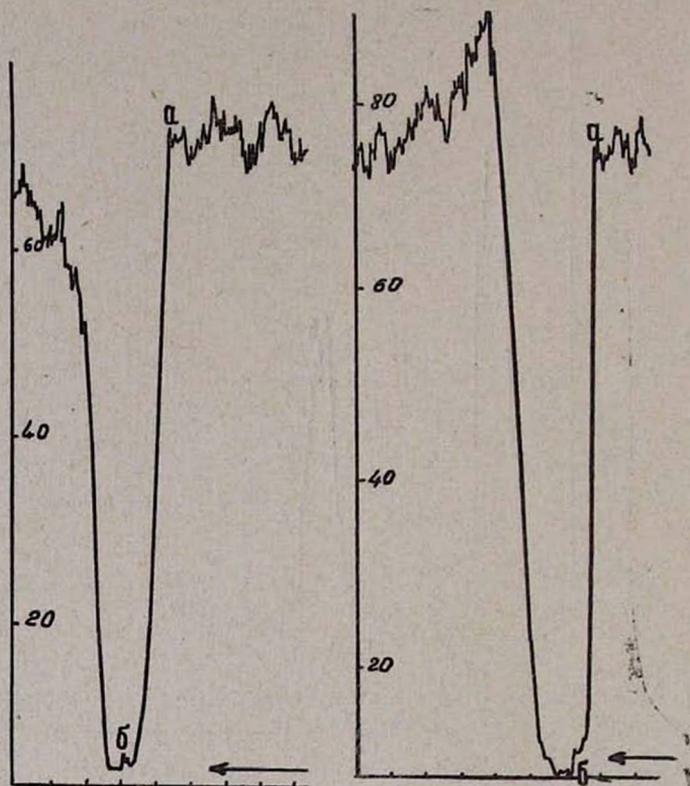


Рис. 4. Изменение интенсивности при  $\mu t = 22$ ,  $\mu = 130$ ,  $\lambda = 1,54 \text{ \AA}$  ( $\text{CuK}\alpha$ ),  
слева — при  $\vec{B} \uparrow \uparrow \vec{S}$ , справа — при  $\vec{B} \uparrow \downarrow \vec{S}$ .

вую ширину (см. рис. 3). Ширина при  $\vec{S} \uparrow \uparrow \vec{B}$  больше, чем ширина при  $\vec{S} \uparrow \downarrow \vec{B}$ . Более того, если интенсивность рефлекса в случае  $\vec{S} \uparrow \downarrow \vec{B}$  при уменьшении градиента достигает своего конечного значения монотонно, то интенсивность рефлекса при  $\vec{S} \uparrow \uparrow \vec{B}$  вначале понижается, а затем повышается (получается минимум).

Следует отметить, что явление асимметрии при градиенте ( $|J_0 - J_{hkl}| \neq |J_0 - J_{\bar{h}\bar{k}\bar{l}}|$ ,  $J_{hkl} \neq J_{\bar{h}\bar{k}\bar{l}}$ ) наблюдается как у кристаллов с центром симметрии (кальцит, точечная группа  $D_{3d} - 3\bar{2}m$ ), так и у кристаллов без центра симметрии (кварц,  $KDP$ ). Независимость характера явления от симметрии кристалла указывает на то, что явление асимметрии обусловлено характером взаимодействия кристалла с волновым полем, т. е. оно свойственно не самому кристаллу, а обусловлено динамическим взаимодействием.

В случае  $\mu t \sim 1$  при увеличении интенсивности дифрагированной волны на столько же уменьшается интенсивность вперед-дифрагированной волны, в результате чего коэффициент интерференционного погло-

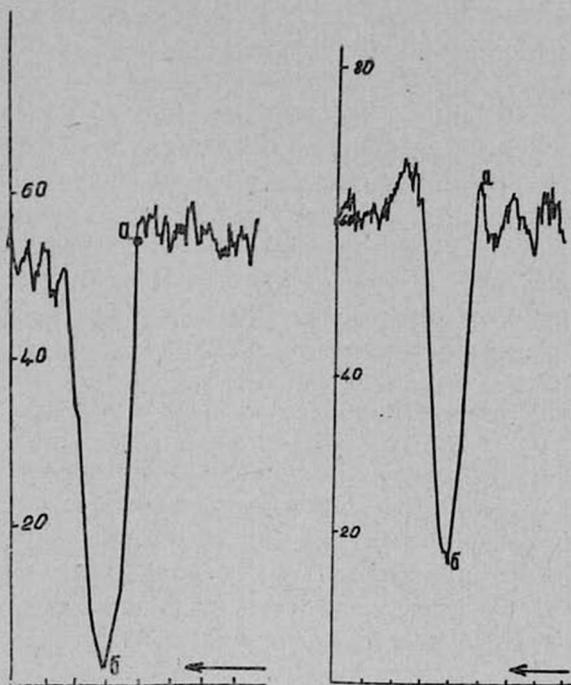


Рис. 5. Изменение интенсивности у  $KDP$  в аномальном случае  $\mu t = 37$ ,  $\mu = 216$ ,  $\lambda = 1,79 \text{ \AA}$  ( $CoK\alpha$ ), слева — при  $\vec{B} \uparrow \uparrow \vec{S}$ , справа — при  $\vec{B} \uparrow \downarrow \vec{S}$ .

щения не меняется, т. е. происходит перераспределение энергии между первичной и дифрагированной волнами.

Общий характер явлений один и тот же для разных кристаллов, но при более детальном рассмотрении можно видеть, что для разных кристаллов имеются расхождения в величинах изменения интенсивности. Например, у кристаллов кремния в аномальной области ( $\mu t \sim 30$ ) пучки более чувствительны к нарушениям (к градиенту), чем в неаномальной области. Градиент, который полностью снимает интенсивность пучка в аномальной области, в случае  $\mu t \sim 1$  изменяет интенсивность только на 10 — 15% от начальной интенсивности. У кристаллов  $KDP$ , наоборот, изменение интенсивности Лауэ-отраженного пучка может иметь такую же величину, что и величина интенсивности дифрагированного пучка при отсутствии градиента, а при больших значениях градиента оно может принимать значение, в несколько раз превышающее начальное значение без градиента [6]. Это справедливо как для случая  $\mu t \sim 1$ , так и для аномального случая (см. рис. 3 и 5).

Асимметричность по величине и по характеру изменения интенсивности наблюдается и при других значениях величины произведения  $\mu t$ , а именно, для случаев  $\mu t = 0,5$  и  $\mu t = 22$  (соответственно рис. 2 и 4).

Из сравнения приведенных диаграмм можно заключить, что чувствительность волнового поля от нарушений больше для средних значений  $\mu t$  ( $\mu t = 2,5$  и  $\mu t = 22$ , рис. 3 и 4) и меньше для крайних значе-

ний ( $\mu t = 0,5$  и  $\mu t = 37$ , рис. 2 и 5). Это следует из того, что промежуток времени от точки б до горизонтального участка кривой для случаев 2 и 5 ( $\tau_2 = 12$  сек,  $\tau_5 = 25$  сек) меньше, чем для случаев 3 и 4 ( $\tau_3 = 100$  сек,  $\tau_4 = 100$  сек).<sup>1</sup> Промежутки между двумя точками на оси абсцисс равны 25 сек. Такой вывод вытекает из того факта, что температурное поле в кристалле для всех случаев одинаково, так как исследовался один и тот же образец и нагревание производилось в течение равных промежутков времени (25 сек), кроме рис. 3, где нагревание производилось в течение 100 сек. В последнем случае можно заключить, что после установления температурного равновесия время спада графика интенсивности не зависит от длительности нагрева.

### § 3. Обсуждение результатов и выводы

В работе [5] при рассмотрении вопроса о влиянии температурного градиента на интенсивность аномально-проходящего пучка предполагалось, что изменения, происходящие в кристалле под действием температурного градиента, связаны с изменением межплоскостного расстояния данного семейства плоскостей (т. е. имеется градиент изменения межплоскостного расстояния в направлении градиента температуры).

В этой работе не учитывалось изменение  $\psi_1$  — Фурье-компоненты величины  $\psi$ , где  $\psi = \frac{\varepsilon - \varepsilon_0}{\varepsilon_0}$ , а  $\varepsilon$  и  $\varepsilon_0$  являются соответственно диэлектрическими постоянными среды и вакуума. Результаты, которые были получены при таких допущениях, лишь качественно объясняют экспериментально наблюдаемые значения изменения интенсивности. Теория не дает объяснения тем большим изменениям интенсивности, которые наблюдались в работах [2, 3].

В экспериментальной работе [7] при рентгено топографическом изучении напряженной области, возникающей на границе тонких пленок, нанесенных на монокристаллические подложки полупроводников (Ge, Si), было сделано предположение, при котором обращение контраста, наблюдаемое при изменении направления дифракционного вектора относительно направления радиуса кривизны искривленных плоскостей, можно объяснить искривлением этих же плоскостей. Это связано с тем, что одновременно с искривлением отражающих плоскостей меняется и форма дисперсионной поверхности и это влечет за собой перемещение узловых точек на двух ветвях дисперсионной поверхности, причем узловые точки, находящиеся на разных ветвях дисперсионной поверхности, перемещаются так, что компоненты интенсивностей в дифрагированной волне, относящиеся к разным ветвям, меняются по-разному. Так, если интенсивность, относящаяся к одной ветви, уменьшается, то интенсивность, относящаяся к другой ветви, увеличивается и, следовательно, при изменении направления дифракционного вектора будет меняться и соотношение этих интенсивностей.

Такое объяснение вполне разумно, если иметь в виду изменение интенсивности у кристаллов  $Si$  или  $Ge$ , а то большое изменение интенсивности, которое наблюдается у кристаллов кварца (примерно в 10 раз, см. [6]) или у  $KDP$ , как нам кажется, невозможно объяснить только с помощью такого механизма. Такому объяснению еще больше противоречит факт немоногоного изменения интенсивности с уменьшением величины градиента при параллельной ориентации дифракционного вектора и вектора градиента, которое наблюдалось нами в работе [6] и в настоящей работе (см. рис. 3 левее точки б').

Нам кажется, что указанные расхождения можно объяснить, если принять во внимание изменение  $\psi_1$ . Это вытекает из того, что  $\psi_1$  зависит от структурной амплитуды  $F(m)$  данного отражения

$$\psi_1 = - \frac{e^2}{\pi m^2} \frac{F(m)}{v}.$$

А структурная амплитуда характеризует интерференцию рентгеновской волны в элементарной ячейке, т. е. ее величина определяется, в частности, соотношением фаз между волнами, рассеянными разными атомами в элементарной ячейке.

Величина  $\psi_1$  в значительной степени изменяется при изменении взаимного расположения атомов в элементарной ячейке, а при наличии градиента на образце такое изменение действительно имеет место.

В таком подходе можно объяснить различное изменение абсолютной интенсивности для разных кристаллов, в частности, для  $Si$  и  $KDP$ , так как у разных кристаллов различным образом будут меняться структурные факторы, изменение которых в конечном счете зависит от характера сил сцепления атомов между собой в данном кристалле.

#### § 4. Возможные применения наблюдаемых явлений

Как уже было сказано выше, под действием градиента атомы в элементарной ячейке могут претерпевать некоторые перемещения. Эти перемещения приводят к возникновению разности фаз между волнами, рассеянными атомами, имеющими разные координаты, и, следовательно, к изменению интенсивности дифрагированной волны. Поэтому решая обратную задачу, по изменению интенсивности дифрагированных волн можно найти изменение взаимного расположения атомов в элементарной ячейке. Разумеется, что для этого необходимо проследить за изменением интенсивности не одного рефлекса, а целой серии соответствующим образом подобранных рефлексов.

Явление асимметричного влияния может найти также и прикладное применение. Например, это явление можно использовать при бесконтактном определении некоторых величин, характеризующих напряженное состояние монокристаллического образца. Такой величиной, в частности, может быть скорость изменения градиента температуры в

объеме образца высокосовершенного монокристалла, которую можно определить, имея график зависимости изменения интенсивности со временем (для соответствующего отражения) и зная это изменение в зависимости от величины градиента. Можно найти также величину и направление градиента в объеме монокристалла, для чего необходимо направить на образец излучение непрерывного спектра [8] и проследить за изменением нескольких специально подобранных дифракционных пучков.

Горисский физико-технический центр  
Ереванский государственный университет

Поступила 15.VII.1972

### Л И Т Е Р А Т У Р А

1. G. Borrmann. Phys. Zs., 42, 157 (1941).
2. G. Borrmann, G. Hildebrandt. Zs. f. Phys., 156, 189 (1959).
3. G. Hildebrandt. Z. Krist., 112, 312 (1959).
4. B. Okkerse. Philips Res. Repts., 17, 464 (1962).
5. P. Penning, D. Polder. Philips Res. Repts., 16, 419 (1961).
6. М. А. Навасардян, Р. К. Караханян, П. А. Безиргааян. Кристаллография, 15, 235 (1970).
7. G. H. Shwittke, J. K. Howard. J. Appl. Phys., 39, 1581 (1968).
8. М. А. Навасардян, П. А. Безиргааян. Кристаллография, 17, 473 (1972).

### ԼԱՍԻԷ-ԱՆԴՐԱԿԱՐՁԱՄ ՓՆՋԻ ԻՆՏԵՆՍԻՎՈՒԹՅԱՆ ՓՈՓՈՒՄԱՆ ԴԻՆԱՄԻԿԱՆ ԶԵՐՄԱՍՏԻՃԱՆԱՅԻՆ ԳՐԱԴԻԵՆՏԻ ՄԵՏՈՒԹՅԱՆ ՄՈՆՈՏՈՆ ՓՈՓՈՒՄԱՆ ԸՆԹԱՑՔՈՒՄ

Մ. Ա. ՆԱՎԱՍԱՐԴՅԱՆ, Պ. Ա. ԲԵԶԻՐԳԱՅԱՆ

Փորձնական եղանակով ուսումնասիրված է KDP-ի բարձր կատարելիություն ունեցող բյուրեղի (200) անդրադարձման ինտենսիվության փոփոխման դինամիկան: Գտնված է, որ Լաուե-անդրադարձած ճառագայթի զգայնությունը կախված խախտման մեծությունից  $\mu \sim 2$  դեպքում ավելի մեծ է, քան անոմալ անցման ժամանակ: Գտնված է նաև, որ ասիմետրիկության երևույթը լավ արտահայտվում է նաև խախտման մեծության անընդհատ փոփոխման ժամանակ:

Ընդունվում է, որ ինտենսիվության փոփոխությունը հաշվելիս պետք է նկատի ունենալ նաև ստրուկտուրային ամպլիտուդայի փոփոխությունը, քանի որ վերջինիս մեծությունը խիստ կախված է էլեմենտար բջջի մեջ ատոմների փոխադարձ դիրքից:

Առաջարկված է ոչ կոնտակտային եղանակով բյուրեղի վիճակը բնութագրող որոշ ֆիզիկական մեծությունների մասին ինֆորմացիայի ստացման մեթոդ: Այդպիսի մեծություններ կարող են հանդիսանալ բյուրեղի մեջ զոյություն ունեցող լարումների բաշխումը և նրանց փոփոխման դինամիկան:

---

**THE DINAMICS OF THE CHANGE OF LAUE-DIFFRACTED  
X-RAY INTENSITY WITH CONTINUOUS VARIATION  
OF TEMPERATURE GRADIENT****M. A. NAVASSARDIAN, P. H. BESIRGANIAN**

It was experimentally investigated the intensity variation of Laue-diffracted  $X$ -rays, the temperature gradient in the crystal of  $KDP$  changing continuously in magnitude. The direction of the temperature gradient was parallel and antiparallel to a diffraction vector. It was established that the Laue-diffracted  $X$ -rays are more sensitive in the case of moderate values of  $\mu t$ , than in the case of  $\mu t = 0,5$  or  $\mu t = 37$ . To explain the great change of  $X$ -ray intensity, it is necessary to take into account the change in the structure amplitude, which was neglected in Penning-Polder's theory. It was proposed a non-contact method for measuring the magnitude and a direction of the temperature gradients.