

УДК 548.732

ВОПРОСЫ ЭКСТИНКЦИИ РЕНТГЕНОВСКИХ ЛУЧЕЙ

П. А. БЕЗИРГАНЯН, В. Г. АСЛАНЯН

Ереванский государственный университет

(Поступила в редакцию 7 июня 1983 г.)

Исследовано влияние экстинкции на интенсивность рассеяния рентгеновских лучей. Показано, что экстинкция, если трактовать ее как экранирование верхними атомными плоскостями (кристалликами) нижних, не уменьшает интенсивность отражения. Дана новая трактовка экстинкции как явления вторичных отражений. При такой трактовке экстинкция уменьшает интенсивность отражения.

Вопрос экстинкции рентгеновских лучей является довольно запутанным. Разные авторы по-разному трактуют эффект экстинкции [1—14]. Поэтому влияние экстинкции на интенсивность рассеяния рентгеновских лучей в кристаллических материалах иногда представляется загадочным. Здесь мы попробуем внести некоторую ясность в этот вопрос.

1. Разные трактовки экстинкции рентгеновских лучей

Как известно, существуют кинематическая (геометрическая) и динамическая теории дифракции рентгеновских лучей. Между кинематической (ρ_k), динамической (ρ_d) и наблюдаемой (ρ_n) интегральными интенсивностями имеет место следующее соотношение:

$$\rho_k > \rho_n > \rho_d. \quad (1)$$

Для объяснения и оценки величины и характера отклонения ρ_n от ρ_k и ρ_d Дарвин [1—3] пользовался идеями первичной и вторичной экстинкций. С тех пор влияние экстинкций на интенсивность дифрагированных пучков в разных случаях трактуется по-разному, причем в этих трактовках в ряде случаев наблюдается несогласованность и произвол. Разберем некоторые из них.

1. Согласно более или менее общепринятому методу теоретического определения коэффициент первичной экстинкции определяется следующим образом [9, 15]. Как известно, в геометрии отражения Брэгга нормаль входной поверхности кристалла в угловой области полного отражения не пересекается с дисперсионной поверхностью — реальные точки распространения не получаются. Следовательно, в этом случае волновые векторы комплексны и мнимые части их обуславливают интерференционное поглощение (ослабление) как проходящих, так и отраженных волн. Амплитуды этих двух пучков волн убывают с глубиной одинаково: один — двигаясь вниз, другой — вверх. При такой трактовке получается, что экстинкция

равна нулю как вне угловой области полного отражения при брэгговской геометрии, так и во всей угловой области при геометрии Лауэ: во всех этих случаях нормаль входной поверхности кристалла пересекается с дисперсионными поверхностями, существуют реальные точки распространения и волновые векторы вещественны.

Допустим, что это так. Но в научной литературе нередки случаи, когда при геометрии Лауэ уменьшение интенсивности отражения также объясняют увеличением экстинкции, а увеличение интенсивности отражения — уменьшением экстинкции. Так, например, расщепление лауэ-пятен (геометрия Лауэ) — уменьшение интенсивности в средних частях пятен — Сакисака [7] объясняет наличием экстинкции в средних частях кристалла и, наоборот, увеличение интенсивности по краям лауэ-пятен, полученных от кристалла, входные и выходные поверхности которых отшлифованы, объясняет уменьшением экстинкции. Как правило, во всех случаях, даже при геометрии Лауэ, когда в кристалле создаются температурный градиент, пьезоэлектрические колебания, механические напряжения и т. д., которые приводят к увеличению интенсивности отражения, предполагается, что происходит уменьшение экстинкции [4, 9, 10]. Правомерны ли такие предположения? Этот вопрос мы выясним позже, а пока продолжим обсуждение.

2. В другой трактовке [3, 8] роль экстинкции характеризуется ослаблением первичной волны дважды отраженной волной. При каждом отражении волна меняет фазу на $\pi/2$, поэтому дважды отраженная волна распространяется в направлении падающей волны в антифазе с ней и гасит ее. Однако необходимо иметь в виду, что такая ситуация имеет место и в случае геометрии Лауэ, так что рассматриваемая трактовка не исключает существование экстинкции при лауэ-отражениях (первичная экстинкция).

3. Наконец, в работе [2] Дарвин выводит формулу, определяющую поправку на первичную экстинкцию. Он находит интегральные интенсивности для одного и того же кристаллического слоя в приближениях кинематической и динамической теорий и определяет разность

$$\rho_k - \rho_d = \left(1 - \frac{\text{th } pq}{pq}\right) \rho_k, \quad (2)$$

где q — амплитуда волны, отраженной от одной плоскости, p — число плоскостей в слое.

Как видно из (2), при увеличении числа плоскостей разность этих интегральных интенсивностей растет не только потому, что растет разность $1 - (\text{th } pq)/pq$, но и потому, что растет кинематическая интегральная интенсивность: растет объем V , а $\rho_k \sim V$.

4. Вопрос вторичной экстинкции в основном обсуждался в работе [3]. Вторичная экстинкция трактуется как некогерентный эффект. Предполагается, что фазы волн, отраженных от разных блоков мозаичного кристалла, от блока к блоку меняются совершенно хаотично. Действительно, если кристаллические блоки в мозаике расположены статистически случайно, то они рассеивают рентгеновские лучи оптически независимо друг от друга. Поэтому разности фаз как между волнами, рассеянными блоками, так и между этими волнами и первичной падающей волной меняются не регулярно: эти волны не когерентны друг относительно друга, слагаются не их амплитуды, а интенсивности.

В интерпретациях экстинкции приходят к заключению, что интенсивность первичного пучка по мере углубления его в кристалл падает: верхние плоскости (кристаллики) экранируют нижние, поэтому интенсивность отражения падает. Однако уменьшение интенсивности первичной волны в глубине кристалла не может привести к ослаблению интенсивности отражения; это есть результат перекачки энергии первичного пучка в отраженный пучок. Эффект уменьшения интенсивности первичного пучка, наоборот, может привести к увеличению интенсивности отражения. Это, например, может произойти в тонких и сильно поглощающих кристаллах. Если кристалл так тонок, что при слабой экстинкции часть энергии первичного пучка без отражения проходит через кристалл (слабое отражение), то при сильной экстинкции первичный пучок через кристалл не может проходить, он полностью отражается (сильное отражение). В поглощающих кристаллах при слабой экстинкции первичный пучок больше углубляется в кристалл и больше поглощается (ослабление отражения), а при сильной экстинкции мало углубляется и меньше поглощается (усиление отражения).

В этих интерпретациях причиной ослабления первичного пучка иногда считают противофазность дважды отраженной волны: дважды отраженная волна гасит первичную волну и ее энергию переводит в отраженный пучок. Здесь чувствуется противоречивость, непоследовательность и необоснованность.

Во-первых, не всегда дважды отраженная волна бывает в противофазе с первичной волной. Как показано в работе [16], противофазность не имеет места в конечных кристаллах: амплитуда волны, отраженной от плоскости с конечными размерами, бывает комплексной, а не чисто мнимой. В случае вторичной экстинкции не может быть антифазности между первичной и дважды отраженными волнами.

Во-вторых, необходимо иметь в виду, что при втором отражении отраженной волны часть ее энергии переводится в первичный пучок.

В-третьих, если гашение первичной волны переводит ее энергию в отраженный пучок, то тогда первичная экстинкция не ослабляет, а усиливает интенсивность отражения.

2. Новая трактовка экстинкции. Характер влияния экстинкции на интенсивность дифрагированных рентгеновских волн

Условимся называть экстинкцией вообще явление многократного отражения рентгеновских волн. В первом приближении, ограничиваясь однократным отражением первичных и отраженных волн, экстинкцией назовем явление вторичного отражения раз отраженной волны.

Первичная экстинкция — когда во всем объеме кристалла, участвующем в рассеянии, первичная волна и все дважды отраженные волны когерентны друг относительно друга.

Вторичная экстинкция — когда во всем объеме кристалла, участвующем в рассеянии, первичная волна и дважды отраженные волны не когерентны друг относительно друга.

Первично-вторичная экстинкция (одновременное существование как первичной, так и вторичной экстинкции) — когда в мозаичном кристалле

в пределах отдельных блоков первичная и дважды отраженные в данном блоке волны когерентны друг относительно друга, а суммарные волны, вторично отраженные разными блоками, не когерентны ни друг с другом, ни с первичной волной.

Итак, мы считаем, что экстинкция — результат вторичного отражения (результат отражения отраженной волны).

Рассмотрим некоторые случаи.

1. Экстинкция отсутствует: волны, отраженные раз, внутри кристалла не отражаются (идеально мозаичный кристалл; рис. 1).

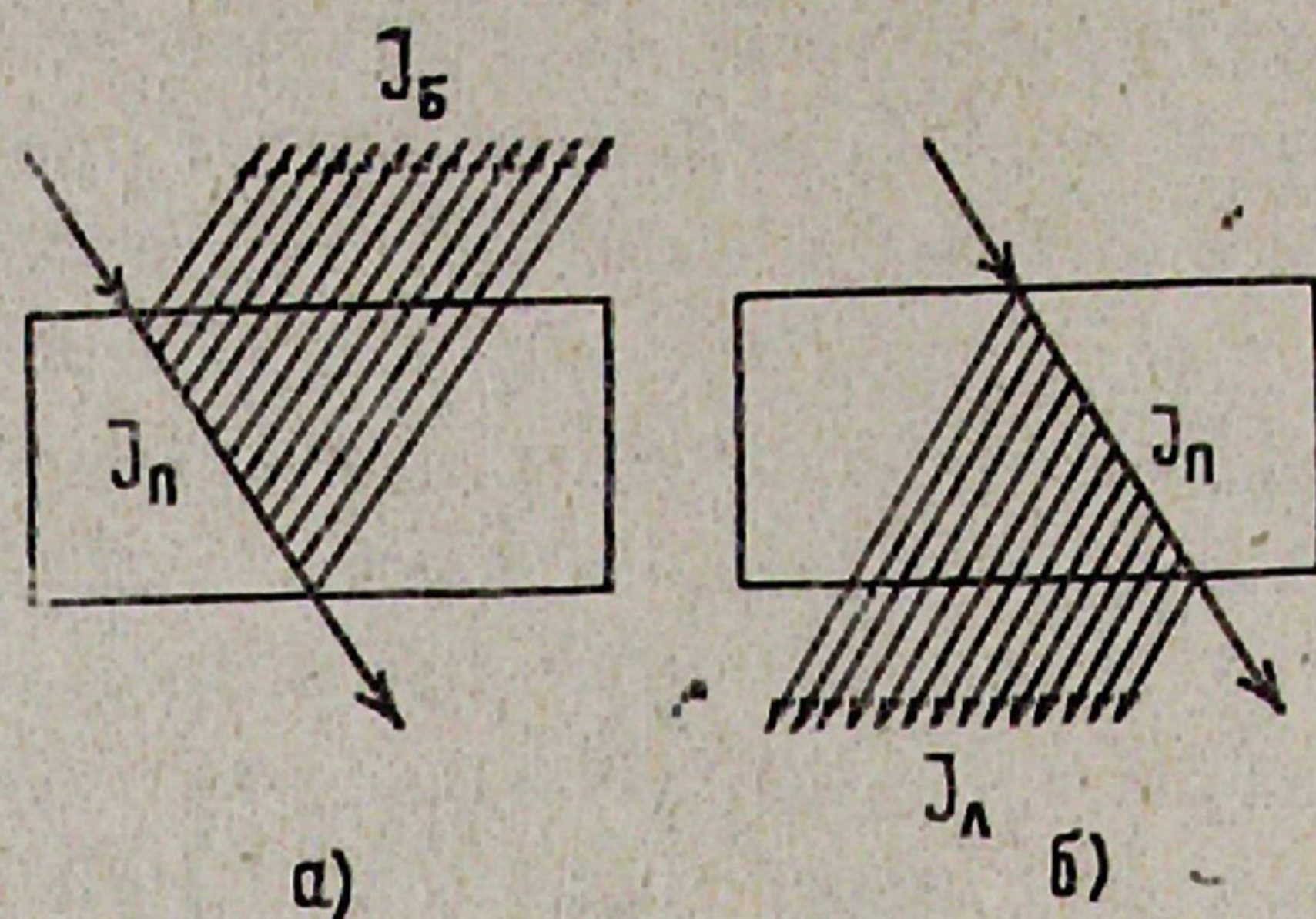


Рис. 1. Кинематическое рассеяние рентгеновских лучей. Вторичных отражений нет, экстинкция отсутствует (нет ни первичной, ни вторичной экстинкций): а — геометрия Брэгга; б — геометрия Лауэ.

В этом случае интенсивности отражения по Брэггу (I_B) и по Лауэ (I_L) с ростом толщины кристалла растут до тех пор, пока на выходе из кристалла интенсивность первичного пучка отлична от нуля.

Обычная кинематическая теория, не учитывающая ослабление интенсивности первичной волны из-за отражения, приводит к противоречию с законом сохранения энергии: при больших толщинах кристалла интенсивность отраженной волны получается больше, чем интенсивность первичной волны. Естественно, что наблюдаемые интенсивности в реальных условиях всегда меньше, чем те, которые получаются в кинематической теории. Во избежание грубых ошибок в кинематической теории необходимо учесть ослабление интенсивности первичной волны из-за отражения, что и сделано нами в этом параграфе.

В рассматриваемом случае, когда первичная и вторичная экстинкции отсутствуют (отсутствие вторичных отражений), уравнение Дарвина для вторичной экстинкции при $\mu = 0$ принимает следующий вид [3]:

$$\frac{dI_u(z)}{dz} = -\frac{G(u)}{\sin(\theta + u)} I_u(z), \quad \frac{dE_u(z)}{dz} = \frac{G(u)}{\sin(\theta + u)} I_u(z), \quad (3)$$

где z — глубина проникновения в кристалл, $I_u(z)$ и $E_u(z)$ — мощности соответственно падающего и отраженного пучков на глубине z , $G(u)$ — величина, связанная с числом блоков в единице объема, расположенных в положении отражения при угле скольжения $\theta + u$ (сверху) и при угле скольжения $\theta - u$ (снизу), которая определяется как доля рассеяния, вносимая блоками, когда луч падает на кристалл под углом скольжения $\theta + u$; u — угол между поверхностью входа (или выхода) и отражающими плоскостями.

Проинтегрируем первое уравнение в пределах от нуля до l (l — толщина кристалла):

$$\int_0^l \frac{dI_u(z)}{I_u(z)} = - \int_0^l A dz, \quad A = \frac{G(u)}{\sin(\theta + u)}.$$

Предполагая, что $G(u)$ не зависит от z , получим

$$I_u(l) = I_u(0) e^{-Al}. \quad (4)$$

Имея в виду последнее соотношение, запишем (3) в виде

$$dE_u(z) = A I_u(0) e^{-Az} dz$$

и проинтегрируем в следующих пределах:

$$\int_0^{E_u(l)} dE_u(z) = A I_u(0) \int_0^l e^{-Az} dz = I_u(0) (1 - e^{-Al}), \quad (5)$$

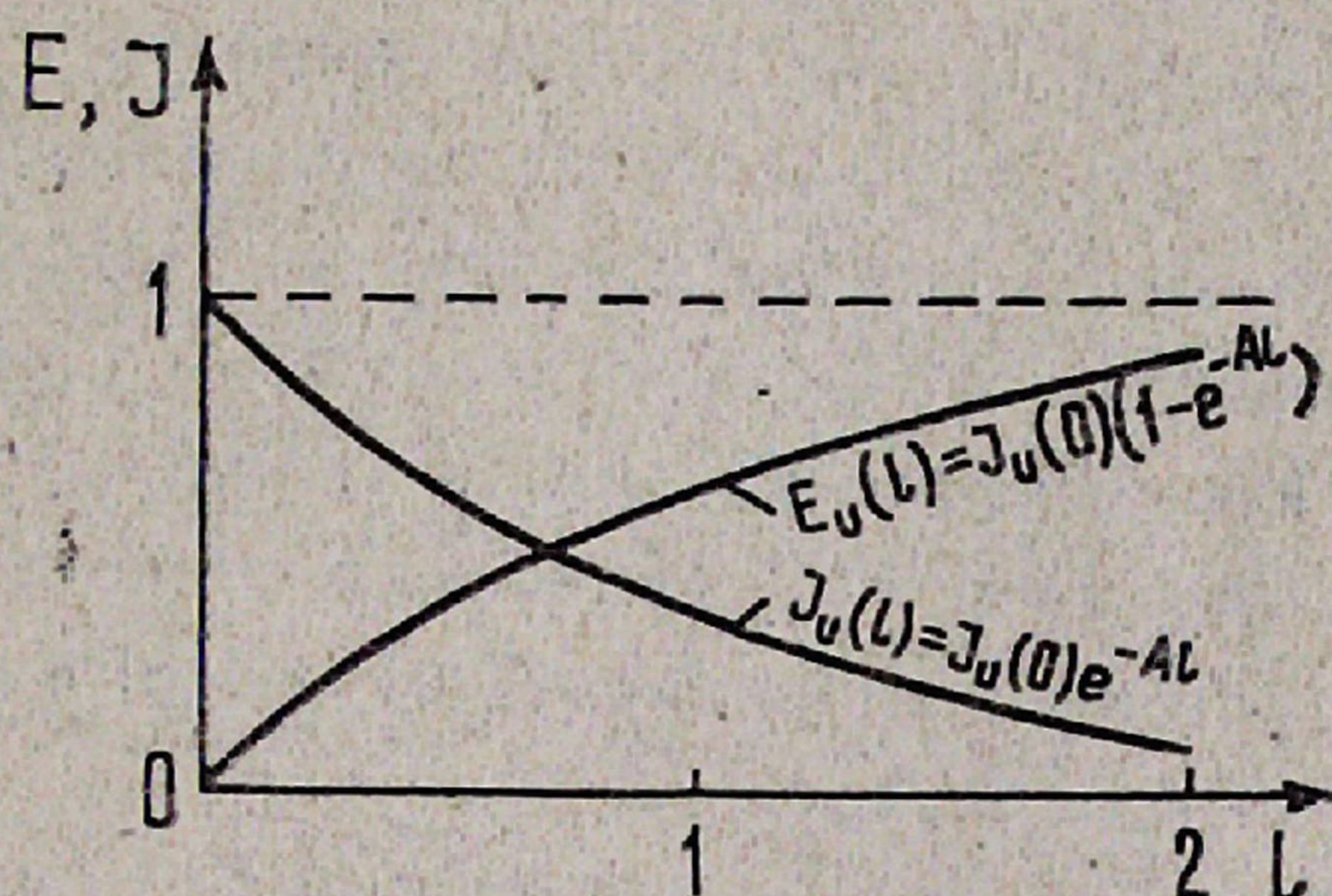
где $I_u(0)$ — мощность первичного пучка на входной поверхности. Так как мощность отраженного пучка на выходной поверхности $E_u(0) = 0$, из (5) для отраженного пучка получаем

$$E_u(l) = I_u(0) (1 - e^{-Al}). \quad (6)$$

Как видно из (4) и (6), из-за отражения мощность первичного пучка с ростом толщины непоглощающего кристалла падает от $I_u(0)$ до нуля, а мощность отраженного пучка при этом растет от нуля до $I_u(0)$ (рис. 2).

Итак, в непоглощающих кристаллах при отсутствии экстинкции происходит полное отражение (в идеально мозаичных кристаллах).

Рис. 2. Зависимость мощности падающего и отраженного пучков от толщины кристаллов в непоглощающих кристаллах.



Теперь перейдем к учету поглощения в идеально мозаичных кристаллах, где отсутствует экстинкция. В этом случае уравнение Дарвина для вторичной экстинкции [3] примет следующий вид:

$$\frac{dI_u(z)}{dz} = -A_1 I_u(z), \quad \frac{dE_u(z)}{dz} = -A_2 E_u(z) + A_3 I_u(z), \quad (7)$$

где

$$A_1 = \frac{\mu + G(u)}{\sin(\theta + u)}, \quad A_2 = \frac{\mu}{\sin(\theta - u)}, \quad A_3 = \frac{G(u)}{\sin(\theta + u)}.$$

Из первого уравнения находим

$$I_u(z) = I_u(0) e^{-A_1 z}. \quad (8)$$

И если, не совершая большой ошибки, вместо $E_u(z)$ подставить значение $E_u(z) = \frac{A_3}{A_1} I_u(0) (1 - e^{-A_1 z})$, то второе уравнение из (7) примет вид

$$dE_u(z) = -\frac{A_2 A_3}{A_1} I_u(0) \int (1 - e^{-A_1 z}) dz + A_3 I_u(0) \int e^{-A_1 z} dz,$$

откуда получим

$$E_u(l) = I_u(0) \left[-\frac{A_2 A_3}{A_1} l + \frac{A_2 A_3}{A_1^2} (1 - e^{-A_1 l}) + \frac{A_3}{A_1} (1 - e^{-A_1 l}) \right]. \quad (9)$$

Перепишав его в виде

$$E_u(l) = \frac{A_3}{A_1} I_u(0) [B + (1 - e^{-A_1 l})]$$

и замечая, что согласно (7) и (9)

$$\frac{A_3}{A_1} < 1, \quad B < 0, \quad 1 - e^{-A_1 l} \leq 1,$$

легко убедиться в том, что

$$E_u(l) < I_u(0), \quad (10)$$

т. е. полное отражение не происходит в том смысле, что часть мощности первичной волны поглощается; поэтому мощность отраженного пучка меньше мощности первичного пучка.

2. Экстинкция отлична от нуля: внутри кристалла часть отраженной волны вторично отражается в сторону первичной волны.

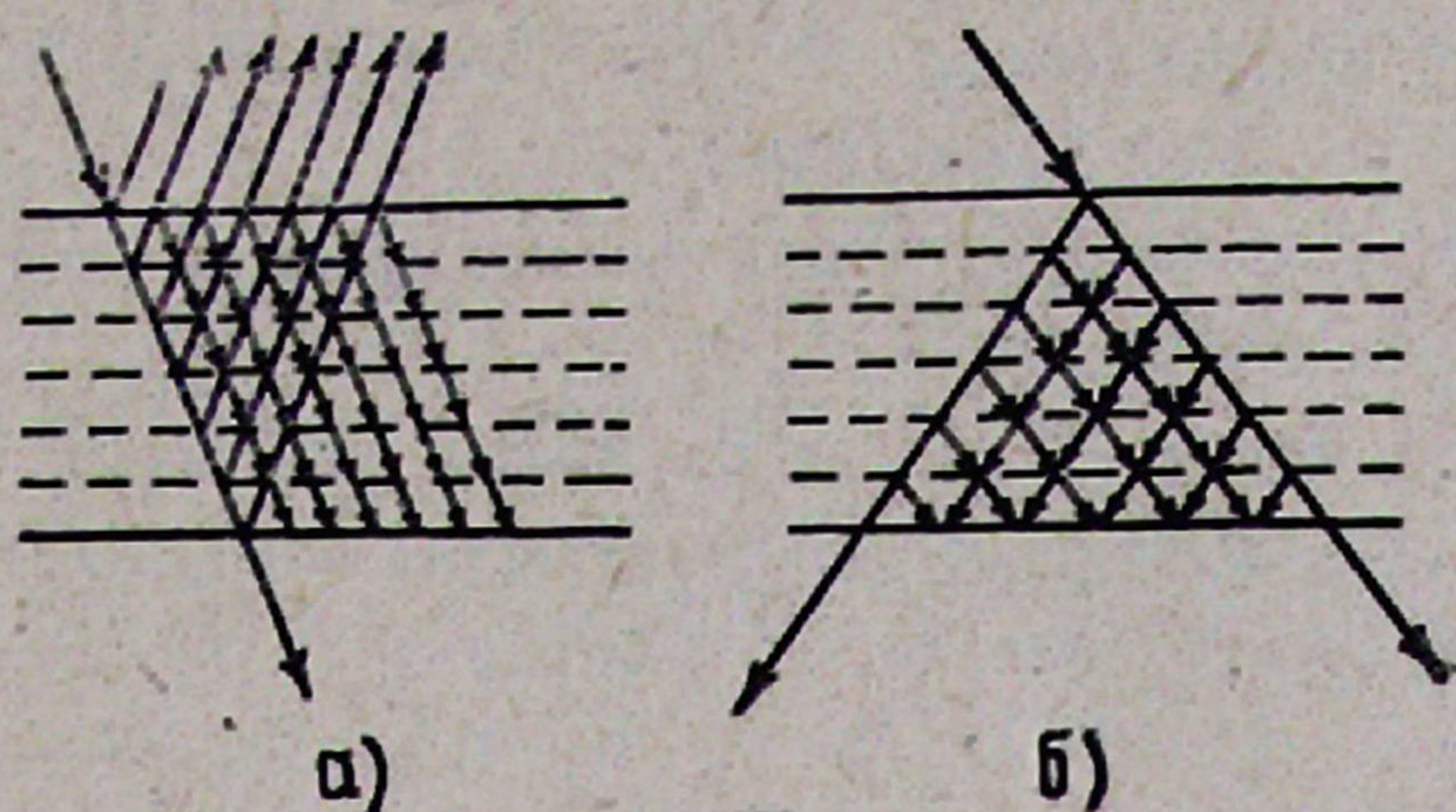
В случае, когда отраженная волна вторично может отразиться, возникает экстинкция — часть энергии отраженной волны возвращается к первичной волне и интенсивность отражения уменьшается. Здесь надо различать случаи, когда вторичное отражение когерентно с первичным пучком и когда оно не когерентно. При когерентном вторичном отражении возникает первичная экстинкция, а при некогерентном — вторичная экстинкция. Необходимо различать также случаи наличия или отсутствия фотоэлектрического поглощения. Для более детального исследования влияния экстинкции на интенсивность отражения необходимо различать и случаи геометрий Брэгга и Лауэ.

Первичная экстинкция — когерентные вторичные отражения. Когерентные вторичные отражения возникают только в идеальных монокристаллах. Еще раз подчеркнем, что экстинкция — это не уменьшение интенсивности первичной волны (не экранирование нижних плоскостей (кристалликов) верхними) по мере углубления ее в кристалл, а вторичные отражения, которые ослабляют отраженный пучок. Экранирование (ослабление первичного пучка) усиливает отражение.

В случае Брэгга в непоглощающем кристалле (рис. 3а) из-за вторичных отражений глубина проникновения увеличивается — часть отраженной энергии возвращается в первичный пучок, но все-таки получается полное отражение. В поглощающих кристаллах это приводит к увеличению поглощения и уменьшению интенсивности отражения. Первичный пучок больше углубляется в кристалл и больше поглощается. Таким образом, по нашему определению, при геометрии Брэгга экстинкция уменьшает интенсивность отражения в поглощающих кристаллах.

При геометрии Лауэ также имеют место вторичные отражения, следовательно, по нашему определению, и при этой геометрии существует экстинкция (см. рис. 3б). Если при геометрии Брэгга отраженная волна по-

Рис. 3. Возникновение первичной экстинкции: а — случай Брэгга; б — случай Лауэ (пунктирными линиями показаны следы плоскостей).



степенно уходит из кристалла (рис. 3а) и поэтому в непоглощающих кристаллах получается полное отражение, то при геометрии Лауэ вторично отраженные волны многократными отражениями доходят до поверхности выхода и только оттуда выходят из кристалла. Поэтому в случае Лауэ отраженная энергия первичного пучка распределяется между проходящим и отраженным пучками в среднем одинаково (поровну).

Выводы

В результате детального обсуждения различных трактовок экстинкции рентгеновских лучей и на основе наших экспериментальных исследований мы приходим к следующим основным выводам.

1. Трактовка экстинкции как экранирования верхними атомными плоскостями (кристалликами) нижних плоскостей (кристалликов) противоречит общепринятому положению, согласно которому экстинкция уменьшает интенсивность отражения. При такой трактовке экстинкция не уменьшает, а увеличивает интенсивность отражения.

2. Для правильной интерпретации зависимости интенсивности отражения от совершенства кристаллов необходимо экстинкцию трактовать как явление многократного отражения рентгеновских волн, причем первичную экстинкцию следует трактовать как явление когерентного многократного отражения, а вторичную — как явление некогерентного многократного отражения.

3. По такой новой трактовке экстинкция действительно уменьшает интенсивность отражения.

4. При полном отсутствии как первичной, так и вторичной экстинкций энергия первичного пучка может полностью переходить в отраженный пучок.

5. Экстинкцию можно уменьшить с помощью деформации кристалла различными способами: механическим, пьезоэлектрическими колебаниями, температурным градиентом и т. д., что дает возможность сильно увеличить интенсивность отражения рентгеновских лучей.

ЛИТЕРАТУРА

1. Darwin C. G. Phil. Mag., 27, 315 (1914).
2. Darwin C. G. Phil. Mag., 27, 675 (1914).
3. Darwin C. G. Phil. Mag., 43, 800 (1922).

4. Laue M. *Ergebnexant Naturwiss*, 10, 133 (1931).
5. Laue M. *Röntgenstrahlinterferenzen*, 2-te Aufl., 1948.
6. Laue M. *Röntgenstrahlinterferenzen*. Frankfurt am Main, 1960.
7. Sakisaka Y., Suwoto I. *Proc. Math.-Phys. Soc. (Japan)*, 13, 211 (1931).
8. Zachariasen W. H. *Theory of X-Ray Diffraction in Crystals*.—New York: J. Wiley, Sons, 1945
9. Джеймс Р. *Оптические принципы дифракции рентгеновских лучей*. Изд. ИЛ, М., 1950.
10. James R. W. *Sol. State Phys.*, 15, 53 (1963).
11. Пинскер Э. Г. *Рентгеновская кристаллооптика*. Изд. Наука, М., 1982.
12. Ивернова В. И., Ревкевич Г. П. *Теория рассеяния рентгеновских лучей*. Изд. МГУ, М., 1972.
13. Боровский И. Б. *Физические основы рентгеноспектральных исследований*. Изд. МГУ, М., 1956.
14. Battermann B. W., Cole H. *Rev. Mod. Phys.*, 36, 681 (1964).
15. Безиргян П. А., Безиргян К. Н. *Научные труды ЕРГУ*, 2 (1975).
16. Безиргян П. А. *ДАН АрмССР*, 32, 81 (1960).

ՌԵՆՏԳԵՆՅԱՆ ՀԱՌԱԳԱՅԹՆԵՐԻ ԷԲՍԽԵԿՑԻԱՅԻ ՀԱՐՑԵՐ

Պ. Հ. ԲԵԶԻՐԳՅԱՆ, Վ. Գ. ԱՍԼԱՆՅԱՆ

Ուսումնասիրված է էքստինկցիայի ազդեցությունը ռենտգենյան ճառագայթների ցրման ինտենսիվության վրա: Ցույց է տրված, որ էքստինկցիայի մեկնարանում որպես ստորին հարթությունների էկրանավորում վերին ատոմական հարթություններով չի նվազեցնում անդրադարձման ինտենսիվությունը: Տրված է էքստինկցիայի նոր մեկնարանում որպես երկրորդական անդրադարձումների երևույթ: Հստ նոր մեկնարանման էքստինկցիան նվազեցնում է անդրադարձման ինտենսիվությունը:

SOME PROBLEMS OF X-RAY EXTINCTION

P. H. BEZIRGANYAN, V. G. ASLANYAN

The influence of extinction on the intensity of X-ray scattering has been investigated. It has been shown that the extinction, when treated as the shielding of upper atomic planes by the lower ones, didn't reduce the intensity of reflections. A new interpretations of the extinction as a phenomenon of secondary reflection is given. In this interpretation the extinction reduces the intensity of reflections.