

УДК 548.732

НОВЫЙ МЕТОД РЕАЛИЗАЦИИ ДИФРАКЦИИ ШИРОКО РАСХОДЯЩЕГОСЯ ПУЧКА РЕНТГЕНОВСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

К.Т. АВЕТЯН, М.М. АРАКЕЛЯН, П.А. ГРИГОРЯН, Д.Г. МАИЛЯН,
О.С. СЕМЕРДЖЯН, А.А. ТАДЕВОСЯН

Ереванский государственный университет

(Поступила в редакцию 19 июля 2006 г.)

Разработан метод реализации дифракции широко расходящегося пучка рентгеновского излучения с использованием стандартной рентгеновской трубки с линейным фокусным пятном. Рентгеновское излучение, проходящее через диафрагму диаметром ~50 мкм, дифрагирует на кристалле, установленном вплотную к диафрагме. Кристалл вместе с фотопластинкой вращается вокруг оси, перпендикулярной фотопластинке. Дифракционное изображение представляет собой набор гипербол. Получены уравнения гипербол и построена компьютерная версия дифракционного изображения при различных ориентациях кристалла.

1. Введение

Тенденция уменьшения размеров различных кристаллических функциональных элементов и субструктур ставит новые требования к рентгенодифракционным методам исследования: приходится локализовывать исследуемую область до размеров отдельных функциональных элементов и при этом, по возможности, повышать информативность. Мы полагаем, что желаемых результатов можно достичь дифракцией широко расходящегося пучка (ШРП) рентгеновского излучения (РИ) с использованием источника с размерами, не превышающими размеров отдельных элементов. Как известно, такая дифракция впервые была осуществлена Косселем по схеме, в которой точечный источник рентгеновского излучения создается электронным пучком, сфокусированным на поверхности исследуемого кристалла. Хотя по ряду причин схема Косселя не нашла широкого практического применения, однако к идее дифракции излучения от точечного источника исследователи возвращались неоднократно.

В работах [1-4] подробно рассмотрены геометрические особенности методов идентифицирования дифракционных изображений и оценены их возможности. В экспериментах был применен микрофокусный генератор с капиллярной трубкой прострельного типа, в которой в качестве анода служила металлическая фольга толщиной 20 мкм, расположенная в торце капилля-

ра. Анодное пятно размером около 10 мкм создавалось на внутренней поверхности окна. Экспериментальная установка позволяла получать высококачественное изображение и производить прецизионные измерения по схеме "на отражение" и "прохождение" при расположении исследуемого образца вплотную к фокусному пятну.

В работах [5-7] приводятся экспериментальная установка и первые пробные дифракционные изображения, полученные от локальных областей исследуемого кристалла в ШРП по схеме "на отражение". Рентгеновское излучение, коллимированное капилляром диаметром около 300 мкм, направляется на исследуемый кристалл, ШРП имитируется прецессией кристалла вместе с фотографической пластинкой вокруг падающего пучка. В работе [8] приведены результаты прецизионных измерений параметров решетки бездислокационного кристалла алмаза. Источником расходящегося пучка рентгеновского излучения является тонкая (~ 2 мкм) фольга меди, на тыловую сторону которой сфокусирован электронный пучок, сформированный в растровом электронном микроскопе. Высокая точность измерений достигается благодаря малым размерам фокусного пятна и большим размерам камеры (≈ 700 мм). Измерения проведены "на прохождение" при $\mu > 1$ с учетом многоволнового рассеяния.

В работе [9] исследованы кристаллические структуры поликристаллических образцов Al и BaTiO_3 . Показано, что метод позволяет определять корреляцию между границами соседних зерен. В качестве источника расходящегося пучка излучения использована капиллярная трубка прострельного типа. (Анод – тонкая фольга железа. Анодное напряжение 30-40 кВ).

В работе [10] приведены результаты исследований периодических наноструктур. Показано, что при скользящей геометрии дифракции рентгеновского излучения на наноструктурах наблюдается анизотропия, которую можно использовать для прецизионных измерений характеристик этих структур.

В настоящей работе предложен новый метод реализации дифракции широко расходящегося пучка рентгеновского излучения в кристалле с использованием стандартной рентгеновской трубки.

2. Геометрические особенности метода и схема эксперимента

В экспериментальной установке источником РИ является стандартная рентгеновская трубка с линейным фокусом. РИ проходит через диафрагму (круглое отверстие диаметром $d \approx 50$ мкм непрозрачного экрана) и падает на исследуемую область кристалла, установленную вплотную к диафрагме.

Волновые векторы характеристического излучения (ХИ), удовлетворяющие условию дифракции, расположены на дифракционных конусах (ДК) с общей вершиной, совпадающей с диафрагмой, размерами которой будем пренебрегать. На рис.1 приведена схема эксперимента симметричного случая Лауэ для определенного семейства атомных плоскостей $(h_0 k_0 l_0)$, которое бу-

дем принимать как исходное. Начало координат совмещено с диафрагмой, плоскость XOZ – с плоскостью $(h_0 k_0 l_0)$, ЛФ установлен параллельно плоскости XOY на расстоянии L_0 от диафрагмы. Условие дифракции будет выполнено, если какая-нибудь точка ЛФ является общей с ДК. На рис.1 общей с ДК является крайняя точка ЛФ, удаленная от оси Z на расстояние $L_0 \operatorname{tg} \theta_{h_0 k_0 l_0}^{(n)}$, где $\theta_{h_0 k_0 l_0}^{(n)}$ – угол Брэгга при данной длине волны характеристического излучения, (n) – дифракционный порядок. При вращении ЛФ вокруг оси z общая точка ЛФ и ДК будет перемещаться вдоль ЛФ и на ДК последовательно окажутся все точки ЛФ. Другая крайняя точка удалена от оси Z на расстояние $L_0 \operatorname{tg} \theta_{h_0 k_0 l_0}^{(n)} + f$, где f – длина ЛФ.

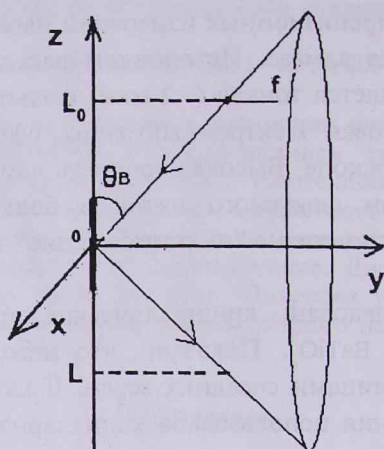


Рис.1. Схема эксперимента.

При данном выборе координат уравнение конической поверхности для семейства плоскостей $(h_0 k_0 l_0)$ можно представить в виде

$$x^2 + z^2 = y^2 \operatorname{ctg}^2 \theta_{h_0 k_0 l_0}^{(n)}. \quad (1)$$

Фотографическая пластинка устанавливается параллельно плоскости XOY на расстоянии $z = L$ от начала координат. Дифракционное изображение данного семейства $(h_0 k_0 l_0)$ на фотопластинке является коническим сечением ДК плоскостью $z = L$ и представляет собой пару ветвей гиперболы для каждой из длин волн характеристического излучения K_α, K_β в каждом порядке дифракции.

Уравнение гиперболы удобно представить в виде

$$x^2 \sin^2 \theta_{h_0 k_0 l_0}^{(n)} - y^2 \cos^2 \theta_{h_0 k_0 l_0}^{(n)} + L^2 \sin^2 \theta_{h_0 k_0 l_0}^{(n)} = 0. \quad (2)$$

Обобщая уравнение (2), для любого из семейства плоскостей (hkl) , повернутого на угол α вокруг оси Z и на угол γ вокруг оси X , получим

$$x^2 (\sin^2 \theta_{hkl}^{(n)} - \sin^2 \alpha \cos^2 \gamma) + y^2 (\sin^2 \theta_{hkl}^{(n)} - \cos^2 \alpha \cos^2 \gamma) + L^2 \sin^2 \theta_{hkl}^{(n)} + 2xy \sin \alpha \cos \alpha \cos^2 \gamma + 2L \sin \gamma \cos \gamma (x \sin \alpha - y \cos \alpha) = 0 \quad (3)$$

Полное дифракционное изображение представляет собой набор гипербол, соответствующих всевозможным отражениям (hkl), структурные амплитуды которых отличны от нуля и не ограничены геометрическими особенностями нашего эксперимента. Уравнение (3) дает возможность моделировать дифракционное изображение (строить компьютерную версию дифракционного изображения).

Для семейств исходных плоскостей ($h_0k_0l_0$) $\alpha_{h_0k_0l_0} = 0$. Если семейства плоскостей (hkl) и ($h_0k_0l_0$) принадлежат одной зоне, то для недеформированного кристалла α представляет собой угол между этими плоскостями: $\cos \alpha = (h_0h + k_0k + l_0l) / \sqrt{(h_0^2 + k_0^2 + l_0^2)(h^2 + k^2 + l^2)}$. γ_{hkl} представляет собой угол между осью вращения и данной плоскостью (hkl). Для всех плоскостей, ось зоны которых параллельна оси вращения, $\gamma_{hkl} = 0$. Совмещение осей упрощается, если большая грань кристалла совпадает с семейством плоскостей $h_1k_1l_1$ при условии $h_0h_1 + k_0k_1 + l_0l_1 = 0$ (симметричный случай). При малых отклонениях от симметрии уравнение дифракционного изображения можно представить в виде

$$x^2(\sin^2 \theta_{hkl}^{(n)} - \sin^2 \alpha_{hkl}) + y^2(\sin^2 \theta_{hkl}^{(n)} - \cos^2 \alpha_{hkl}) + L^2 \sin^2 \theta_{hkl}^{(n)} + 2xy \sin \alpha_{hkl} \cos \alpha_{hkl} + 2Ly(x \sin \alpha_{hkl} - y \cos \alpha_{hkl}) = 0. \quad (4)$$

Для семейства плоскостей (hkl), ось зоны которого не совпадает с осью OZ, $\cos \gamma_{hkl} = (hh_1 + kk_1 + ll_1) / \sqrt{(h^2 + k^2 + l^2)(h_1^2 + k_1^2 + l_1^2)}$.

Экспериментальная установка базируется на стандартном дифрактометре ДРОН-2. Сконструирована специальная камера, схема которой приведена на рис.2.

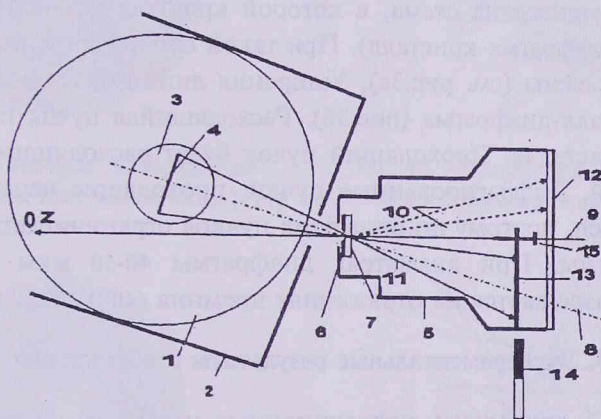


Рис. 2. Схема камеры.

Линейный фокус (4) рентгеновской трубки (1) установлен на горизонтальной оси (8) гониометра перпендикулярно к ней и по возможности близко к вертикальной оси (на рис.2 гониометр не показан). Рентгеновское излучение проходит через диффрагму (6), установленную на пересечении горизон-

тальной и вертикальной осей гониометра. Расходящийся пучок падает на исследуемый образец (7), установленный вплотную к диафрагме. Дифрагированное излучение (10) падает на фотографическую пластинку (12), установленную перпендикулярно оси вращения (9) камеры (5). Недифрагированное (проходящее) излучение (11) задерживается заслонкой (13), которая может свободно вращаться вокруг валика (15), ось которого совмещена с осью (9). Камера вращается вокруг оси (9), при этом положение заслонки (13) относительно проходящего излучения (11) не меняется, благодаря постоянному магниту (14), установленному вне камеры.

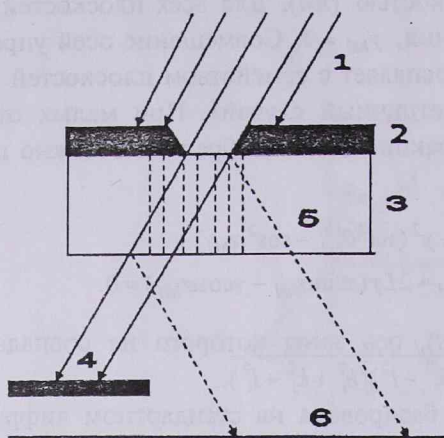


Рис.3а. Схема "диафрагма-кристалл".

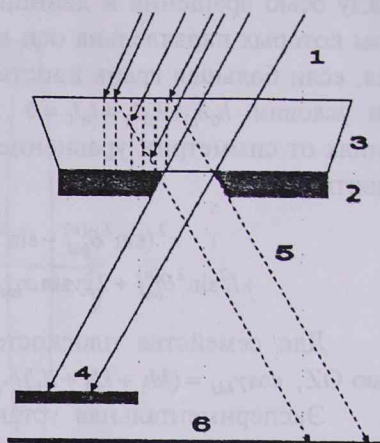


Рис.3б. Схема "кристалл-диафрагма".

На рис.3 приведена схема, в которой кристалл установлен после диафрагмы (схема диафрагма-кристалл). При такой схеме уширения дифракционных линий неизбежны (см. рис.3а). Уширения линий будут незначительными при схеме кристалл-диафрагма (рис.3б). Расходящийся пучок падает на большую область кристалла. Проходящий пучок будет расходящимся и задерживается заслонкой. Дифрагированные пучки, проходящие через диафрагму – малорасходящиеся, поэтому ширина этих пучков ограничивается только диаметром диафрагмы. При диаметрах диафрагмы 40-50 мкм дублет $\text{MoK}_{\alpha 1}$, $\text{MoK}_{\alpha 2}$ хорошо разрешается на отражениях кремния (400), (422), (440) и выше.

3. Экспериментальные результаты и обсуждение

На рис.4-6 приведены дифракционные изображения кристалла кремния при различных ориентациях внешних граней образца. На рис.4а – ориентация [111], то есть направление [111] совмещено с осью вращения камеры. Для этого грань (обычно большая), которой образец упирается в диафрагму, "совмещена" с плоскостью (111). На рис.5а и 6а – ориентации [110] и [100]. На рис.4б-6б приведены компьютерные версии дифракционных изображений при ориентациях образца [111], [110], [100]. Сравнительно ин-

тенсивные линии – гиперболы, сформированные излучениями $\text{MoK}_{\alpha 1}$ и $\text{MoK}_{\alpha 2}$, которые хорошо разрешаются при сравнительно больших индексах отражений. Менее интенсивные линии (параллельные первым) – гиперболы, сформированные излучением MoK_{β} . Как видно из рис.4-6, на фотопластинке выявляются почти все разрешенные отражения в дифракционном поле, не ограниченном геометрическими особенностями камеры. Белый круг в центре изображения – тень валика (15) на фоне рассеянного излучения. Центр круга является центром изображения (на фотопластинке – начало координат). Действительные оси всех пар ветвей гипербол проходят через начало координат. Смещение мнимых осей может быть обусловлено асимметрией опорной грани кристалла. Асимметрию опорных граней можно определить при помощи двух пар ветвей гиперболы, соответствующих двум взаимно перпендикулярным плоскостям (hkl) и $(h'k'l')$, принадлежащим одной зоне. Для этого необходимо координатные оси OX и OY на фотопластинке совместить с действительными осями соответствующих гипербол. При таком выборе координат уравнение (4) примет вид

$$x^2 \sin^2 \theta_{hkl} - y^2 \cos^2 \theta_{hkl} + L^2 \sin^2 \theta_{hkl} - 2L\gamma_{hkl}y = 0, \quad (4a)$$

$$y^2 \sin^2 \theta_{hkl} - x^2 \cos^2 \theta_{hkl} + L^2 \sin^2 \theta_{hkl} - 2L\gamma_{h'k'l'}x = 0. \quad (4b)$$

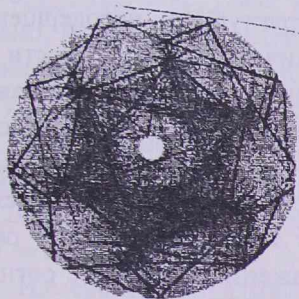


Рис.4а. Дифракционное изображение кристалла кремния при ориентации $[111]$.

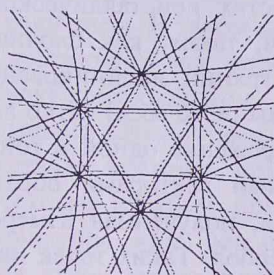


Рис.4б. Моделированное дифракционное изображение той же ориентации.

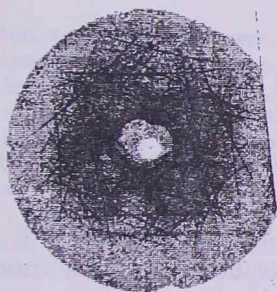


Рис.5а. Дифракционное изображение кристалла кремния при ориентации $[110]$.

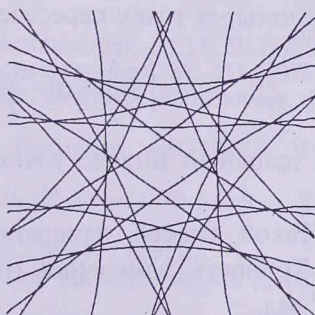


Рис.5б. Моделированное дифракционное изображение той же ориентации.

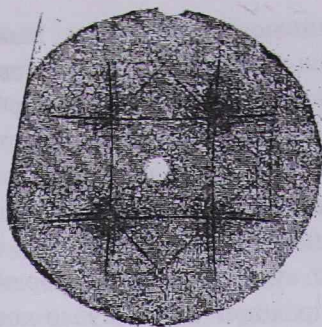


Рис.6а. Дифракционное изображение кристалла кремния при ориентации [100].

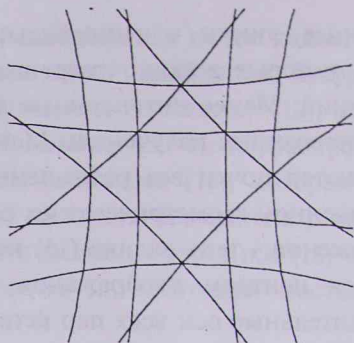


Рис.6б. Моделированное дифракционное изображение той же ориентации.

Измеряя координаты вершин ветвей и используя уравнение (4а) при $x = 0$ и (4б) – при $y = 0$, можно определить углы γ_{hkl} и $\gamma_{h'k'l'}$. Асимметричность опорной грани, то есть угол между нормалью и осью z определяется соотношением

$$\sin^2 \gamma = \sqrt{\sin^2 \gamma_{hkl} + \sin^2 \gamma_{h'k'l'}}. \quad (5)$$

Дифракционное изображение содержит обширную информацию об особенностях кристаллической структуры и структурных несовершенствах кристалла, таких, как блочная структура, мозаичность, особенности межблочных границ, двойникование и т.д. При сравнительно больших диаметрах диафрагмы (≈ 500 мкм) четко выявляются и дислокации, причем дифракционное изображение одной и той же дислокации формируется на отражениях с различными векторами обратной решетки. Весьма ценной является информация, полученная измерениями координат точек пересечения различных гипербол. Таких точек на некоторых изображениях – больше сотни (например, рис.4а). Координаты точек пересечения определяются совместным решением уравнения (3) для двух гипербол с одинаковыми или различными θ_{hkl} и γ_{hkl} и различными α_{hkl} .

Наиболее простой случай – $\theta_{hkl} = \theta_{h_0k_0l_0}$, $\gamma_{hkl} = \gamma_{h_0k_0l_0} = 0$, $\alpha_{h_0k_0l_0} = 0$. Для координат четырех точек пересечения получим

$$\left(\frac{x}{y} \right)_i = \operatorname{ctg} \frac{\alpha_{hkl}}{2} \quad \text{или} \quad \left(\frac{x}{y} \right)_i = -\operatorname{tg} \frac{\alpha_{hkl}}{2},$$

где i – условный индекс точек пересечения, который принимает значения 1,2,3,4.

Такой способ измерения углов между двумя плоскостями весьма прост. Точность измерения (при использовании более тонких линий K_β) $\approx 3 \cdot 10^{-4}$ рад.

При $\theta_{hkl} \neq \theta_{h_0k_0l_0}$, $\gamma_{hkl} = \gamma_{h_0k_0l_0} = 0$, $\alpha_{h_0k_0l_0} = 0$. Уравнение (3) для отражений $(h_0k_0l_0)$ и (hkl) принимает вид

$$x^2 \sin^2 \theta_{h_0 k_0 l_0} + y^2 (\sin^2 \theta_{h_0 k_0 l_0} - 1) + L^2 \sin^2 \theta_{h_0 k_0 l_0} = 0, \\ x^2 (\sin^2 \theta_{hkl} - \sin^2 \alpha_{hkl}) + y^2 (\sin^2 \theta_{hkl} - \cos^2 \alpha_{hkl}) + L^2 \sin^2 \theta_{hkl} + 2xy \sin \alpha_{hkl} \cdot \cos \alpha_{hkl} = 0.$$

Для точек пересечения ветвей гипербол получим

$$\left(\frac{x}{y} \right)_i = -\operatorname{ctg} \alpha_{hkl} \pm \frac{\sin \theta_{hkl}}{\sin \theta_{h_0 k_0 l_0}} \frac{1}{\sin \alpha_{hkl}}. \quad (6)$$

Измерения координат точек пересечений производятся компаратором, погрешность измерений которого меньше 1 мкм. Погрешность измерения углов $\Delta \alpha \approx 2 \cdot 10^{-4} - 3 \cdot 10^{-4}$ рад. Для уменьшения погрешности удобно измерять координаты четырех точек пересечения ветвей двух гипербол. Для недеформированного кристалла $\alpha_{hkl} = \alpha_{h_0 k_0 l_0}$ определяются соотношением

$$\cos \alpha_{h_0 k_0 l_0} = (h_0 h + k_0 k + l_0 l) / \sqrt{(h_0^2 + k_0^2 + l_0^2)(h^2 + k^2 + l^2)}.$$

Для деформированного кристалла $\alpha_{hkl} = \alpha_{h_0 k_0 l_0} + \delta \alpha_{hkl}$.

Особенность метода заключается в том, что поскольку во многих точках пересекаются несколько гипербол, соответствующих разным отражениям ($h_i k_i l_i$), то по координатам таких точек можно определить углы между всеми плоскостями одним измерением координат. В общем случае, когда $\theta_{h_i k_i l_i} \neq \theta_{h_0 k_0 l_0}$, $\gamma_{h_i k_i l_i} \neq \gamma_{h_0 k_0 l_0} \neq 0$ и аналитическое решение уравнений (3) затруднительно, можно пользоваться компьютерным решением. В таком случае измерения координат трех точек пересечения достаточно для определения $\gamma_{h_0 k_0 l_0}$, γ_{hkl} , α_{hkl} , а координаты четвертой точки будут контрольными.

Проводились измерения углов между атомными плоскостями семейства $\{110\}$ пластически деформированного кристалла кремния ориентации $[111]$. Деформация осуществлялась четырехточечным изгибом при температуре $\approx 650^\circ \text{C}$ в течение 2-х часов. Радиус кривизны $\approx 1 \text{ м}$, ось цилиндра $[1\bar{1}0]$. Измерения показывают, что отклонения углов между плоскостями $\{110\}$ заметны (превышают погрешность измерения углов). Соответствующие расчеты и трактовка будут нами проведены в дальнейших работах.

ЛИТЕРАТУРА

1. В.В.Аристов, В.Ш.Шехтман, И.М.Шмытько. Кристаллография, 21, 50 (1976).
2. В.В.Аристов, И.М.Шмытько, Е.В.Шулаков. Кристаллография, 21, 351 (1976).
3. В.В.Аристов, В.Ф.Кулешов, В.Ш.Шехтман, И.М.Шмытько, Е.Б.Якимов. Поверхность. Физика, химия, механика, 4, 134 (1985).
4. Л.А.Матвеева, В.Ш.Шехтман, И.М.Шмытько. Препринт. АН СССР, Институт физики твердого тела, 1985.
5. J.Bauch, J.Brechbuhl, H.-J.Ullrich, G.Meinl, H.Lin, W.Kebede. Cryst. Res. Technol., 34, 71 (1999).
6. J.Bauch, H.-J.Ullrich, D.Reiche. Cryst. Res. Technol., 35, 473 (2000).
7. J.Bauch, H.-J.Ullrich, M.Bohling, D.Reiche. Cryst. Res. Technol., 38, 440 (2003).
8. A.R.Lang. Appl. Phys., 28, A1 (1995).
9. E.Langer, S.Dabritz, A.Roder, W.Hauffe. Fresenius J. Anal. Chem., 365, 212 (1999).
10. D.R.Lee, Y.S.Chu, Y.Choi, J.C.Lang, G.Srajer, S.K.Sinha, V.Metlushko, B.Flic. Appl. Phys. Lett., 82, 982 (2003).

ՌԵՆՏԳԵՆՅԱՆ ՃԱՌԱԳԱՅԹՄԱՆ ԼԱՅՆ ՏԱՐԱՄԻՏՎԱԾ ՓՆՋԻ ԴԻՖՐԱԿՑԻԱ ԻՐԱԿԱՆԱՑՆԵԼՈՒ ՆՈՐ ԵՂԱՆԱԿ

Կ.Թ. ԱՎԵՏՅԱՆ, Մ.Մ. ԱՌԱՔԵԼՅԱՆ, Պ.Ա. ԳՐԻԳՈՐՅԱՆ,
Դ.Գ. ՄԱՅԻԼՅԱՆ, Հ.Ս. ՍԵՄԵՐՋՅԱՆ, Ա.Ա. ԹԱԴԵՎՈՍՅԱՆ

Մշակված է ռենտգենյան ճառագայթման լայն տարամիտված փնջի դիֆրակցիա իրականացնելու եղանակ, որում օգտագործվում է գծային կիզակետային բիծ ունեցող ստանդարտ ռենտգենյան խողովակ: Տարամիտված ռենտգենյան ճառագայթումն անցնելով ≈ 50 մկմ տրամագծով դիաֆրագմայով՝ դիֆրակցիայի է ենթարկվում դիաֆրագմային ընդհուպ մոտեցված բյուրեղում: Բյուրեղը լուսանկարչական քիթեղի հետ միաթին պտտվում է քիթեղին ուղղահայաց առանցքի շուրջ: Դիֆրակցիոն պատկերն իրենից ներկայացնում է հիպերբոլների հանրույթ: Ստացված են հիպերբոլների հավասարումները, և կառուցված են մոդելավորված դիֆրակցիոն պատկերները:

A NEW METHOD OF REALIZATION OF DIFFRACTION OF WIDELY DIVERGENT BEAM OF X-RAY RADIATION

K.T. AVETYAN, M.M. ARAKELYAN, P.A. GRIGORYAN,
D.G. MAYILYAN, O.S. SEMERJYAN, A.A. TADEVOSYAN

A new method of realization of diffraction of widely divergent beams of X-Ray radiation in a crystal is developed, using a standard tube with a linear focus spot. An X-ray divergent beam, passing through a diaphragm of ~ 50 μm diameter, diffracts on a crystal placed adjacent to the diaphragm. The diffraction image presents a group of hyperbolas. Hyperbola equations are obtained analytically, and by means of computer modeling the diffraction images are constructed for various orientations of the crystal.