Известия НАН Армении, Физика, т.45, №4, с.290-297 (2010)

УДК 548.7

ИНТЕРФЕРЕНЦИОННЫЙ КОЭФФИЦИЕНТ ПОГЛОЩЕНИЯ РЕНТГЕНОВСКИХ ЛУЧЕЙ В КРИСТАЛЛАХ ПРИ НАЛИЧИИ ТЕМПЕРАТУРНОГО ГРАДИЕНТА

В.Р. КОЧАРЯН, Р.Ш. АЛЕКСАНЯН, К.Г. ТРУНИ

Институт прикладных проблем физики НАН Армении, Ереван

(Поступила в редакцию 25 марта 2010 г.)

Экспериментально и теоретически исследовано поведение интерференционного коэффициента поглощения рентгеновского излучения для монокристалла кварца в геометрии Лауэ при наличии температурного градиента. Регистрировалось суммарная интенсивность проходящего и дифрагированного рентгеновского излучения от разных семейств отражающих атомных плоскостей монокристалла кварца. Показано, что с увеличением температурного градиента резко уменьшается коэффициент поглощения рентгеновского излучения, достигая своего минимального значения при определенном значении температурного градиента.

1. Введение

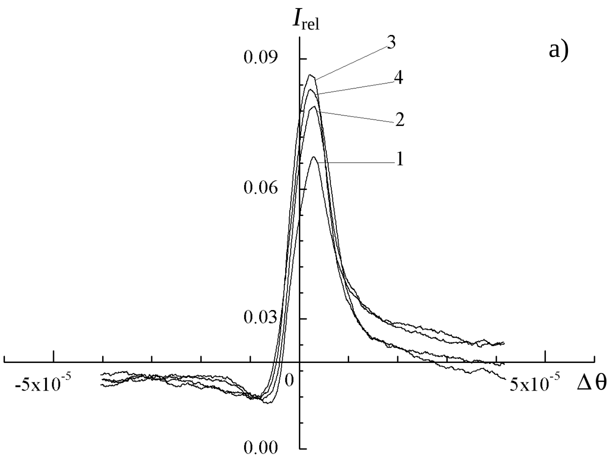
Исследование взаимодействия излучений ангстремных длин волн с искаженными монокристаллами имеет большое значение для современной физики твердого тела и научного приборостроения. Открытие явления полной переброски рентгеновского излучения от направления прохождения в направление отражения в геометрии Лауэ [1] при $\mu t \geq 1$ (где t – толщина кристалла, μ – линейный коэффициент поглощения) явилось весомым вкладом в развитие этой области. В работах [2,3] экспериментально исследовано поведение коэффициента линейного погощения рентгеновских лучей в монокристаллах по геометрии Лауэ и показано, что наличие температурного градиента [2] и ультразвуковых колебаний [3] приводит к существенному уменьшению поглощения рентгеновских лучей (при ультразвуковых колебаниях – до зануления).

В настоящей работе проведены экспериментальные и теоретические исследования данного процесса при наличии температурного градиента.

2. Эксперимент

Экспериментальные исследования проводились по схемам с двумя и тремя кристаллами. В качестве источника излучения использовалась характеристическая линия MoK_α рентгеновской трубки Mo БСВ-27. Эксперименты проводились для разных отражающих атомных плоскостей монокристаллов кварца разной толщины при наличии температурного градиента. Для исследования отмеченного явления кристалл качался в области угла Брэгга и с помощью сцинтилляционного счетчика одновременно регистрировалась суммарная интенсивность проходящего и дифрагированного рентгеновского излучения.

На рис.1 приведена зависимость суммарной интенсивности рентгеновского излучения от отклонения от точного угла Брэгга при разных значениях температурного градиента, приложенного к кристаллу.



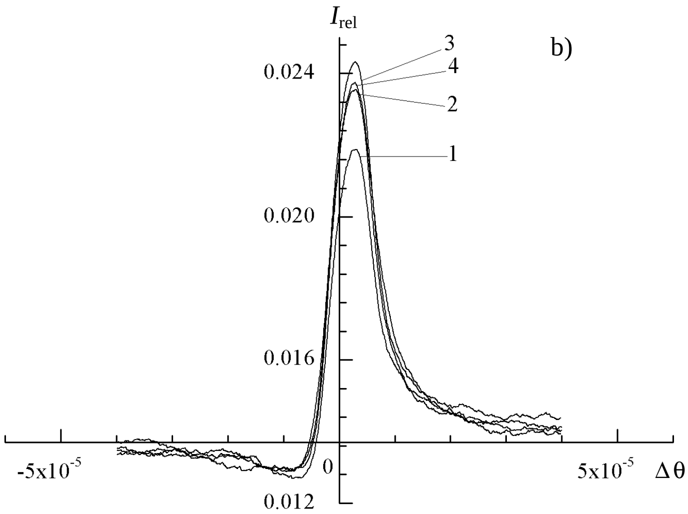


Рис.1. Зависимости относительной суммарной интенсивности рентгеновского излучения от отклонения от точного угла Брэгга, при разных значениях температурного градиента (1 – $dT/dx = 0$, 2 – $dT/dx = 35$ град/см, 3 – $dT/dx = 75$ град/см, 4 – $dT/dx = 135$ град/см) и разных толщинах кристалла: а) $t = 4.28$ мм, б) $t = 3.5$ мм.

Из рисунка видно, что с увеличением температурного градиента, приложенного перпендикулярно к отражающим атомным плоскостям кристалла, интерференционный коэффициент поглощения рентгеновского излучения уменьшается во всей области дифракции и достигает своего минимального значения при определенном значении температурного градиента.

3. Обсуждение результатов

Распространение рентгеновских волновых полей в кристалле вблизи условия Брэгга описывается уравнениями Такаги. В этих уравнениях, вместо бесконечного набора блоховских волн, волновое поле представляется в виде двух пространственно неоднородных волновых пакетов с квазиамплитудами $D_0(\mathbf{r})$ и $D_h(\mathbf{r})$: $D(\mathbf{r}) = D_0(\mathbf{r})e^{-2\pi i\mathbf{K_0 r}} + D_h(\mathbf{r})e^{-2\pi i\mathbf{K_h r}}$, где $D_0(\mathbf{r})$ и $D_h(\mathbf{r})$ – медленно изменяющиеся функции координат (по сравнению с экспоненциальными функциями), а волновые векторы $\mathbf{K}_0$ и $\mathbf{K}_h$ связаны условием Брэгга $\mathbf{K}_h = \mathbf{K}_0 + \mathbf{h}$, где $\mathbf{h}$ – вектор обратной решетки для данной серии атомных плоскостей (*hkl*). В свою очередь, квазиамплитуды $D_0(\mathbf{r})$ и $D_h(\mathbf{r})$ представляются обычно в виде суммы квазиамплитуд двух волновых мод, которым соответствуют слабо и сильно поглощаемые волновые поля в неискаженном кристалле.

При этом в деформированном кристалле из-за искажений пространственной решетки плотность электронного заряда $\rho(\mathbf{r})$ и определяемая им поляризуемость $\chi(\mathbf{r})$ перестают быть периодическими функциями координат с периодом решетки. Но при допущении малости дисторсии $\partial u_i / \partial x_j$ (i, j = 1, 2, 3) можно считать, что электронная плотность заряда и, следовательно, поляризуемость остаются неизменными по модулю и просто перемещаются в решетке на вектор смещения $u(\mathbf{r})$. Это равносильно замене всех Фурье-компонент поляризуемости χ_h на $\chi_h e^{-2\pi i\mathbf{hu}}$, где χ_h – Фурье-компоненты поляризуемости неискаженного кристалла. Параметр $\alpha(\mathbf{r}) = 2\pi\partial\mathbf{hu}/\partial S_h$ определяет локальное смещение от точного условия Брэгга, обусловленное смещением рассеивающих центров из положения равновесия, а $\partial\alpha/\partial S_0 = 2\pi\partial^2\mathbf{hu}/\partial S_0\partial S_h$ определяет скорость изменения этого смещения в пространстве. Здесь S_0 и S_h – косоугольная система координат с осями, параллельными волновым векторам $\mathbf{K}_0$ и $\mathbf{K}_h$.

Отметим также, что фотопоглощение и другие явления, описывающие потери энергии первичной волны (например, эффект Комптона и др.) учитываются тем, что Фурье-компоненты поляризуемости $\chi(\mathbf{r})$ кристалла, а именно, χ_0, χ_h и $\chi_{\mathbf{h}}$ рассматриваются как комплексные величины: $\chi_0 = \chi_0 + i\chi_{0i}$, $\chi_h = \chi_{hr} + i\chi_{hi}$, $\chi_{\mathbf{h}} = \chi_{\mathbf{h}r} + i\chi_{\mathbf{h}i}$.

Основным параметром, определяющим дифракцию вблизи условия Брэгга, является произведение $\chi_h\chi_{\mathbf{h}} = \phi_{hr} + i\phi_{hi}$, где $\phi_{hr} = \chi_{hr}\chi_{\mathbf{h}r} - \chi_{hi}\chi_{\mathbf{h}i} \approx |\chi_{hr}|^2$, $\phi_{hi} = 2|\chi_{hr}||\chi_{hi}|$, $(|\chi_{hi}| << |\chi_{hr}|)$ – реальные величины. Заметим также, что реальная часть $\mathrm{Re}\{\chi_h\chi_{\mathbf{h}}\} = \phi_{hi}$ описывает когерентные явления взаимодействия излучения с решеткой, а мнимая часть $\mathrm{Im}\{\chi_h\chi_{\mathbf{h}}\} = \phi_{hi}$ – некогерентные процессы, в частности, фотопоглощение.

Для объяснения экспериментальных результатов были решены уравнений Такаги, описывающие распространение волнового поля в деформированом кристалле. В плоскости рассеяния XOZ, исходя из экспериментальных результатов [4], на определенном расстоянии от нагреваемой грани кристалла функцию смещения U_x можно представить в виде

$$U_x = \left(t^2 - (t-2z)^2\right) \big/ 8R\,, \tag{1}$$

где t – толщина кристалла, R – радиус кривизны отражающих атомных плоскостей.

Пусть в симметричной геометрии Лауэ на кристалл падает плоская монохроматическая рентгеновская волна. В этом случае, с учетом (1), в двухволновом приближении уравнения Такаги принимают следующий вид:

$$\begin{cases} \dfrac{\partial D_h}{\partial z} - i\dfrac{C\chi_h K}{2\cos\theta} e^{-i\vec{h}\vec{u}} D_0 - i\dfrac{(\chi_0 - b)K}{2\cos\theta} D_h = 0 \\ \dfrac{\partial D_0}{\partial z} - i\dfrac{\chi_0 K}{2\cos\theta} D_0 - i\dfrac{C\chi_{\bar{h}} K}{2\cos\theta} e^{i\vec{h}\vec{u}} D_h = 0 \end{cases} \tag{2}$$

где параметр b $\left(b = -2\sin\theta\Delta\theta\right)$ характеризует отклонение от точного брэгговского угла, θ – угол падения, а C – поляризационный множитель. Использована декартовая система координат (x, z), связанная с системой (S_0, S_h) соотношениями: $z = (S_0 + S_h)\cos\theta$, $x = (S_0 + S_h)\sin\theta$.

Граничные условия для амплитуд D_0 и D_h на входной поверхности кристалла $z = 0$ принимают вид $D_0 = D_{\text{ins}}$ и $D_h = 0$. Введя обозначения

$$\begin{gathered} \eta = \frac{bK}{4\cos\theta},\ \alpha = \frac{1}{2}\frac{\partial \mathbf{hu}}{\partial z},\ C_h = \frac{C\chi_h K}{2\cos\theta},\ C_{\bar{h}} = \frac{C\chi_{\bar{h}} K}{2\cos\theta}, \\ D_h = \tilde{D}_h e^{i\left(\frac{\chi_0 K}{2\cos\theta} z - \frac{bK}{2\cos\theta} z - \frac{\mathbf{hu}}{2}\right)},\ D_0 = \tilde{D}_0 e^{i\left(\frac{\chi_0 K}{2\cos\theta} z - \frac{bK}{2\cos\theta} z + \frac{\mathbf{hu}}{2}\right)}, \end{gathered} \tag{3}$$

получим

$$\begin{cases} \dfrac{\partial \tilde{D}_h}{\partial z} + i(\eta - \alpha)\tilde{D}_h - iC_h \tilde{D}_0 = 0, \\ \dfrac{\partial \tilde{D}_0}{\partial z} - i(\eta - \alpha)\tilde{D}_0 - iC_{\bar{h}} \tilde{D}_h = 0. \end{cases} \tag{4}$$

Из уравнений (4) для $\tilde{D}_h$ имеем

$$\partial^2 \tilde{D}_h \big/ \partial z^2 + W^2(z)\tilde{D}_h = 0\,, \tag{5}$$

где $W^2(z) = C_h C_{\bar{h}} + (\eta - \alpha)^2 - i\,\partial\alpha/\partial z$, с граничными условиями

$$D_h = 0\,; \quad \frac{dD_h}{dz} = iC_h D_{\text{ins}}. \tag{6}$$

При слабых деформациях $\sqrt{W(z)}\left(1\big/\sqrt{W(z)}\right)'' << W^2(z)$ уравнение (5) можно записать в виде

$$\partial^2 \tilde{D}_h \big/ \partial z^2 + \left(W^2(z) - \sqrt{W(z)}\left(1\big/\sqrt{W(z)}\right)''\right)\tilde{D}_h = 0, \tag{7}$$

решение которого будем искать в следующем виде:

$$\tilde{D}_h = \frac{1}{\sqrt{W(z)}}\left(\tilde{A} e^{i\int_0^z W(\tau)d\tau} + \tilde{B} e^{-i\int_0^z W(\tau)d\tau} \right), \tag{8}$$

где $\tilde{A}$ и $\tilde{B}$ – постоянные, которые определяются из граничных условий.

Исходя из граничных условий (6) и обозначений (3), окончательно для D_0 и D_h получим

$$D_h(z) = \frac{C_h D_{\text{ins}}}{2\sqrt{W(0)W(z)}}\left(\exp\left(\frac{2A - C_i}{C_r} f(z) - \frac{K\chi_{0i}}{2\cos\theta} z \right) \exp\left(i[\varphi(z) + \psi_1(z) + f(z)]\right) - \right.$$
$$\left. -\exp\left(\frac{C_i - 2A}{C_r} f(z) - \frac{K\chi_{0i}}{2\cos\theta} z \right) \exp\left(-i[\varphi(z) + \psi_2(z) + f(z)]\right) \right), \tag{9}$$

$$D_0 = \frac{D_{\text{ins}}}{2\sqrt{W(0)W(Z)}}\left(\left(i\left(W(z) - \eta - \frac{\partial\alpha}{\partial z} \right) - \frac{1}{2W(z)}\frac{\partial W(z)}{\partial z} \right) \exp\left(\frac{2A - C_i}{C_r} f(z) - \frac{K\chi_{0i}}{2\cos\theta} z \right) \right) \times$$
$$\times \exp\left(i\left[\varphi(z) + \psi_1(z) + f(z)\right]\right) + \left(i\left[W(z) + \eta + \frac{\partial\alpha}{\partial z} \right] + \frac{1}{2W(Z)}\frac{\partial W(z)}{\partial z} \right) \times \tag{10}$$
$$\times \exp\left(\frac{C_i - 2A}{C_r} f(z) - \frac{K\chi_{0i}}{2\cos\theta} z \right) \exp\left(-i\left[\varphi(z) + \psi_2(z) + f(z)\right]\right) \Bigg),$$

где

$$f(z) = \frac{2Az + \eta - At + \sqrt{(2Az + \eta - At)^2 + C_r}}{\eta - At + \sqrt{(\eta - At)^2 + C_r}},$$
$$\varphi(z) = \frac{(2Az + \eta - At)\sqrt{(2Az + \eta - At)^2 + C_r} - (\eta - At)\sqrt{(\eta - At)^2 + C_r}}{4A}, \tag{11}$$
$$\psi_{1,2}(z) = \pm\left(\frac{K\,\mathrm{Re}\chi_0}{2\cos\theta} + 2\eta \right) z \pm A\left(zt - z^2\right),$$
$$C_r = \mathrm{Re}(C_h C_{\bar{h}}),\ C_i = \mathrm{Im}(C_h C_{\bar{h}}),\ A = \frac{h}{2R}.$$

Из (9) и (10) видно, что даже в отсутствии потерь энергии ($C_i = 0$) возникает некое затухание (или возрастание) амплитуды, обусловленное мнимым членом $i\,\partial\alpha/\partial z = iq = \text{const}$. Мнимая часть $\mathrm{Im}\{C_h C_{\bar{h}}\} = C_i$ обуславливает слабое и сильное интерференционное поглощение двух волновых мод кристаллического волнового поля. В частности, при точном выполнении условии Брэгга, коэффициенты поглощения этих мод для неискаженного кристалла определяются как

$$\sigma_{1,2} = \left(\mu/\cos\theta_B\right)\left(1 \pm c\left|\chi_{hi}/\chi_{0i}\right|\right). \tag{12}$$

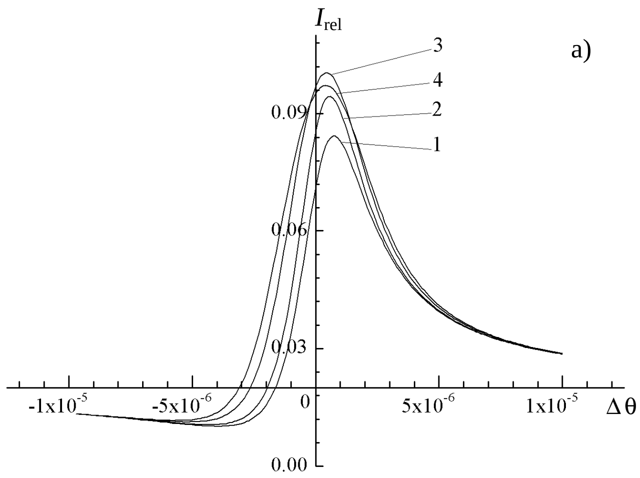
С учетом дополнительного мнимого члена, согласно (9) и (10), в случае деформированного кристалла, эти коэффициенты определяются как

$$\sigma_{1,2} = (1/\cos\theta_B)\left[\mu\left(1 \pm c|\chi_{hi}/\chi_{0i}|\right) \pm q/2\pi kc|\chi_{hr}|\right], \qquad (13)$$

где $q = (1/2)\partial^2 \mathbf{hu}/\partial z^2$ и обратно пропорционально локальной кривизне атомных плоскостей.

Очевидно, что дополнительный член в (5), обусловленный искривлением отражающих поверхностей, не описывает необратимые потери энергии из-за фотопоглощения и других явлений некогерентного рассеяния, сопровождающих взаимодействие излучения с атомами решетки, так как он не зависит от коэффициента линейного поглощения (μ). В отличие от них этот член описывает дифракционное перераспределение энергии между модами кристаллического волнового поля. В зависимости от знака q, т.е. от знака кривизны отражающих плоскостей, происходит "перекачка" энергии от сильно поглощающихся мод к модам со слабым поглощением или наоборот. Так что в случае искаженной таким образом решетки теряет смысл разделение на "сильно" и "слабо" поглощаемые моды. С другой стороны, вклад третьего члена в правой части (5) может быть значительным в зависимости от $|q|$, т.е. от степени "искривленности" отражающих плоскостей. При слабых деформациях $q/2\pi kc|\chi_{hr}| << \mu$ в формировании волнового поля значительна роль неупругого взаимодействия излучения с решеткой, а при "средних" деформациях $q/2\pi kc|\chi_{hr}| \cong \mu$ превалирует роль дифракционного перераспределения энергии между модами. При сильных деформациях $q/2\pi kc|\chi_{hr}| >> \mu$ взаимодействие излучения с решеткой перестает быть "динамическим" и каждая малая область кристалла рассеивает излучение независимо от других областей (кинематическое рассеяние). Роль многократных отражений волнового поля становится ничтожным, а само излучение пронизывает кристалл с линейным поглощением. Все вышесказанное подтверждается экспериментальными данными, согласно которым пропускная способность кристалла сначала незначительно падает, потом с увеличением скорости деформации нарастает, достигает максимума и быстро спадает при дальнейшем увеличении поля деформации.

Анализ выражений (9) и (10) показывает, что с углублением в кристалл наличие кривизны приводит к увеличению амплитуды дифрагированного слабопоглощаемого поля (первое слагаемое в (9)) за счет одновременного уменьшения амплитуды дифрагированного сильнопоглощаемого поля (второе слагаемое в (9)) и амплитуды проходящего поля (10), где оба слагаемых уменьшаются. С увеличением кривизны отражающих атомных плоскостей возрастает энергия, перебрасываемая в дифрагированное слабопоглощающее поле, а при определенном значении кривизны вся энергия перебрасывается в это поле, т.е. остальные поля зануляются. Вследствие этого значительно уменьшается коэффициент поглощения кристалла. Последующее увеличение кривизны приводит к уменьшению энергии, перебрасываемой в дифрагированное слабопоглощающее поле (коэффициент поглощения снова уменьшается).



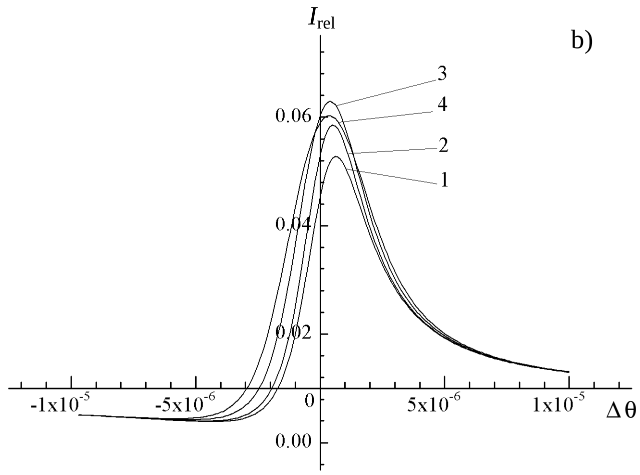


Рис.2. Относительные суммарные интенсивности в зависимости от расстройки от точного брэгговского угла, при разных кривизнах отражающих атомных плоскостей $(10\bar{1}1)$ монокристалла кварца: а) при толщине t = 3.5 мм: 1) A = 0, 2) A = 300, 3) A = 900, 4) A = 1230; б) при толщине t = 4.28 мм: 1) A = 0, 2) A = 200, 3) A = 600, 4) A = 950.

Для пояснения вышеуказанных процессов поглощения были проанализированы суммарные интенсивности проходящих и дифрагированных пучков. На рис.2 представлены суммарные интенсивности в зависимости от расстройки от точного брэгговского угла, в области столика Дарвина, при разных кривизнах отражающих атомных плоскостей. Видно, что с уменьшением радиуса кривизны коэффициент поглощения существенно уменьшается во всей области столика Дарвина.

Теоретические расчеты были проведены для монокристалла кварца для нескольких семейств отражающих атомных плоскостей, однако вышеуказанный эффект наиболее ярко наблюдался для отражающих плоскостей $(10\bar{1}1)$.

4. Заключение

Таким образом, показано, что с увеличением температурного градиента, примененного перпендикулярно к отражающим атомным плоскостям монокристалла кварца, интерференционный коэффициент поглощения рентгеновского излучения резко уменьшается во всей области дифракции и достигает своего минимального значения при определенном значении температурного градиента.

ЛИТЕРАТУРА

1. **А.Р.Мкртчян, М.А.Навасардян, В.К.Мирзоян.** Письма в ЖТФ, **8**, 677 (1982).
2. **В.К.Мирзоян, С.Н.Нореян.** Тезисы докладов V Всесоюзного совещания по когерентному взаимодействию излучения с веществом, Симферополь, 2–8 октября 1990, с.142.
3. **В.К.Мирзоян, А.Р.Мкртчян, А.Г.Мкртчян, С.Н.Нореян, В.В.Вагнер, Г.Праде, В.Матц, Н.Шелл.** Тезисы докладов V Национальной конференции по применению рентгеновского, синхротронного излучения, нейтронов и электронов для исследования наноматериалов и наносистем, Москва, 14–19 ноября 2005, с.286.
4. **С.Н.Нореян, В.К.Мирзоян, В.Р.Кочарян.** Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования, № 1, 18 (2004).

ԲՅՈՒՐԵՂՆԵՐՈՒՄ ՌԵՆՏԳԵՆՅԱՆ ՃԱՌԱԳԱՅԹՆԵՐԻ ԻՆՏԵՐՖԵՐԵՆՑԻՈՆ ԿԼԱՆՄԱՆ ԳՈՐԾԱԿԻՑԸ ՋԵՐՄԱՅԻՆ ԳՐԱԴԻԵՆՏԻ ԱՌԿԱՅՈՒԹՅԱՆ ՊԱՅՄԱՆՆԵՐՈՒՄ

Վ.Ռ. ՔՈՉԱՐՅԱՆ, Ռ.Շ. ԱԼԵՔՍԱՆՅԱՆ, Կ.Գ. ԹՐՈՒՆԻ

Փորձնականորեն և տեսականորեն հետազոտված է կվարցի միաբյուրեղներում ռենտգենյան ճառագայթման ինտերֆերենցիոն կլանման գործակցի վարքը Լաուէի երկրաչափությամբ ջերմային գրադիենտի առկայության պայմաններում: Գրանցվել են անցած և անդրադարձած ռենտգենյան ճառագայթման գումարային ինտեսիվությունները կվարցի միաբյուրեղի տարբեր անդրադարձնող ատոմական հարթությունների ընտանիքներից: Ցույց է տրված, որ անդրադարձնող ատոմական հարթությունների ընտանիքին ուղղահայաց կիրառված ջերմային գրադիենտի արժեքի մեծացմանը զուգընթաց կտրուկ նվազում է ռենտգենյան ճառագայթման կլանման գործակիցը՝ հասնելով իր ամենափոքր արժեքին ջերմային գրադիենտի որոշակի արժեքի դեպքում:

INTERFERENCE ABSORPTION COEFFICIENT OF X-RAYS IN CRYSTALS IN THE PRESENCE OF TEMPERATURE GRADIENT

V.R. KOCHARYAN, R.Sh. ALEKSANYAN, K.G. TRUNI

The interference coefficient of anomalous transmission of X-rays is investigated theoretically and experimentally for quartz single crystal under the influence of a temperature gradient in Laue geometry. The sum of transmitted and reflected beam intensities was registered for different families of atomic planes of quartz single crystal. It is shown that increasing of temperature gradient perpendicular to atomic planes results in a drastic reduction of the absorption coefficient of X-rays with a minimum at a certain value of the temperature gradient.