

УДК 548.732

ДИНАМИЧЕСКАЯ ДИФРАКЦИЯ РЕНТГЕНОВСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НА МОНОКРИСТАЛЛЕ ADP ПОД ВЛИЯНИЕМ ТЕМПЕРАТУРНОГО ГРАДИЕНТА

В.К. МИРЗОЯН, К.Г. ТРУНИ, П.А. ГРИГОРЯН,
К.М. ГЕВОРКЯН*, М. ГАННАД ДЕЗФУЛИ

Институт прикладных проблем физики НАН Армении, Ереван
*e-mail: konstantin@iapp.sci.am

(Поступила в редакцию 12 октября 2012 г.)

Исследована зависимость интегральной интенсивности дифрагированного рентгеновского излучения от монокристалла дигидрофосфата аммония (ADP) в геометрии Лауэ при наличии температурного градиента. Установлено, что интегральная интенсивность отраженного рентгеновского пучка от монокристалла почти линейно зависит от величины температурного градиента, приложенного перпендикулярно к отражающим атомным плоскостям, вплоть до насыщения. При малых величинах температурного градиента, в случае антипараллельности векторов дифракции и температурного градиента интегральная интенсивность отраженного рентгеновского излучения сначала уменьшается примерно на 10%, а затем монотонно увеличивается с повышением величины температурного градиента. На основе теоретического анализа дано объяснение наблюдаемых явлений.

1. Введение

Проблема влияния внешних воздействий на параметры отраженного рентгеновского излучения была поставлена в тридцатых годах двадцатого века в основополагающих работах [1,2]. В последующие годы в вышеуказанной области сделаны многочисленные и разнообразные работы, однако интерес к этой проблеме непрерывно возрастает.

В работе [3] впервые было получено явление полной переброски интенсивности рентгеновского излучения от направления прохождения в направлении отражения под воздействием температурного градиента или акустического возбуждения в геометрии Лауэ для тонких кристаллов ($\mu t \sim 1$, где μ – линейный коэффициент поглощения, t – толщина монокристалла). В работе [4] было обнаружено уменьшение коэффициента линейного поглощения кристалла кварца для плоской рентгеновской волны с энергией 17.47 кэВ под действием температурного градиента, приложенного перпендикулярно отражающим атомным плоскостям.

Изменение коэффициента линейного поглощения монокристалла квар-

ца, т.е. суммарная интенсивность проходящего и отраженного пучков, в геометрии Лауэ увеличивается примерно на 30%, что означает увеличение прозрачности монокристалла под влиянием внешнего воздействия или уменьшение коэффициента линейного поглощения.

В работе [5] под воздействием ультразвука авторы добились почти полной прозрачности монокристалла кварца, для синхротронного излучения с энергией 17 кэВ. В этой работе поглощенная интенсивность составляет порядка 3.5% от падающей интенсивности, тогда как без ультразвука поглощенная интенсивность составляет порядка 50%.

В работах [6,7] была поставлена и реализована задача модуляции интенсивности дифрагированного рентгеновского излучения в низкочастотном диапазоне с целью передачи сигналов звуковой частоты. Амплитудная модуляция в этих работах была осуществлена с помощью пьезокристалла кварца X-среза, который не позволял модулировать интенсивность дифрагированного излучения во всем диапазоне звуковых частот из-за высокой добротности монокристаллов кварца.

2. Экспериментальная методика и результаты

В настоящей работе описаны результаты явления перекачки интенсивности проходящего рентгеновского излучения от направления прохождения в направление отражения для разных атомных плоскостей монокристалла ADP в зависимости от толщины монокристалла и величины приложенного температурного градиента.

Эксперименты были выполнены на рентгеновском дифрактометре ДРОН-3М, использовались рентгеновские трубки БСВ-29 с анодами Ag или Mo, у которых размеры фокусного пятна составляют по горизонтали 0.4 мм, а по вертикали 8 мм. Схема эксперимента представлена на рис.1, где указаны размеры щелей и их расположение. Как видно из рисунка, эксперименты были выполнены с помощью заранее монохроматизированного и коллимированного пучка.

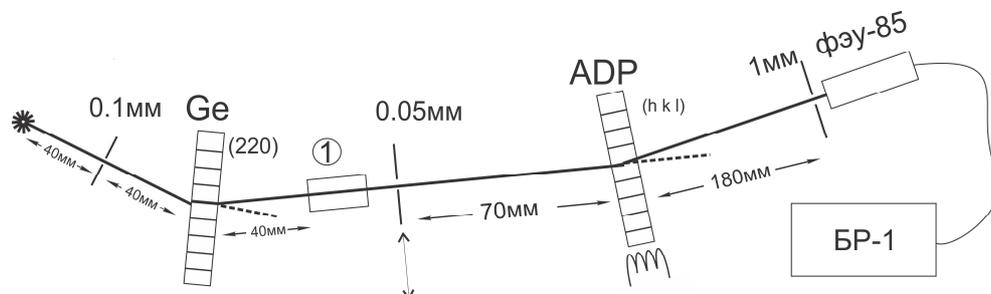


Рис.1. Схема эксперимента, 1 – щель Солера.

Монохроматизированный пучок рентгеновского излучения был получен аномальным прохождением от атомных плоскостей (220) совершенного моно-

кристалла Ge толщиной 0.6 мм с коэффициентом линейного поглощения для AgK_α и MoK_α линий 181 см^{-1} и 340 см^{-1} , соответственно.

Для реализации аномального прохождения от монохроматора рентген-дифрактометра нами была разработана, сконструирована и изготовлена специальная головка, которая размещалась в монохроматорном отсеке вместо брэгговского монохроматора. Монохроматический рентгеновский пучок имел угловую расходимость по горизонтали порядка $3''$, а вертикальная коллимация осуществлялась с помощью щелей Солера.

Монохроматизированное и коллимированное рентгеновское излучение проходило через специальную щель размером $\approx 0.05 \times 10 \text{ мм}^2$ (разработанную и изготовленную нами), расположенную на расстоянии 10 мм от выхода щели Солера, что дало возможность разделить (по геометрии Брэгга) монохроматизированные линии $\text{K}_{\alpha 1}$ и $\text{K}_{\alpha 2}$. Эта щель поворачивается вокруг горизонтальной оси по направлению распространения рентгеновского пучка и имеет возможность смещаться по горизонтали и вертикали в плоскости, перпендикулярной направлению рентгеновского пучка.

Толщина изучаемого тонкого монокристалла ADP была выбрана 1.3 и 2.5 мм с коэффициентами линейного поглощения 2.75 см^{-1} и 5.4 см^{-1} для AgK_α и MoK_α линий, соответственно.

Равномерность величины температурного градиента по вертикали в кристалле следует из равномерного распределения интенсивности по вертикали на фронтальном сечении отраженного пучка. Температура на поверхности монокристалла измерялась с помощью медь-константановой термодпары с точностью $\pm 0,5^\circ \text{C}$.

Направление температурного градиента было антипараллельно вектору дифракции, однако отметим, что поведение интегральной интенсивности отраженного пучка не зависит от направления температурного градиента при больших значениях $\frac{\Delta T}{\Delta X} \geq 5 \frac{\text{град.}}{\text{см}}$. Направление температурного градиента влияет на горизонтальный размер фронтального сечения отраженного пучка, как показано в работах [8,9].

При антипараллельности вектора дифракции и вектора температурного градиента происходит дифракционная фокусировка, а при параллельности указанных векторов имеет место дефокусировка отраженного пучка [8,9]. Интегральная интенсивность дифрагированного рентгеновского пучка измерялась с помощью сцинтилляционного счетчика с ФЭУ-85 и с блоком регистрации БР-1 стандартного производства, который укомплектован в составе рентгендифрактометра ДРОН-3М.

Как видно из результатов эксперимента, приведенных в статье, для линии AgK_α интегральная интенсивность отраженного пучка увеличивается многократно по отношению к интенсивности того же пучка в отсутствие температурного градиента.

Коэффициент усиления интенсивности, отраженной от атомных плоско-

стей монокристалла, для данного излучения определяется как отношение интенсивности отраженного пучка при наличии температурного градиента в точке начала насыщения интенсивности к той же интенсивности без температурного градиента [10]. Аналогичное поведение было получено также для излучения MoK_α .

Нами рассматривались отражения от атомных плоскостей кристалла (100), (101), (220). На рис.2 приведена зависимость интегральной интенсивности рентгеновского излучения AgK_α , отраженного от атомных плоскостей (100), (101), (220) монокристалла ADP, от величины приложенного температурного градиента.

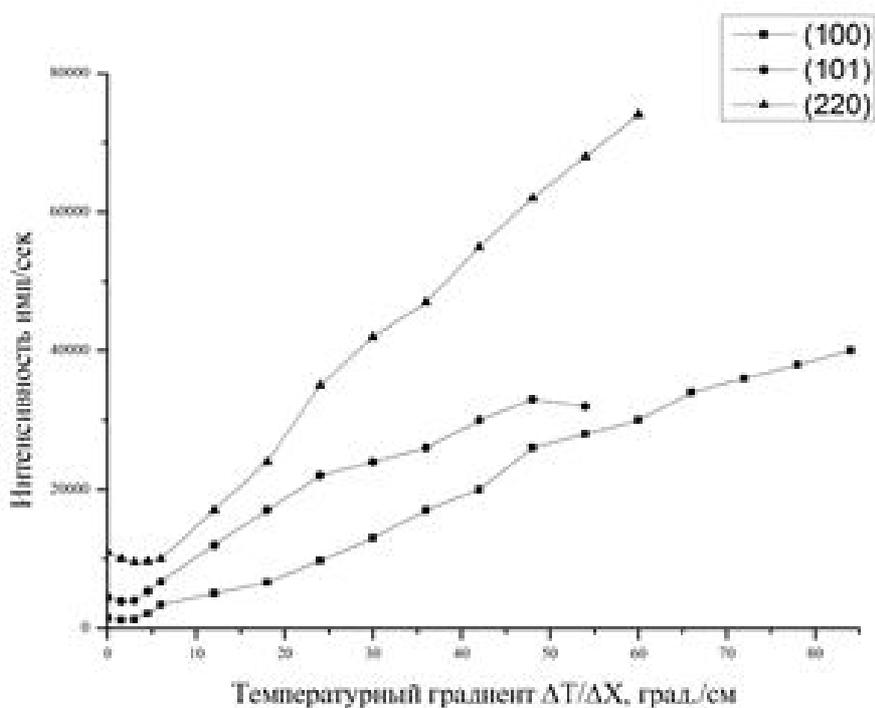


Рис.2. Зависимость интегральной интенсивности рентгеновского илучения AgK_α , отраженного от атомных плоскостей $(h k l)$ монокристалла ADP, от величины приложенного температурного градиента.

В табл.1 приведены данные о числе отраженных фотонов рентгеновского излучения для излучения AgK_α в зависимости от величины наложенного на кристалл температурного градиента.

Как видно из таблицы, при малых величинах температурного градиента число отраженных рентгеновских фотонов сначала уменьшается примерно на 10%, а затем монотонно увеличивается до насыщения, когда вектор дифракции и вектор температурного градиента антипараллельны.

Табл.1. Зависимость интегральной интенсивности рентгеновского излучения AgK_α , отраженного от атомных плоскостей (hkl) тонкого монокристалла ADP, от толщины кристалла и от величины приложенного температурного градиента и соответствующие коэффициенты усиления K .

T , мм	2.5		1.3
$\frac{\Delta T}{\Delta x}$ град/см \ (hkl)	(100)	(101)	(220)
0	1400	4400	11000
1.5	1100	3900	10000
3	1200	4000	9500
4.5	2100	5300	9600
6	3400	6700	10000
12	5000	12000	17000
18	6600	17000	24000
24	9700	22000	35000
30	13000	24000	42000
36	17000	26000	47000
42	20000	30000	55000
48	26000	33000	62000
54	28000	32000	68000
60	30000		74000
66	34000		
72	36000		
78	38000		
84	40000		
90			
96			
K	28.6	7.3	6.7

В табл.2 приведены некоторые данные об использованных кристаллах.

Табл.2. Углы Брэгга некоторых атомных плоскостей монокристалла ADP ($\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$) и германия (Ge) для излучений AgK_α и MoK_α .

формула вещества	плотность вещества ρ , г/см ³	индексы отражения (hkl)	межплоскостное расстояние d , Å	$\text{AgK}_{\alpha 1}$ $\lambda=0.559$ Å	$\text{MoK}_{\alpha 1}$ $\lambda=0.559$ Å
$\text{NH}_4 \text{H}_2\text{PO}_4$	1.8 (20°C)	(100)	7.5	2°8'	2°43'
		(101)	5.32	3°1'	3°49'
		(220)	2.65	6°3'	7°41'
Ge	5.33 (25°C)	(220)	2.024	7°56'	10°7'

3. Теоретическая часть

Кристалл, при отсутствии в нем внутренних напряжений, под воздействием однородного температурного градиента ∇T деформируется. Причем, плоскости, перпендикулярные к градиенту ∇T , искривляются, а радиус искривления определяется как

$$R = \pm |\nabla(aT)|^{-1}, \quad (1)$$

где α – линейный коэффициент термического расширения, а знак кривизны плоскостей определяется направлением $\nabla(aT)$. Атомные плоскости, параллельные ∇T , остаются плоскими, но распределяются в виде веера друг относительно друга. Векторная функция относительного смещения $\mathbf{u}(\mathbf{r})$ атомов деформационного поля задается в виде

$$\mathbf{u}(\mathbf{r}) = \mathbf{r} \left[\mathbf{r} \nabla(aT) \right] - \frac{1}{2} (\mathbf{r}\mathbf{r}) \nabla(aT), \quad (2)$$

где \mathbf{r} – радиус-вектор рассматриваемой точки. Очевидно, что поле смещения оказывается квадратичной функцией координат.

В рассматриваемом нами случае (симметричное отражение в лауэвской геометрии) температурный градиент направлен перпендикулярно отражающим атомным плоскостям решетки. Следовательно, последние оказываются искривленными по радиусу согласно (1), а параметр локального отклонения от условия Брэгга в плоскости рассеяния ($y = 0$) определяется выражением

$$\mathbf{h}\mathbf{u}(\mathbf{r}) = \frac{h}{2R} (z^2 - x^2), \quad (3)$$

где \mathbf{h} – вектор дифракции соответствующего отражения. Координатная система выбрана следующим образом: ось x антипараллельна вектору дифракции h , а ось z направлена вдоль внутренней нормали входной поверхности кристалла.

В работе [11] получено асимптотическое решение динамической дифракции рентгеновских волновых пакетов в кристаллах со слабым полем искажения решетки. В условиях эксперимента, в частности, в пределах приложенных температурных градиентов, оценки на основе (1) и (2) показывают, что асимптотическое решение, развитое в [11], применимо для условий проведенных экспериментов. К примеру, при максимальном значении приложенного градиента

$\frac{\Delta T}{\Delta X} \approx 100$ град/см радиус кривизны отражающих плоскостей

те $R \approx \left| \frac{d(aT)}{dx} \right|^{-1} \approx 10^4$ см = 100 м, т.к. коэффициент линейного расширения

$\alpha \approx 10^{-6}$ град $^{-1}$ для кристалла ADP [12]. При этом насыщение интенсивностей дифрагированных пучков достигается в другом предельном случае, когда рассеяние рентгеновских пучков перестает быть динамическим, т.е. различные участки кристалла рассеивают излучение независимо и роль многократных отражений волнового поля в кристалле становится пренебрежимым, а процесс рассеяния – кинематическим. Предельный переход к такому процессу определяется условием

$$\frac{h}{R} \gg \frac{\pi^2}{\lambda^2} |\chi_h|^2, \quad (4)$$

где λ – длина волны излучения, $\chi_h \equiv \chi_{hkl}$ – коэффициент фурье-разложения микроскопической поляризуемости решетки кристалла для рассматриваемого

отражения от плоскостей с миллеровскими индексами (hkl) . Из условия (4) имеем

$$R \ll \frac{\lambda^2}{\pi^2 d |\chi_h|^2}, \quad (5)$$

где $d = h^{-1}$ – межплоскостное расстояние отражающих плоскостей. Оценка согласно (5), считая, что $\lambda = k^{-1} \sim 10^{-8}$ см, $d \sim 10^{-8}$ см и $|\chi_h| \sim 10^{-6}$ дает $R \ll 10^3$ см.

Вышеизложенное доказывает, что в условиях проведенного эксперимента мы можем исходить из допущения слабого поля деформации и использовать теоретические результаты, полученные в [11]. В частности, при точном выполнении условия Брэгга относительная усредненная по толщине кристалла интенсивность отраженного пучка

$$R_h = \frac{I_h}{I_i} = e^{-\mu t} \operatorname{ch} \left[2\pi k \chi_{hi} - \frac{\alpha}{2\pi k |\chi_{hr}|} \right] t, \quad (6)$$

где μ – линейный коэффициент поглощения кристалла для данного излучения, t – толщина кристалла, I_h и I_i – интенсивности отраженного и падающего пучков, χ_{hi} и χ_{hr} – мнимая и реальная части коэффициента Фурье-разложения, соответственно, а

$$\alpha = \frac{h}{2R} = \frac{ha}{2} \frac{dT}{dx}. \quad (7)$$

Формула (6) описывает поведение коэффициента отражения в зависимости от градиента температуры. В частности, R_h сначала уменьшается с увеличением $\frac{dT}{dx}$, достигая минимума при

$$2\pi k \chi_{hi} = \frac{\alpha}{2\pi k |\chi_{hr}|} \quad (8)$$

или с учетом (7) при

$$\frac{dT}{dx} = \frac{8\pi^2 k^2 |\chi_{hr}| \chi_{hi}}{ha}, \quad (9)$$

а затем начинает увеличиваться с увеличением $\frac{dT}{dx}$, переходя в экспоненциальный рост при сравнительно больших градиентах.

Остановимся также на вопросе о регистрации интегральной интенсивности в нашем эксперименте. Допускается, что входная поверхность кристалла освещается некогерентным пучком конечной ширины. Согласно принципу Гюйгенса – Френеля, каждая точка освещаемой области на входной поверхности пластинки возбуждает волновое поле, ограниченное треугольником Бормана с вершиной в данной точке освещаемой области. В результате суммарная интенсивность на выходной поверхности образца будет определяться как интеграл от модуля функции влияния по освещенной области и при достаточной ширине этой области будет равна интегральной интенсивности отражения.

Аналогичное поведение выявляет и интегральная интенсивность отражения, т.к. она определяется как интеграл от коэффициента отражения по углу смещения от точного условия Брэгга. В [11] показано, что для слабопоглощающих кристаллов следует заменить параметр $2\pi k\chi_{hi}$ на $2\pi k\chi_{hi} - \frac{\alpha}{2\pi k|\chi_{hr}|}$ в соответствующих формулах, описывающих дифракцию на совершенном кристалле. В частности, это утверждение отображено в (6) и как результат усредненная по толщине кристалла интегральная интенсивность отражения для симметричной геометрии Лауэ будет определяться по формуле [13]

$$R_i = \frac{\pi|\chi_{hr}|}{2\sin 2\theta_B} e^{\frac{-\mu}{\cos\theta_B}} I_0\left(\frac{t}{\cos\theta_B}\left(2\pi k|\chi_{hi}| \mp \frac{|\alpha|}{2\pi k|\chi_{hr}|}\right)\right), \quad (10)$$

где θ_B – угол Брэгга, $I_0(y)$ – модифицированная функция Бесселя, знак перед α определяется знаком R в (1). Из поведения функции Бесселя $I_0(y)$ теперь очевидно, что с увеличением $|\alpha|$ интегральная интенсивность падает, достигая минимума при $\alpha = 4\pi^2 k^2 |\chi_{hi} \chi_{hr}|$, ($\alpha > 0$), а затем экспоненциально растет с ростом $|\alpha|$. Естественно, такой рост интегральной интенсивности ограничен приближением (4) и будет иметь место в пределах этого приближения. При $|\alpha| = -\alpha$ интегральная интенсивность растет монотонно вместе с ростом $|\alpha|$, а вышеотмеченный минимум отсутствует.

4. Заключение

Исследованы особенности динамического рассеяния рентгеновских лучей в тонких кристаллах ADP при наличии на образцах температурного градиента. Измерены зависимость интегральной интенсивности и коэффициенты усиления отраженных пучков от величины температурного градиента, перпендикулярного к отражающим атомным плоскостям для различных толщин монокристаллов. Дана теоретическая интерпретация спада интенсивности отражения и появления минимума в зависимости от величины температурного градиента, а также линейности характера роста этой зависимости вплоть до насыщения в большом интервале изменения температурного градиента. Спад интегральной интенсивности отраженного пучка при малых величинах температурного градиента, на наш взгляд, связан с блочной структурой монокристалла, т.е. малые величины температурного градиента способствуют сглаживанию границ блочности, вследствие чего повышается степень совершенства монокристалла, что и является причиной уменьшения интенсивности. Дальнейшее увеличение величины температурного градиента приводит к анизотропной деформации и изгибу отражающих атомных плоскостей, вследствие чего увеличивается интенсивность отраженного пучка вплоть до насыщения. Аналогичные явления наблюдались в работе [14], где в качестве образца использовались монокристаллы KDP. Увеличение интенсивности отраженного пучка обусловлено увеличением отражательной способности атомных плоскостей и их изгибом [15] под влиянием температурного градиента, что и подтверждается в настоящей работе.

ЛИТЕРАТУРА

1. **A.W. Fox, P.H. Corr.** Phys. Rev., **37**, 1622 (1931).
2. **S. Nishikava, I. Sakisaka, I. Sumoto.** Phys. Rev., **38**, 1078 (1931).
3. **А.Р. Мкртчян, М.А. Навасардян, В.К. Мирзоян.** Письма в ЖТФ, **8**, 677 (1982).
4. **В.К. Мирзоян, С.Н. Нореян.** Тез. докл. V всесоюзного совещания по когерентному взаимодействию излучения с веществом, Симферополь, 1990, с.142.
5. **A.R. Mkrтчyan, V.Gh. Mirzoyan, A.G. Mkrтчyan, S.N. Noreyan, L.A. Kocharyan, R.A. Sarkisyan, V.H. Tonoyan, T.G. Dovlatyan, W. Wagner, G. Prade, W. Matz, N. Shell.** Conversion potential of Armenia and ISTC Programs Internal Seminar proceedings, Yerevan, 2000, p.139.
6. **М.А. Навасардян, Ю.Р. Назарян, В.К. Мирзоян.** Изв. АН Армении, Физика, **14**, 425 (1979).
7. **А.Р. Мкртчян, М.А. Навасардян, В.К. Мирзоян, А.А. Кочарян, С.С. Галстян, О.А. Унанян, К.Г. Галоян.** Авторское свидетельство СССР N1327716 (1987).
8. **А.Р. Мкртчян, В.К. Мирзоян, А.С. Мелконян, С.Н. Нореян, Л.А. Кочарян, Э.Г. Багдасарян, Т.Г. Довлатян, У. Ван Бюрк, В. Вагнер, В. Матц, Н. Шелл.** Конверсионный потенциал Армении и программы МНТЦ, международный семинар, Ереван, доклады, часть 1, 2000, с.158.
9. **В.К. Мирзоян, А.Р. Мкртчян, С.Н. Нореян.** Поверхность, рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования, **6**, 95 (2008).
10. **В.К. Мирзоян, С.Н. Нореян.** Изв. НАН Армении, Физика, **26**, 66 (1991).
11. **К.Г. Труни, В.Р. Кочарян, Г.Р. Григорян.** Изв. НАН Армении, Физика, **47**, 131 (2012).
12. Акустические кристаллы, ред. **М.О. Шаскольская**, М., Наука, 1982.
13. **З.Г. Пинскер.** Рентгеновская кристаллооптика, М., Наука, 1982.
14. **В.К. Мирзоян, К.М. Геворкян, П.А. Григорян, Т.Г. Довлатян.** Изв. НАН Армении, Физика, **45**, 221 (2010).
15. **В.К. Мирзоян, А.А. Егиазарян, Э.Г. Багдасарян, П.В. Мирзоян.** Изв. НАН Армении, Физика, **42**, 355 (2007).

DYNAMICAL DIFFRACTION OF X-RAYS IN ADP SINGLE CRYSTAL UNDER INFLUENCE OF TEMPERATURE GRADIENT

V.GH. MIRZOYAN, K.G. TRUNI, P.A. GRIGORYAN,
K.M. GEVORGYAN, M. GHANNAD DEZFOULI

Dependence of the integral intensity of diffracted X-ray beams from a single crystal of ammonium dihydrogen phosphate (ADP) in the Laue geometry in the presence of a temperature gradient has been investigated. It is found that the integral intensity of the reflected X-ray beam from a single crystal is almost linearly dependent on the magnitude of temperature gradient applied perpendicularly to the reflecting atomic planes up to saturation. For small values of the temperature gradient, in case of antiparallel vectors of diffraction and temperature gradient, integral intensity of the reflected X-rays initially reduces by about 10% and then increases monotonically with increasing value of the temperature gradient. Based on the theoretical analysis an explanation of observed phenomena is given.