

ДИФРАКЦИОННОЕ ПОГЛОЩЕНИЕ В МОНОКРИСТАЛЛЕ КВАРЦА ПРИ НАЛИЧИИ ТЕМПЕРАТУРНОГО ГРАДИЕНТА

В.В. МАРГАРЯН¹, С.Н. НОРЕЯН^{1*}, В.Р. КОЧАРЯН¹,
Ю.М. ЧЕРЕПЕННИКОВ^{1,2}, М. МЕСРОПЯН¹, А.Е. МОВСИСЯН¹,
В.Н. АГАБЕКЯН¹, А.М. МАМЯН¹, К.Г. ТРУНИ¹

¹Институт прикладных проблем физики НАН Армении, Ереван, Армения

²Томский Политехнический Университет, Томск, Россия

*e-mail: norser@yandex.ru

(Поступила в редакцию 24 июля 2024 г.)

Экспериментально исследовано влияние температурного градиента на аномальное поглощение (эффект Бормана) кристаллов кварца, наблюдаемое при дифракции Брэгга в геометрии Лауэ, когда ориентации векторов дифракции и температурного градиента ($\mathbf{g} \uparrow \mathbf{V}$) параллельны. Исследование проводилось для различных значений μt от 0.5 (слабое поглощение) до 4 (сильное поглощение), где μ – линейный коэффициент поглощения, а t – толщина кристалла. В этом диапазоне толщин кристалла с помощью сконструированной специальной схемы экспериментальной установки исследована роль аномального поглощения в формировании дифракционного поля в деформированной решетке кристалла и за кристаллом, в плоскости регистрации. Дана интерпретация наблюдаемых особенностей на основе теории динамической дифракции рентгеновских лучей в деформированных решетках.

1. Введение

Рентгеновские диагностические методы находят широкое применение в различных прикладных областях от неразрушающего контроля габаритных деталей до медицинских и биологических применений. При этом требования к точности и чувствительности таких методик постоянно растут, что заставляет вести поиск методов для их модернизации. Популярным путем улучшения рентгеновских аналитических методик является использование пучков монохроматического рентгеновского излучения (МРИ). Более того, некоторые из этих методик принципиально основаны на применении МРИ. Такие пучки оказываются востребованными, например, в диагностике материалов с низким линейным коэффициентом поглощения или в абсорбционной томографии и топографии некоторых кристаллов (таких как природный алмаз) [1–2] или биологических исследованиях макрообъектов [3], где использование абсорбционного и рефракционного методов рентгенодиагностики на пучках МРИ позволяет получать гораздо более качественные изображения. Монохроматическое рентгеновское излучение находит широкое применение и в исследованиях микроскопических биологических объектов, например в дешифровке белковых

кристаллов методами рентгеноструктурного анализа [4–6]. Другим направлением исследований, требующим применения высокоинтенсивных пучков монохроматического излучения, является так называемая рентгеновская абсорбционная спектроскопия (X-ray absorption spectroscopy, XAS). В настоящее время под этим термином подразумевается набор методик (EXAFS, XANES, NEXAFS) для исследования так называемой «тонкой структуры края поглощения» с целью определения атомной структуры вещества, состоящего из атомов разных химических элементов [7–8]. В большом количестве работ отмечается необходимость применения МРИ в медицинской диагностике [9–14] для целей рентгеновской визуализации, в том числе при проведении ангиографии [10, 11], компьютерной томографии [13], маммографии [14] и т.д.

Основным методом получения пучков МРИ является дифракция на кристаллах-монокроматорах. Известно, что внешние воздействия могут сильно повлиять на параметры сформированного в кристалле дифрагированного пучка [15–17], в том числе на его интенсивность. Изучение закономерностей влияния внешних воздействий на параметры дифрагированных монохроматических пучков важно с точки зрения возможных прикладных применений. В предыдущих исследованиях [18, 19] было показано увеличение суммарной интенсивности (дифрагированного и проходящего) излучения при наложении на кристаллический образец температурного градиента при условии антипараллельной ориентации векторов дифракции и температурного градиента ($\mathbf{B} \downarrow \uparrow \mathbf{g}$). Данный эффект описывается в рамках динамической теории [20] и может быть интерпретирован как перераспределение интенсивности между сильно- и слабопоглощающими модами в кристалле. При этом в случае параллельной ориентации векторов должен наблюдаться обратный эффект.

Целью настоящей работы является экспериментальное изучение интенсивности рентгеновского излучения, прошедшего через кристалл кварца при дифракции на атомных плоскостях ($10\bar{1}1$) в зависимости от параметров температурного градиента, приложенного к кристаллу, при параллельной ориентации векторов дифракции и температурного градиента ($\mathbf{g} \uparrow \uparrow \mathbf{B}$).

2. Схема эксперимента

Экспериментальные исследования проводились в двух-кристальной ($+n$, $-n$) бездисперсионной схеме Брэгга–Лауэ (рис.1). Первый кристалл-монокроматор был установлен в геометрии, соответствующей симметричному отражению Брэгга от атомных плоскостей ($10\bar{1}1$), в то время как второй кристаллический элемент схемы располагался в геометрии отражения Лауэ от тех же плоскостей. При этом второй кристаллический элемент представлял собой бикристаллическую сборку из двух идентичных клиновидных кристаллов, перевернутых один относительно другого так, чтобы общая толщина кристаллов в горизонтальном сечении на любой высоте сборки оставалась постоянной. При этом на краевой поверхности второго кристалла была закреплена нагревающая спираль (рис.1), которая позволяла создавать в нем температурный градиент. Вся сборка установлена на общей подставке с возможностью вертикального перемещения так, чтобы обеспечить возможность вертикального сканирования рентгеновским пучком по высоте кристалла, что обеспечивает возможность исследовать влияние

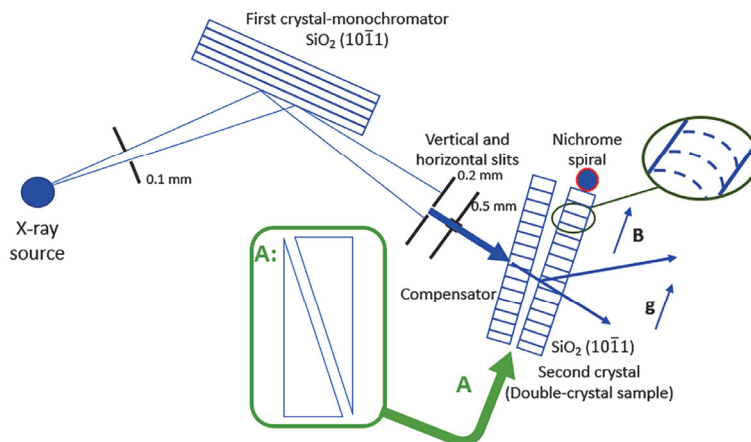


Рис.1. Схема эксперимента. В выноске увеличено – деформация отражающих плоскостей под действием температурного градиента. Вид А – вид на бикристаллическую сборку сбоку.

температурного градиента на рассеяние рентгеновского излучения в кристалле с разной толщиной. Первый кристалл бикристаллической сборки в данном случае выполняет роль компенсатора, обеспечивающего одинаковое линейное поглощение независимо от конкретной области кристалла, через которую проходит рентгеновский пучок. При этом первый кристалл установлен слегка разориентированным относительно второго, так чтобы при наблюдении дифракции узкой монохроматической линии на втором кристалле дифракция на первом кристалле (компенсаторе) не происходила. Таким образом, при вертикальном сканировании кристалла пучком возможно исследовать дифракцию рентгеновского излучения при разных размерах дифрагирующей области (толщине кристалла).

В качестве источника излучения использовалась рентгеновская трубка БСВ-27 с молибденовым анодом с рабочими параметрами 35 кВ и 20 мА. Первый кристалл-монокроматор, установленный на расстоянии 10 см от выходного окна трубки, использовался для выделения линии $\text{MoK}\alpha$ характеристического излучения из непрерывного спектра. После монохроматизации рентгеновский пучок был дополнительно коллимирован вертикальной (0.2 мм) и горизонтальной (0.5 мм) щелями, расположенными на расстояниях 9 и 10 см от монокроматора, соответственно. Бикристаллическая сборка располагалась на расстоянии 20 см от кристалла-монокроматора.

В эксперименте регистрировались интенсивности отраженного и проходящего рентгеновских пучков от участков кристалла с разной толщиной при разных значениях температурного градиента в кристалле. Бикристаллическая сборка устанавливалась в положении, соответствующем условию Брэгга для дифракции Лауэ $\text{MoK}\alpha$ линии характеристического излучения на втором кристалле.

Температурный градиент $\mathbf{B}$ в кристалле создавался с использованием спирали из нихрома. Спираль располагалась вблизи края второго кристалла бикристаллической сборки так, чтобы $\mathbf{B}$ был перпендикулярен отражающим плоскостям, при этом геометрия выбрана так, чтобы $\mathbf{B}$ был параллелен вектору дифракции $\mathbf{g}$ ($\mathbf{g} \uparrow \mathbf{B}$). Наличие температурного градиента ведет к деформации отражающих плоскостей в кристалле (рис.1). Величина температурного градиента

задавалась током, протекающим через нихромовую спираль (0–100 мА с шагом 10 мА), напряжение на спирали составляло 20 В. Мониторинг величины температурного градиента для каждого заданного значения тока осуществлялся путем измерения температуры кристалла в разных точках от одной поверхности к другой с шагом 5 мм. Температура в каждой точке измерялась с использованием железо-константановой термопары с точностью 1 °С.

Дифрагированный и прошедший пучки для разной толщины кристалла и при разных величинах градиента температур регистрировались независимо с использованием NaI сцинтилляционного счетчика. Диапазон толщин t кристалла, для которых проводились измерения, составлял 0.5–4.1 мм. На рис.2а, б приведены зависимости интенсивностей прошедшего и отраженного пучков для двух значений толщин кристаллов 0.5 и 4.1 мм, соответственно. Также на рисунках приведена интенсивность прошедшего через кристалл рентгеновского излучения, регистрируемая для каждой из толщин при легкой разориентации кристалла относительно положения Брэгга.

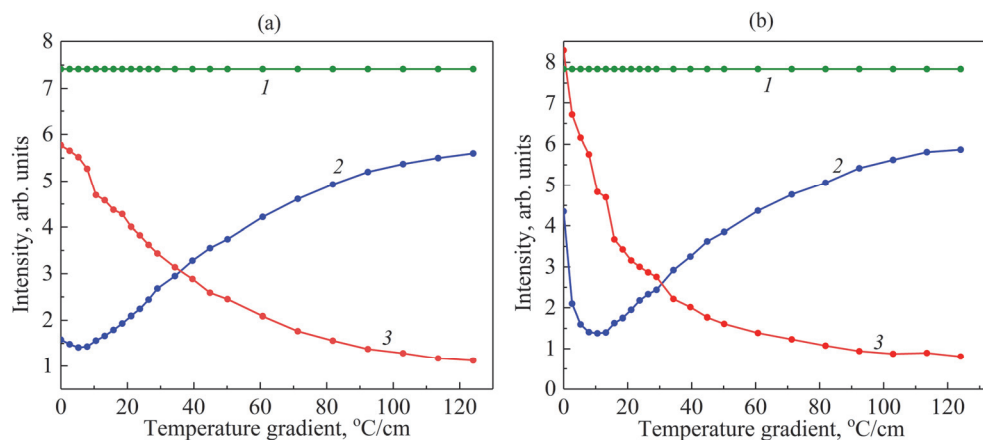


Рис.2. Интенсивности отраженного (кривая 2) и прошедшего (кривая 3) рентгеновского пучков, а также интенсивность прошедшего пучка вне условий Брэгга (кривая 1) при толщинах t кристаллов (а) 0.5 и (б) 4.1 мм.

Также в эксперименте исследовалась зависимость поглощения рентгеновского излучения в положении, соответствующем условию Брэгга от температурного градиента для разной толщины кристалла. Для этого сцинтилляционный детектор располагался так, чтобы регистрировать суммарную интенсивность прошедшего и дифрагированного пучков, при этом осуществляя сканирование рентгеновским пучком по областям кристалла с разной толщиной. Как было указано ранее, в случае антипараллельной ориентации векторов ($\mathbf{B} \downarrow \mathbf{g}$) дифракционное поглощение будет уменьшаться [18, 19], и суммарная интенсивность отраженного и прошедшего пучков будет увеличиваться по сравнению с интенсивностью пучка прошедшего через ту же толщину кристалла в отсутствие температурного градиента. Такое поведение может быть объяснено деформацией отражающих плоскостей при воздействии температурного градиента. При этом с увеличением температурного градиента после определенного значения суммарная интенсивность пучков, регистрируемых в условиях дифракции, начнет

уменьшаться, асимптотически приближаясь к интенсивности прошедшего пучка вне условия Брэгга. При параллельной ($\mathbf{g} \uparrow \mathbf{V}$) ориентации векторов, деформированные плоскости будут ориентированы в обратную сторону относительно пучка, что будет приводить к увеличению дифракционного поглощения [18]. Таким образом, увеличение температурного градиента приводит к уменьшению суммарной интенсивности отраженного и проходящего пучков до некоторого минимального значения, меньшего, чем интенсивность проходящего пучка вдали от условия Брэгга. Дальнейшее увеличение температурного градиента приводит к увеличению суммарной интенсивности, которая асимптотически приближается к интенсивности рентгеновского пучка, проходящего через кристалл вне условия Брэгга. Зарегистрированные в эксперименте зависимости подтверждают такое поведение (рис.3).

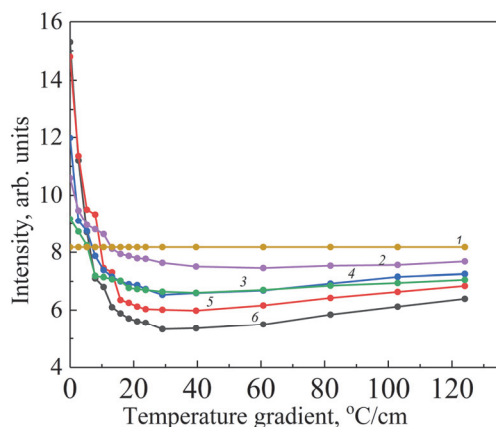


Рис.3. Зависимость суммарной (отраженного и прошедшего) интенсивности рентгеновского пучка от температурного градиента для разных толщин кристалла t . Кривая 1 соответствует значению интенсивности пучка при прохождении через кристалл вне условия Брэгга. Кривые 2,3,4,5,6 соответствуют толщинам t кристалла 0.5; 1.1; 2.3; 3.5; 4.1 мм

3. Обсуждение результатов

Из рис.3 (кривая 1) видно, что в нормальной ситуации (вне условия Брэгга) интенсивность пучка, проходящего через бикристаллическую сборку, не изменялась в зависимости от величины температурного градиента, приложенного к кристаллу-образцу и положения пучка (толщины кристалла), падающего на образец. Из кривых (2–6) на рис.3 видно, что при обеспечении условия Брэгга без температурных градиентов сумма интенсивностей проходящего и отраженного лучей в случае отражения от толстой части кристаллического образца больше, чем в случае отражения от тонкой части. Ясно, что это зависит от того, какую часть общей толщины клиновидной двухблочной системы составляет компенсатор (в котором излучение поглощается кристаллом в нормальном состоянии), а какую часть — образец (в котором поглощение излучения происходит по закону аномального ослабления). При сканировании падающим пучком от тонкой части образца к более толстой увеличивается размер области динамической дифракции или аномального поглощения и одновременно уменьшается диапазон линейного

поглощения в компенсаторе.

Таким образом, в отсутствии теплового градиента общее поглощение от бикристаллической сборки уменьшается с увеличением толщины кристаллического образца, что хорошо видно на рис.3 (кривые 2–6). Из этих кривых также видно, что с ростом величины температурного градиента сумма интенсивностей проходящего и отраженного лучей для всех толщин образца сначала уменьшается, достигая минимума при определенном значении градиента температуры. Так, температурный градиент, приложенный перпендикулярно плоскостям X -среза монокристалла кварца, приводит к увеличению аномального поглощения кристаллического образца, что связано с переброской энергии из слабо поглощающих мод в сильно поглощающие [10]. Дальнейшее увеличение градиента температуры приводит к уменьшению размера области динамической дифракции в кристалле для излучения с заданной энергией за счет большего искривления отражающих плоскостей, что в свою очередь приводит к уменьшению полного поглощения.

4. Заключение

В работе экспериментально изучено влияние температурного градиента на аномальное поглощение кристаллов кварца, наблюдаемое при дифракции Брэгга в геометрии Лауэ, когда ориентации векторов дифракции и температурного градиента параллельны ($\mathbf{g} \uparrow \mathbf{B}$). Исследование проводилось для различных значений ut (от 0.5 до 4). Результаты исследования показывают, что с увеличением градиента температуры сумма интенсивностей проходящего и отраженного пучков уменьшается и достигает минимума при определенном значении градиента температуры, при этом суммарная интенсивность становится меньше, чем интенсивность проходящего пучка вне условия Брэгга. Таким образом, аномальное поглощение в образце увеличивается. Дальнейшее увеличение градиента температуры приводит к увеличению суммарной интенсивности, стремящейся к интенсивности излучения, проходящего через кристалл вне условия Брэгга, т.е. аномальное поглощение в образце стремится к линейному поглощению.

Работа поддержана комитетом Высшего образования и науки Республики Армения (Проект № 23RL-1C037).

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

ЛИТЕРАТУРА

1. V.E. Asadchikov, A.V. Buzmakov, D.A. Zolotov, R.A. Senin, A.S. Geranin. *Crystallogr. Rep.*, **55**, 158 (2010).
2. D.A. Zolotov, A.V. Buzmakov, V.E. Asadchikov, A.E. Voloshin, V.N. Shkurko, I.S. Smirnov. *Crystallogr. Rep.*, **56**, 393 (2011).
3. S.S. Rodionova, A.N. Torgashin, K.M. Podurets, D.K. Pogorelyy, L.A. Semenova, S.V. Rodionov, N.N. Priorov. *J. Traumatology and Orthopedics*, **17**, 34 (2010).
4. Ю.А. Владимиров. *Природа*, **11**, 26 (2003).
5. A. Wlodawer, Z. Dauter, M. Jaskolski. *Methods Mol. Biol.*, **1607**, 595 (2017).
6. I.P. Kuranova. *Crystallogr. Rep.*, **46**, 601 (2001).
7. B. Beckhoff, B. Kanngießer, N. Langhoff, R. Wedell, H. Wolff. *Handbook of Practical*

- X-Ray Fluorescence Analysis. Berlin: Springer, 2006.
8. **G. Bunker.** Introduction to XAFS: a Practical Guide to X-Ray Absorption Fine Structure Spectroscopy. New York, Cambridge University Press, 2010.
 9. **P. Baldelli, A. Taibi, A. Tuffanelli, M. Gambaccini.** Phys. Med. Biol., **49**, 4125 (2004).
 10. **W.R. Dix.** Nucl. Phys. A, **654**, 1043 (1999).
 11. **T. Takeda, Y. Itai, J. Wu, S. Ohtsuka, K. Hyodo, M. Ando, K. Nishimura, S. Hasegawa, T. Akatsuka, M. Akisada.** Acad. Radiol., **2**, 602 (1995).
 12. **J. Freudenberger, E. Hell, W. Knüpfer.** Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A., **466**, 99 (2001).
 13. **F. Arfelli.** Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A., **454**, 11 (2000).
 14. **M.A. Peristup, X. Wu, V.V. Kaplan, S.R. Uglov, J.T. Cremer, D.W. Rule, R.B. Fiorito.** Rev. Sci. Instrum. **72**, 2159 (2001).
 15. **R.G. Gabrielyan, H.A. Aslanyan.** Phys. Stat. Sol. (b), **123**, K97 (1984).
 16. **A.E. Blagov, A.E., Kocharyan, V.R., Eliovich, Y.A. A.V. Targonsky, A.E. Movsisyan, V.A. Korzhov, A.V. Shahverdyan, A.H. Mkrtchyan, M.V. Kovalchuk.** J. Contemp. Phys., **57**, 192 (2022).
 17. **V.R. Kocharyan.** J. Contemp. Phys., **52**, 392 (2017).
 18. **K.G. Trouni, V.R. Kocharyan, G.R. Grigoryan.** J. Contemp. Phys., **47**, 87 (2012).
 19. **V. Margaryan, S. Noreyan, M. Mesropyan, K. Trouni, V. Aghabekyan, R. Mirzoyan, V. Kocharyan.** J. Instrum., **19**, C05044 (2024).
 20. **A. Authier.** Dynamical Theory of X-Ray Diffraction. Oxford: Science Publ., 2008.

DIFFRACTION ABSORPTION IN A QUARTZ SINGLE CRYSTAL IN THE PRESENCE OF A TEMPERATURE GRADIENT

V.V. MARGARYAN, S.N. NOREYAN, K.G. TROUNI, YU.M. CHEREPENNIKOV,
M.H. MESROPYAN, A.E. MOVSISYAN, V.N. AGHABEKYAN,
A.M. MAMYAN, V.R. KOCHARYAN

The phenomenon of anomalous absorption in dynamic diffraction of X-rays for Laue geometry in a quartz crystal with a lattice deformed by a temperature gradient parallel to the diffraction vector ($\mathbf{g} \uparrow \mathbf{B}$) is experimentally investigated. The study was carried out for various values of μt (from ~ 0.5 to 4), where μ is the linear absorption coefficient, and t is the thickness of the crystal. In this range of crystal thicknesses. The role of anomalous absorption in the formation of the diffraction field in the deformed crystal lattice and outside the crystal in the recording plane was studied using a specially designed scheme for experimental setup. Interpretations of the observed features were given based on the dynamic diffraction theory of X-rays in deformed crystal lattices.