

## ОПРЕДЕЛЕНИЕ ВКЛАДА ВАЛЕНТНЫХ ЭЛЕКТРОНОВ В АТОМНЫЙ ФАКТОР РАССЕЯНИЯ КРЕМНИЯ С ПОМОЩЬЮ КОМПТОН-ЭФФЕКТА, ВОЗБУЖДАЕМОГО СТОЯЧЕЙ РЕНТГЕНОВСКОЙ ВОЛНОЙ

В.А.Бушув<sup>1)</sup>, А.Ю.Казимиров, М.В.Ковальчук

Впервые реализована новая схема исследования когерентного комптоновского рассеяния (КР), заключающаяся в регистрации КР в условиях динамической лауэ-дифракции рентгеновских лучей. Изучены закономерности формирования угловой зависимости КР и экспериментально определен вклад валентных электронов в атомный фактор кремния.

Комптоновское рассеяние (КР) рентгеновских лучей является эффективным методом исследования электронной структуры кристаллов<sup>1</sup>. Это связано с тем, что КР более чувствительно к состоянию слабосвязанных валентных электронов чем интенсивность дифракционных отражений.

В условиях динамической дифракции рентгеновских лучей возможности КР существенно повышаются. В этом случае в результате когерентной суперпозиции падающей и отраженной волн в кристалле формируется пространственно-периодическая стоячая рентгеновская волна<sup>2</sup>, поэтому угловая зависимость интенсивности КР определяется распределением электронной плотности относительно узлов и пучностей стоячей волны, положением которых можно управлять поворотом кристалла вблизи угла Брэгга. Дифракция комптоновского или внешнего излучений приводит к когерентному комптон-эффекту<sup>3,4</sup>, что позволяет, в частности, определять недиагональные элементы электронной матрицы плотности<sup>5</sup>.

Ранее когерентное КР исследовалось в основном в геометрии Брэгга<sup>4-7</sup>, которая, даже с учетом усиления когерентного КР при асимметричной дифракции<sup>6,7</sup>, не является оптимальной из-за наличия в угловой зависимости КР глубокого экстинкционного провала, снижающего информативность метода.

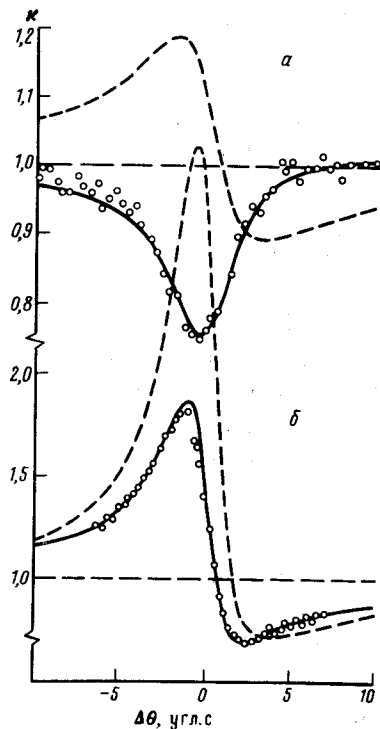
С этих позиций наиболее оптимальна постановка экспериментов в геометрии Лауэ<sup>8</sup>, но с энергетическим отделением КР от теплового диффузного рассеяния (ТДР). Решению именно этой задачи и посвящена настоящая работа. В ней впервые предложена и реализована экспериментальная схема, основанная на энергодисперсионной регистрации комптон-эффекта, возбуждаемого стоячей рентгеновской волной в геометрии Лауэ, использование которой позволило определить вклад валентных электронов в атомный фактор рассеяния. Поскольку относительный вклад валентных электронов возрастает с уменьшением угла КР, то геометрия Лауэ оказывается более предпочтительной еще и потому, что она позволяет проводить измерения в непосредственной близости к проходящему пучку.

Эксперименты по измерению угловых зависимостей КР проводились на двухкристальном спектрометре. Излучение  $\text{MoK}_{\alpha_1}$  монохроматизировалось отражением (111) от кремниевого монохроматора с фактором асимметрии 1/18. Образцами служили кристаллы бездислокационного кремния с ориентацией поверхности (100). Использовалось слабо асимметричное Лауэ-отражение (111). Регистрация КР осуществлялась в плоскости дифракции полупроводниковым детектором с энергетическим разрешением 230 эВ под углом  $\alpha = 60^\circ$  к выходной поверхности кристалла со стороны отраженного пучка. Верхняя энергетическая граница интервала регистрации, составлявшего 1160 эВ, была смещена в сторону меньших энергий на 400 эВ от пика ТДР линии  $\text{MoK}_{\alpha}$ .

Результаты измерений кривых выхода КР  $\kappa(\Delta\theta)$ , нормированных на интенсивность КР вдали от области дифракции, приведены на рисунке для двух образцов различной толщины  $l$  ( $\mu/\gamma_0 = 0,95$  и  $4,29$ , где  $\mu$  – коэффициент нормального поглощения,  $\gamma_0$  – косинус угла

<sup>1)</sup> Физический факультет МГУ им. М.В.Ломоносова.

падения на кристалл). Кривая выхода для тонкого кристалла (рис. а) представляет собой слегка асимметричный провал, определяемый вкладами слабо- и сильнопоглощающихся полей. С ростом толщины кристалла в  $\kappa$  появляется ярко выраженный максимум в отрицательной области углов (рис. б, см. также <sup>8</sup>), что связано с возрастанием роли аномального



Кривые выхода когерентного комптон-эффекта в условиях динамической Лауэ-дифракции рентгеновского излучения: кружочки – эксперимент, сплошные и штриховые кривые – расчет когерентного и некогерентного КР соответственно. Толщина кристалла  $l$ : а – 0,49, б – 2,2 мм

прохождения рентгеновских лучей в формировании стоячей волны вблизи выходной поверхности кристалла. В этом случае поле волны локализовано в основном между атомными плоскостями, где как раз и сосредоточена значительная часть валентных электронов.

Кривая выхода когерентного КР определяется выражением <sup>8</sup>

$$\kappa(\Delta\theta) = \sum_{\nu=1}^2 [ |A_{\nu}|^2 + b\beta_h + 2\sqrt{b} \operatorname{Re}(A_{\nu}\beta_{0h}) ] l_{\nu} / 4(1+y^2)l_{\infty}, \quad (1)$$

$$l_{\nu} = [ \exp(-\mu_{\nu}l) - \exp(-\mu'_{\nu}l/\gamma'_{\nu}) ] / (\mu'_{\nu}/\gamma'_{\nu} - \mu_{\nu}),$$

где  $A_{\nu} = y \mp \sqrt{1+y^2}$ ,  $y$  – нормированная угловая отстройка,  $b$  – фактор асимметрии,  $l_{\nu}$  – эффективные толщины рассеяния,  $\mu_{1,2}(y)$  – интерференционные коэффициенты поглощения слабо- и сильнопоглощающихся полей соответственно,  $\mu'_{\nu}$  – коэффициент поглощения комптоновского излучения,  $\gamma'_{\nu} = \sin \alpha$ ,  $l_{\infty} = l_{\nu}$  при  $|y| \gg 1$ . Параметры  $\beta_h = \sigma_h/\sigma_0$  и  $\beta_{0h} = \sigma_{0h}/\sigma_0$  определяются диагональными сечениями  $\sigma_0$  и  $\sigma_h$  КР проходящего и отраженного пучков соответственно, а также недиагональным (интерференционным) сечением когерентного КР  $\sigma_{0h}$ , которые зависят от распределения электронной плотности и направлений наблюдения <sup>6</sup>:

$$\sigma_{0,h} = Z - \sum_{ij} |f_{ij}(\mathbf{S}_{0,h})|^2, \quad \sigma_{0h} = F_h [ f_h - \sum_{ij} f_{ij}(\mathbf{S}_0) f_{ij}^*(\mathbf{S}_h) ], \quad (2)$$

где  $\mathbf{S}_0 = \mathbf{k}_0 - \mathbf{k}'$ ,  $\mathbf{S}_h = (\mathbf{k}_0 + \mathbf{h}) - \mathbf{k}'$ ,  $\mathbf{k}_0$  и  $\mathbf{k}'$  – волновые векторы падающего и комптоновского излучений соответственно,  $\mathbf{h}$  – вектор обратной решетки,  $Z$  – число атомных электронов,  $f_{ij}$  – формфакторы электронных орбиталей,  $f_h$  – фактор атомного рассеяния. Для отражения (111)  $F_h = f_T / \sqrt{2}$ , где  $f_T$  – тепловой фактор Дебая – Валлера.

Вклад валентных электронов в  $f_h$  из полученных экспериментальных кривых определялся следующим образом. Так как волновые функции связанных  $2s^2 2p^6$ -электронов практически не отличаются от таковых для свободных атомов, то сечения КР на этих электронах вычислялись с использованием хартри-фоковских значений  $f_{ij}$  для ионного остова  $Si^{+4}$  (заметим, что в условиях нашего эксперимента  $1s^2$ -электроны не дают вклада в регистрируемую интенсивность). Так как для валентных электронов справедлива импульсная аппроксимация <sup>1</sup>, то для диагональных сечений КР на атомах кремния получим  $\sigma_0 = 10,318$ ,  $\sigma_h = 9,575$ , т. е.  $\beta_h = 0,928$ , а для недиагонального сечения КР на электронах ионного остова  $\sigma_{0h} (2s^2 2p^6) = 3,752$ . Наилучшее согласие кривых выхода (1) с экспериментом при определенном выше значении  $\beta_h$  достигается в случае  $\beta_{0h} = 0,45 \pm 0,01$ , откуда полное сечение  $\sigma_{0h} = 4,64 \pm 0,1$ . Вклад четырех валентных электронов в  $\sigma_{0h}$  составляет, таким образом,  $\sigma_{0h}^v (3s^2 3p^2) = 0,89 \pm 0,1$ . Так как в импульсной аппроксимации можно пренебречь суммой по  $i, j$  в  $\sigma_{0h}^v$  (2), то отсюда с учетом  $F_h^v = 0,699$  следует, что вклад валентных электронов в фактор атомного рассеяния равен  $f_h^v = 1,27 \pm 0,15$ . Обработка кривых выхода велась с учетом расходимости и поляризации падающего пучка, энергетического интервала регистрации и разрешения детектора. Для сравнения штриховыми кривыми на рисунке показано, как резко отличаются от эксперимента кривые КР, если не учитывать угловую зависимость диагональных сечений и, что более существенно, пренебречь когерентным характером КР, т. е. считать, как в <sup>7</sup>, что  $\beta_h = 1$ ,  $\beta_{0h} = 0$ .

Полученное нами значение  $f_h^v$  хорошо согласуется с результатом  $f_h^v = 1,3$ , определенным в <sup>5</sup> по измерению площади недиагонального комптоновского профиля валентных электронов, а также с разностью между экспериментальным фактором атомного рассеяния в кристалле кремния  $f_h(Si) = 10,739$  <sup>10</sup> и рассчитанным по данным <sup>9</sup> значением  $f_h(Si^{+4}) = 9,439$  для ионного остова.

Заметим, что используемая нами методика регистрации позволяет накапливать экспериментальные данные в виде двумерных массивов "угол-энергия" (см., например, <sup>11</sup>), которые помимо кривых интегральной интенсивности КР, обсуждаемых здесь, содержат информацию и о комптоновских профилях. Анализ этих профилей даст дополнительные данные о характере распределения электронной плотности в твердых телах.

#### Литература

1. Бушув В.А., Кузьмин Р.Н. УФН, 1977, 122, 81.
2. Ковальчук М.В., Кон В.Г. УФН, 1986, 149, 69.
3. Бушув В.А., Кузьмин Р.Н. ЖТФ, 1977, 44, 2568.
4. Golovchenko J.A., Kaplan D.R., Kincaid B. et al. Phys. Rev. Lett., 1981, 46, 1454.
5. Schülke W., Mourikis S. Acta Cryst., 1986, A42, 86.
6. Бушув В.А., Любимов А.Г., Кузьмин Р.Н. Письма в ЖЭТФ, 1986, 12, 141.
7. Афанасьев А.М., Имамов Р.М., Мухамеджанов Э.Х., Ле Конг Куи. ДАН СССР, 1986, 288, 847.
8. Бушув В.А., Любимов А.Г. Письма в ЖТФ, 1987, 13, 744.
9. Freeman A.J. Acta Cryst., 1959, 12, 929.
10. Aldred P.J.E., Hart M. Proc. Roy. Soc., 1973, A332, 223.
11. Казимиров А.Ю., Ковальчук М.В. Кристаллография, 1987, 32, 730.