

Спектроскопия аномального рассеяния и транспортировка рентгеновской флуоресценции внутри полых микрокапилляров

М. И. Мазурицкий¹⁾, А. М. Лерер, А. А. Новакович, **Р. В. Ведринский**

Физический факультет, Южный федеральный университет, 344090 Ростов-на-Дону, Россия

Поступила в редакцию 13 июня 2013 г.

Выполнено экспериментально-теоретическое исследование рентгеновских спектров отражения, полученных при скользящем падении излучения на плоскую поверхность и стенки каналов микроканальных пластин. Исследованы тонкая структура рентгеновских спектров и угловое распределение поля, прошедшего через микроканалы, для энергии, соответствующей области аномальной дисперсии Si $L_{2,3}$ -края поглощения. Теоретические расчеты проведены с использованием модели, учитывающей переходный слой на поверхности образца.

DOI: 10.7868/S0370274X13150022

Ультрадлинноволновая рентгеновская спектроскопия отражения [1] зарекомендовала себя как эффективный инструмент анализа состояния поверхности твердых тел. Отражение происходит с малых глубин [2], спектрально характеризуя электронные и оптические свойства самых верхних слоев вещества. Тонкая структура спектров отражения в области аномальной дисперсии (вблизи краев поглощения) чувствительна к химическому состоянию поглощающего атома и ближайшему окружению.

Исследование особенностей трансмиссии рентгеновского излучения через микрокапиллярные структуры [3, 4] с целью создания новых фокусирующих устройств [5], в том числе в длинноволновом рентгеновском диапазоне, – одна из приоритетных задач физики. Ее решение сулит появление востребованных методов и эффективных технологий для физики, химии, биологии, медицины.

При углах скольжения, меньших критического, наряду с упругим рассеянием возникает флуоресцентное рентгеновское излучение, если падающие фотоны способны возбуждать соответствующие атомные уровни. В работах [6, 7] высказано предположение о возможности транспортировки рентгеновской флуоресценции внутри микро- и нанокпилляров. Установлено [8, 9], что рентгеновское флуоресцентное излучение, возбуждаемое внутри полых микрокапиллярных структур, способно распространяться направленно вдоль них.

В данной работе экспериментально и теоретически исследована тонкая структура рентгеновских спектров в окрестности Si $L_{2,3}$ -края поглощения.

Действительная и мнимая части диэлектрической проницаемости, полученные для плоского кристалла кварц (10-10), были использованы при теоретическом анализе спектральных и угловых зависимостей на выходе микроканальных пластин (МКП) при скользящих углах падения излучения на стенки микроканалов.

Образцы МКП представляли собой тонкие (≈ 0.5 мм) “дырчатые” (диаметр каналов порядка 10 мкм) пластины, состоящие преимущественно из силикатного стекла. Тонкая структура рентгеновских спектров была получена с разрешением 0.05 эВ в синхротронном центре BESSY II (Германия) на экспериментальной станции Polarimeter. Для плоских образцов экспериментальные условия позволяли одновременно регистрировать рентгеновские спектры отражения и выход флуоресценции (Fluorescence Yield; FLY). Были получены спектральные и угловые распределения интенсивностей рентгеновского излучения, прошедшего через микроканалы МКП.

Как известно, в силу различных факторов, в том числе связанных с технологией обработки, а также с воздействием влаги и воздуха, профиль концентрации химических элементов, поверхностная плотность и, как следствие, физико-химические свойства переходного слоя изменяются с глубиной [10, 11]. Взаимодействие длинноволнового рентгеновского излучения с веществом происходит в приповерхностном слое, где необходимо учитывать изменение (распределение) величины диэлектрической проницаемости.

Мы полагали направление оси x перпендикулярным поверхности. При этом волна падает на образец под углом скольжения θ . Решение задачи об отра-

¹⁾e-mail: mazurmik@gmail.com

жении от границы диэлектрика сводится к решению уравнения Гельмгольца:

$$E''(x) + k^2[\varepsilon(x) - \cos^2 \theta]E(x) = 0. \quad (1)$$

Уравнение (1) может рассматриваться и как одномерное стационарное уравнение Шредингера, в котором формально энергией частицы является величина $k^2 \sin^2 \theta$, а потенциал $V(x) = (1 - \varepsilon)k^2$.

Поверхность, от которой отражается волна, характеризуется комплексной диэлектрической проницаемостью. Аналогично [10] мы использовали простую модель переходного слоя в предположении, что в окрестности поверхности величина комплексной диэлектрической проницаемости плавно меняется от единичного значения (вакуум) до фиксированной величины ε_∞ в глубине кристалла ($x \rightarrow \infty$):

$$\varepsilon(x) = 1 + \frac{\varepsilon_\infty - 1}{1 + \exp(-\alpha x)}. \quad (2)$$

Коэффициент отражения рентгеновской волны описывается соотношением

$$R = \left| \frac{\operatorname{sh} \left[\frac{\pi}{\alpha} (k_1 - k_2) \right]}{\operatorname{sh} \left[\frac{\pi}{\alpha} (k_1 + k_2) \right]} \right|^2, \quad (3)$$

$$k_1 = k \sin \theta, \quad k_2 = k \sqrt{\varepsilon_\infty - \cos^2 \theta}. \quad (3)$$

Если устремить ширину переходного слоя к нулю, что в (2) соответствует бесконечному значению параметра α , то предельный вид соотношения (3) совпадает с известной формулой Френеля [12] для коэффициента отражения:

$$R = \left| \frac{\sin \theta - \sqrt{\varepsilon_\infty - \cos^2 \theta}}{\sin \theta + \sqrt{\varepsilon_\infty - \cos^2 \theta}} \right|^2. \quad (4)$$

Эту формулу, связывающую амплитуды падающей и отраженной волн, обычно используют [13] без учета переходного слоя для расчета спектров отражения в условиях полного внешнего отражения рентгеновского излучения.

Аномальное рассеяние наблюдается вблизи краев поглощения атомов, когда энергия фотона близка к величине, необходимой для возбуждения внутренних электронов. Для расчета комплексной величины диэлектрической проницаемости в окрестности $L_{2,3}$ -края фотопоглощения кремния были использованы спектры FLY для кристалла кварц (10-10).

Не учитывая анизотропии, мнимую часть аномального вклада в амплитуду рассеяния можно определить, используя так называемую оптическую теорему [14]:

$$\operatorname{Im} f^{(\text{an})}(\omega) = \frac{k}{4\pi} \sigma(\omega), \quad (5)$$

где $\sigma(\omega)$ – полное сечение рассеяния фотона с частотой ω на резонирующем атоме, $k = \omega/c$ – волновое число фотона, $f^{(\text{an})}(\omega)$ – амплитуда аномального рассеяния фотона.

Соотношение (5), связывающее сечение фотопоглощения с мнимой частью амплитуды аномального рассеяния, позволяет восстановить амплитуду аномального рассеяния на атоме кремния.

Для вычисления абсолютных значений сечения фотопоглощения был использован программный комплекс XKDQ [15, 16], разработанный в НИИ физики ЮФУ, который успешно применялся для расчетов рентгеновских спектров поглощения и рассеяния. Расчеты спектров проводились методом полного многократного рассеяния в формализме одноэлектронной функции Грина. Кристаллы моделировались кластерами конечных размеров, одноэлектронные потенциалы в которых аппроксимировались в muffin-tin приближении. При расчетах также использовалась разработанная ранее и хорошо зарекомендовавшая себя модель [17] построения полуэмпирического МТ-потенциала кластера.

Вещественная и мнимая части амплитуды аномального рассеяния связаны интегральным преобразованием (символ “ P ” обозначает главное значение интеграла)

$$\operatorname{Re} f^{(\text{an})}(\omega) = \frac{1}{\pi} P \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\operatorname{Im} f^{(\text{an})}(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega'. \quad (6)$$

Комплексная диэлектрическая проницаемость изотропной среды для рентгеновской волны выражается через плотность амплитуды рассеяния:

$$\varepsilon(\omega) = 1 + \frac{4\pi \tilde{f}(\omega)}{k^2}, \quad (7)$$

$$\tilde{f}(\omega) = -\frac{e^2}{mc^2} N_e + f^{(\text{an})}(\omega) N_{\text{at}}, \quad (8)$$

где N_e и N_{at} – полные числа электронов и атомов выделенного сорта (кремния) в единице объема рассматриваемой среды соответственно.

На рис. 1 представлены экспериментальные и теоретически рассчитанные рентгеновские спектры отражения для кристалла кварц (10-10), полученные при разных углах падения излучения. Расчет проводился с помощью описанной выше модели переходного слоя (2). В качестве параметра для всех спектров использовалось оптимизированное значение 40 нм ширины переходного слоя.

Распространение рентгеновского излучения в капиллярных системах зависит от его взаимодействия

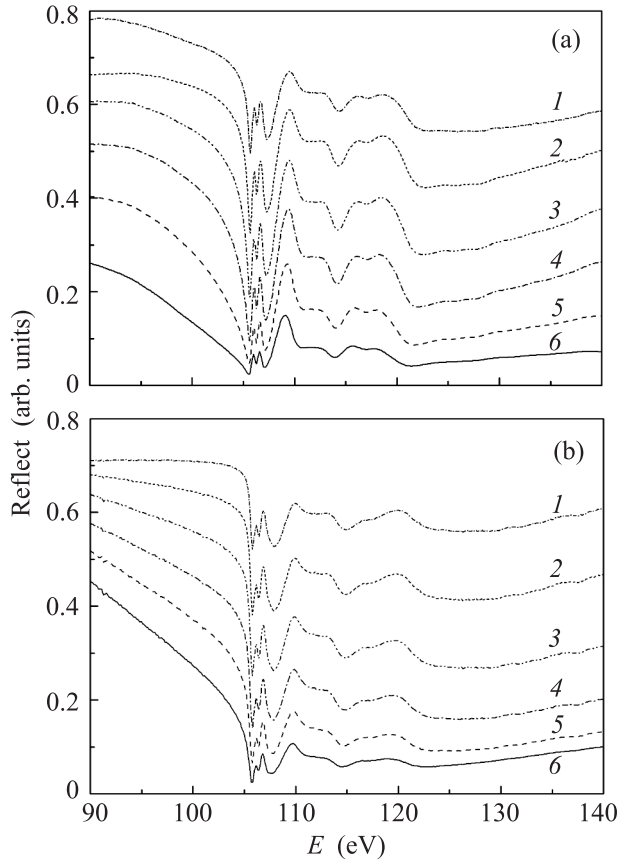


Рис. 1. Экспериментальные (а) и рассчитанные теоретически (б) спектры отражения и поглощения в окрестности Si $L_{2,3}$ -края поглощения при различных углах падения на поверхность кристалла кварц (10-10): 1 – 3° , 2 – 5° , 3 – 7° , 4 – 9° , 5 – 11° , 6 – 13°

с внутренними стенками стеклянных каналов. Исследование тонкой структуры спектров отражения в окрестности Si $L_{2,3}$ -края поглощения позволило получить действительную и мнимую части диэлектрической проницаемости для проведения теоретического моделирования углового распределения излучения на выходе МКП. На рис. 2 представлены экспериментальные и теоретические спектры отражения при угле падения излучения 5° , полученные для плоских образцов, а также на выходе каналов МКП. Детали тонкой структуры спектров 2–5 на рис. 2 несколько различаются, что обусловлено отличием в окружении кремния для этих образцов. Вместе с тем общие структуры спектров (экспериментальных и теоретического) хорошо соответствуют друг другу. Это позволило использовать для МКП рассчитанную диэлектрическую проницаемость.

Для решения уравнения (1) с распределением $\varepsilon(x)$ диэлектрической проницаемости по глубине

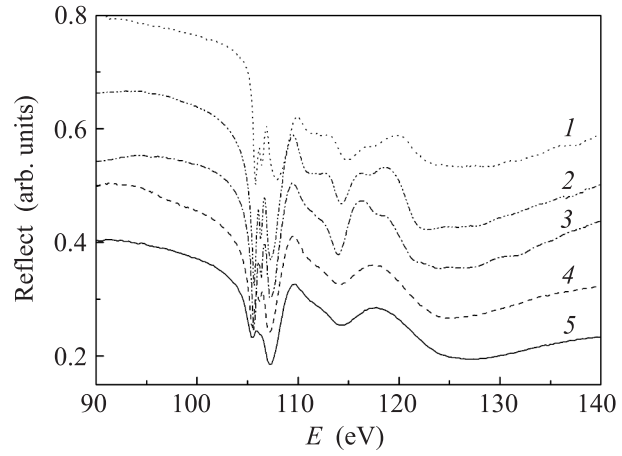


Рис. 2. Спектры отражения излучения в окрестности Si $L_{2,3}$ -края Поглощения при угле падения 5° : 1 – теоретический расчет; 2 – кристалл кварц (10-10); 3 – кристалл кварц (0001); 4 – плавленный кварц; 5 – на выходе МКП

внутри переходного слоя был использован способ, описанный в [18].

Переходный слой разбивался на N_s слоев плоскостями, перпендикулярными направлению оси x (т.е. параллельно поверхности). В каждом слое полагалось $\varepsilon(x) = \varepsilon(x_j)$, где x_j – середина j -го слоя. В результате мы получили простой алгоритм нахождения коэффициентов отражения и распределения $E(x)$ поля в диэлектрике:

1. Находим коэффициенты \bar{D}_j по рекуррентной схеме (РС)

$$\bar{D}_{j-1} = [\bar{D}_j(T_j + T_{j+1}) - \bar{D}_{j+1}Q_{j+1}] / Q_j \quad (j = N_s, \dots, 2) \quad (9)$$

с начальными условиями $\bar{D}_{N_s+1} = 0$, $\bar{D}_{N_s} = 1$. Здесь

$$T_j = \bar{\gamma}_j \text{cth}(\gamma_j h_j), \quad Q_j = \bar{\gamma}_j / \text{sh}(\gamma_j h_j), \quad (10)$$

$$1 < j \leq N_s, \quad \bar{\gamma}_j = \zeta_j \gamma_j,$$

$$\zeta = \begin{cases} 1/\varepsilon & \text{для } H \text{ – поляризации,} \\ 1/\mu & \text{для } E \text{ – поляризации.} \end{cases}$$

Не рассматривая поляризацию для рентгеновских лучей, можно положить $\zeta = 1$,

$$\gamma_j = \begin{cases} \sqrt{\alpha^2 - k^2 \varepsilon_j \mu_j}, & \alpha^2 - k^2 \varepsilon_j \mu_j \geq 0, \\ i\sqrt{-\alpha^2 + k^2 \varepsilon_j \mu_j}, & \alpha^2 - k^2 \varepsilon_j \mu_j \leq 0, \end{cases}$$

при $j = 1$, $j = N_s + 1 - T_j = \bar{\gamma}_j$, $Q_j = 0$.

2. Коэффициенты отражения и прохождения равны, соответственно:

$$R = \bar{D}_1 D_{N_s} - 1, \quad T = D_{N_s} = \frac{2\bar{\gamma}_1}{\bar{D}_1(T_1 + T_2) - \bar{D}_2 Q_2}. \quad (11)$$

3. Находим поле в j -м слое:

$$E_j(x) = \frac{D_{j-1}s_j(x - b_j) + D_j s_j(t_j - x)}{s_j(h_j)} \quad (1 < j < N_s), \quad (12)$$

где t_j, b_j – координаты границ j -го слоя, $h_j = t_j - b_j$, $s_j(z) = \text{sh}(\gamma_j z)$, $\bar{D}_j D_{N_s} = D_j$.

В данной работе исследовано угловое распределение поля для рентгеновского излучения, прошедшего через микроканалы, энергия которого соответствует области аномальной дисперсии Si $L_{2,3}$ -края поглощения. При этом переходный слой рассматривался как волновод, у которого лишь на границе с веществом имеет место эффект полного отражения. На границе с вакуумом происходит выход излучения, вследствие чего волна быстро затухает. Затухание волны в волноводе может быть скомпенсировано, если имеет место усиление за счет возбуждения рентгеновской Si L -флуоресценции внутри этого слоя.

Рассмотрим случай усиления, которое компенсирует потери излучения. Неоднородный диэлектрический волновод рассчитывался вышеописанным способом решения уравнения (1). Поскольку внешнее поле отсутствует, решение (1) сводится к задаче нахождения собственных значений. Мы имеем РС

$$D_{j+1} = \frac{1}{Q_{j+1}} [-D_{j-1}Q_j + D_j(T_j + T_{j+1})] \quad (j = 1, \dots, N_s - 1), \quad (13)$$

где $D_0 = 0, D_1 = 1$. Здесь α – неизвестная постоянная распространения.

По этой РС находим все D_{j+1} . Затем требуем выполнения РС при $j = N_s$:

$$D_{j-1}Q_j - D_j(T_j + T_{j+1}) = 0 \quad (j = N_s). \quad (14)$$

Отсюда находим постоянную распространения α . Решив численно уравнение $\cos \theta = \alpha/k$, получаем углы выхода излучения.

Углы выхода излучения из микроканалов МКП были рассчитаны в простейшем случае, когда потери на излучение равны усилению. Обнаружены дифракционные максимумы при углах, значительно больших, чем следует из теории дифракции на таких больших по сравнению с длиной волны каналах.

На рис. 3 представлено угловое распределение интенсивности излучения на выходе МКП, экспериментально полученное на Polarimeter, BESSY II (Berlin). Максимумы интенсивностей наблюдаются в окрестности углов 5° и 12° . Проведенный расчет показал, что при $E = 120$ эВ максимумы интенсивностей излучения на выходе

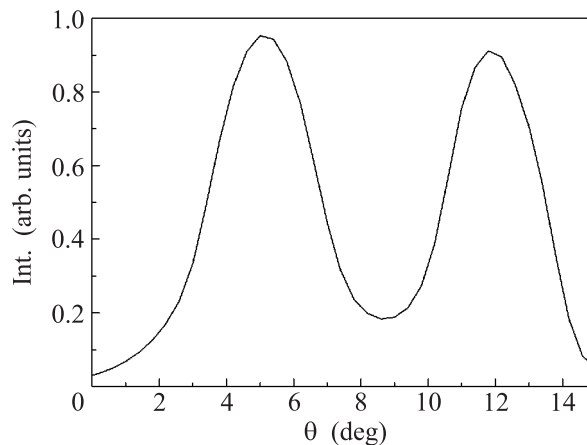


Рис. 3. Угловая зависимость экспериментально измеренной интенсивности рентгеновского излучения на выходе МКП

МКП должны наблюдаться при углах $\theta_1 = 5.8^\circ$ и $\theta_2 = 12.3^\circ$. Таким образом, теоретические значения хорошо соответствуют экспериментально наблюдаемым величинам. Мы полагаем, что обнаруженные максимумы в распределении интенсивности рентгеновского излучения на выходе микрокапилляров обусловлены поверхностными волнами флуоресценции, распространяющимися в переходном слое микроканалов.

Работа выполнена при частичной поддержке синхротронного центра BESSY (Project # 20120188) и Южного федерального университета (грант # 213.01-24/2013-8).

1. E. Filatova, A. Stepanov, C. Blessing et al., J. Phys. Cond. Matter **7**, 2731 (1995).
2. Е. О. Филатова, А. С. Шулаков, В. А. Лукьянов, ФТТ **40**(7), 1360 (1998).
3. M. A. Kumakhov and F. F. Komarov, Phys. Rep. **191**, 289 (1990).
4. S. V. Dabagov, S. V. Nikitina, M. A. Kumakhov et al., Nucl. Instr. and Meth. In Phys. Res. B **103**, 99 (1995).
5. С. Б. Дабагов, УФН **173**(10), 1083 (2003) [S. V. Dabagov, Physics Uspekhi **46**, 1053 (2003)].
6. А. В. Окотруб, С. Б. Дабагов, А. Г. Кудашов и др., Письма в ЖЭТФ **81**(1), 37 (2005) [A. V. Okotrub, S. V. Dabagov, A. G. Kudashov et al., JETP Lett. **81**(1), 34 (2005)].
7. М. И. Мазурицкий, Письма в ЖЭТФ **84**(7), 455 (2006) [M. I. Mazuritskiy, JETP Lett. **84**(7), 381 (2006)].
8. М. И. Мазурицкий, П. В. Махно, Письма в ЖЭТФ **88**(6), 404 (2008) [M. I. Mazuritskiy and P. V. Makhno, JETP Lett. **88**(6), 351 (2008)].

9. M. I. Mazuritskiy, J. Synchrotron Rad. **19**, 129 (2012).
10. R. M. Fechtchenko, A. V. Popov, and A. V. Vinogradov, J. of Russ. Laser Res. **21**(1), 62 (2000).
11. I. D. Feranchuk, S. I. Feranchuk, and A. P. Ulyanenko, Phys. Rev. B **75**, 085414 (2007).
12. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред*, М.: Наука, 1982, с. 620.
13. P. Tripathi, G. S. Lodha, M. H. Modi et al., Optics Comm. **211**, 215 (2002).
14. E. Feenberg, Phys. Rev. **40**, 40 (1932).
15. B. Poumellec, V. Kraizman, Y. Aifa et al., Phys. Rev. B **58**, 6133 (1998).
16. J. Kokobun, K. Ishida, D. Cabaret et al., Phys. Rev. B **69**, 245103 (2004).
17. R. V. Vedrinskii, V. L. Kraizman, A. A. Novakovich et al., Cond. Matter **10**, 9561 (1998).
18. А. М. Лерер, Радиотехника и электроника **42**(6), 649 (1997).