

# Линии Косселя для предельно асимметричных схем дифракции

А. М. Афанасьев\*, М. В. Ковальчук, М. А. Чуев\*

Институт кристаллографии РАН, 117333 Москва, Россия

\* Физико-технологический институт РАН, 117218 Москва, Россия

Поступила в редакцию 13 февраля 2001 г.

Теоретически показано, что распределение интенсивности в пределах линии Косселя, соответствующей резко асимметричной схеме дифракции рентгеновских лучей, имеет аномальную форму сильно выраженного пика, превышающего фоновую интенсивность в сотни раз. Проанализированы возможности экспериментального наблюдения этого явления.

PACS: 61.10.Dp

Еще в 60-е годы была отмечена уникальная возможность использования линий Косселя для определения фаз амплитуд рассеяния и их использования в рентгеноструктурном анализе [1]. В дальнейшем эта проблема была подробно теоретически исследована в [2, 3], а в последние пять лет был проведен ряд экспериментальных исследований [4, 5] и данный подход получил даже экзотическое название – метод рентгеновской голографии. И хотя метод линий Косселя давно известен [6], до настоящего времени еще не полностью изучены основные физические явления, возникающие при выходе такого излучения из кристалла высокой степени совершенства. Как было показано в работе [7], при дифракции рентгеновского пучка в резко асимметричной схеме (см. рис.1) в кристалле на некоторой глубине формируется сильно сжатый рентгеновский пучок, распространяющийся параллельно поверхности кристалла, и степень сжатия может достигать нескольких сотен раз. Это предсказание нашло свое экспериментальное подтверждение при использовании метода стоячих рентгеновских волн с регистрацией фотоэлектронов [8, 9] с помощью специально разработанного газового пропорционального счетчика [10]. Естественно ожидать, что это явление должно сказаться и на распределении интенсивности излучения внутри линии Косселя. Как будет показано ниже, для данной схемы дифракции линии Косселя имеют совершенно другую структуру, и распределение интенсивности выходящего рентгеновского излучения имеет форму ярко выраженного пика, в сотни раз превышающего фоновую интенсивность.

Предельно асимметричная дифракция реализуется в так называемой схеме геометрии Брегг – Лауэ, когда дифрагированная волна распространяется почти параллельно поверхности кристалла, и небольшим

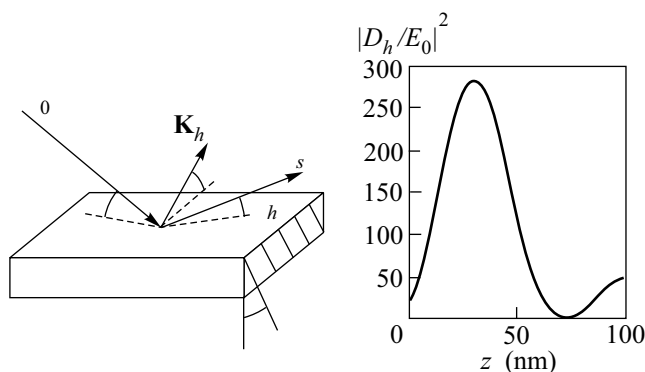


Рис.1. Схема дифракции в резко асимметричной геометрии Брегг – Лауэ и распределение квадрата модуля амплитуды дифрагированной волны по глубине кристалла Ge для (220)-отражения  $GeK_{\alpha}$  ( $\Psi = 30^\circ$ ,  $\varphi = 1128'$ ,  $\Delta\theta = 3.2''$ ).  $\Psi$  – угол между нормалью к поверхности и отражающими плоскостями

изменением угла падения начального рентгеновского пучка на кристалл можно изменить дифракцию пучка от геометрии Лауэ к геометрии Брегга (рис.1). Нахождение распределения волновых полей в кристалле в такой схеме дифракции требует учитывать наряду с дифракционным рассеянием и зеркальное отражение дифрагированной волны от поверхности кристалла. В этом случае волновые поля в кристалле определяются следующим выражением:

$$D(z) = \sum_{j=1,2} (D_0^{(j)} e^{ik_{0j}r} + D_h^{(j)} e^{ik_{hj}r}), \quad (1)$$

где волновые векторы падающей и дифрагированной волн в кристалле

$$\mathbf{k}_{0j} = \boldsymbol{\kappa}_0 + \frac{\kappa\chi_0}{2\varphi_0} \mathbf{n} + \kappa y_j \mathbf{n}, \quad (2)$$

$$\mathbf{k}_{hj} = \mathbf{k}_{0j} + \mathbf{K}_h \quad (3)$$

(здесь  $\mathbf{\kappa}_0$  – волновой вектор падающей волны в вакууме и  $\mathbf{K}_h$  – вектор обратной решетки) определяются корнями уравнения третьего порядка [7]:

$$y[(y + \eta_h)^2 - \tilde{\varphi}_h^2] - \delta_0^3 = 0, \quad (4)$$

где

$$\tilde{\varphi}_{0,h} = \sqrt{\varphi_{0,h}^2 + \chi_0}, \quad \eta_h = \tilde{\varphi}_0 - |\tilde{\Psi}|, \quad (5)$$

$$\delta_0 = \left( \frac{c^2 \chi_h \chi_{\bar{h}}}{2\varphi_0} \right)^{1/3},$$

$$\varphi_h^2 = (\tilde{\varphi}_0 - |\tilde{\Psi}|)^2 + 2 \sin(2\theta_B) \Delta\theta, \quad (6)$$

$|\tilde{\Psi}| = 2|\Psi| \sin \theta_B$  – эффективный угол разориентации,  $\theta_B$  – угол Брегга,  $\Delta\theta$  – отклонение от угла Брегга,  $\chi_h$  – фурье-компонента поляризуемости, соответствующая заданному отражению,  $c$  – поляризационный множитель. Дисперсионное уравнение (4) имеет три корня, два из которых, удовлетворяющих условию  $\text{Im}(y_{1,2} + \chi_0/2\varphi_0) > 0$ , определяют экстинкционные моды (1). Амплитуды полей  $D_0^{(j)}$  и  $D_h^{(j)}$  определяются выражениями:

$$D_h^{(1)} = \frac{\varphi_h + \eta_h + y_2}{y_2 - y_1} E_h^s,$$

$$D_h^{(2)} = -\frac{\varphi_h + \eta_h + y_1}{y_2 - y_1} E_h^s, \quad (7)$$

$$D_0^{(j)} = \frac{c\chi_{\bar{h}}}{2\varphi_0 y_j} D_h^{(j)},$$

где

$$E_h^s = \frac{c\chi_h}{y_3(\varphi_h - \eta_h - y_3)} E_0 \quad (8)$$

– амплитуда отраженной волны, и  $y_3$  – корень уравнения (4) с  $\text{Im}(y_3 + \chi_0/2\varphi_0) < 0$ .

Как видно из этих выражений, амплитуды  $D_h^{(j)}$  намного превосходят  $E_h^s$ , если корни дисперсионного уравнения (4) близки друг к другу. Если пренебречь поглощением, нетрудно найти точку вырождения при значениях

$$\eta_h = -\frac{3}{2}\delta_0 \text{ и } \varphi_h^2 = \varphi_c^2 - \frac{3}{4}\delta_0^2, \quad (9)$$

когда все три корня одинаковы:

$$y_{1,2,3} = \delta_0. \quad (10)$$

Для амплитуды поля дифрагированной волны внутри кристалла в этой точке можно получить:

$$D_h(z) = E_h^s + i \frac{c\chi_h}{\delta_0} \kappa z E_0, \quad (11)$$

то есть амплитуда поля  $D_h(z)$  неограниченно возрастает по глубине  $z$ .

Учет эффекта поглощения обрывает бесконечный рост амплитуды  $D_h(z)$ , и максимум сжатия дифрагированной волны реализуется на некоторой глубине

$$L_0 = \lambda/\pi a \delta_0, \quad (12)$$

где  $a = [\text{Im}(\chi_0)/\delta_0^2]^{1/3}$ ,  $\lambda$  – длина волны излучения. Для интенсивности поля излучения непосредственно внутри кристалла нетрудно получить:

$$I(z, \Delta\theta, \varphi_0) = \left| \sum_{j=1,2} (D_0^{(j)}(z) + D_h^{(j)}(z)) \exp \left[ i \left( y_j + \frac{\kappa\chi_0}{2\varphi_0} \right) z \right] \right|^2. \quad (13)$$

На рис.1 приведены результаты расчетов распределения интенсивности рентгеновских лучей в глубине кристалла для (220)-отражения характеристического  $\text{GeK}_\alpha$  излучения от кристалла германия и направления падающей волны, соответствующего “вырожденной” точке, которая определяется выражениями (9) и (10). Как видно из этого рисунка, имеет место почти 300-кратное сжатие падающего пучка на глубине порядка 30 нм. Это явление было экспериментально обнаружено с помощью метода стоячих рентгеновских волн на монокристалле Si, вырезанном под углом  $\psi = 8^\circ$  по отношению к направлению (111), и было достигнуто усиление выхода фотоэлектронов из кристалла Si для отражения (422) более чем в 20 раз [8]. Затем этот эффект был подтвержден в экспериментах на кристалле Ge, где выход фотоэлектронов в асимметричной схеме в условиях дифракции превышал более чем в 10 раз выход излучения для углов падения вдали от угла Брегга [9].

Распределение интенсивности рентгеновского излучения внутри линии Коссея от излучающего источника, расположенного в глубине кристалла, может также быть легко рассчитано на основе формул (1)–(8) и (13) с использованием принципа взаимности [11]. Распределение излучения от возбужденных атомов в кристалле внутри линии Коссея в соответствии с принципом взаимности определяется выражением

$$\bar{I}(\Delta\theta, \varphi) = \int_0^\infty I(z, \Delta\theta, \varphi) P(z) dz, \quad (14)$$

где  $P(z)$  – распределение излучающих атомов по глубине кристалла.

На рис.2 представлено распределение рентгеновского излучения  $\text{GeK}_\alpha$  внутри линии Коссея для

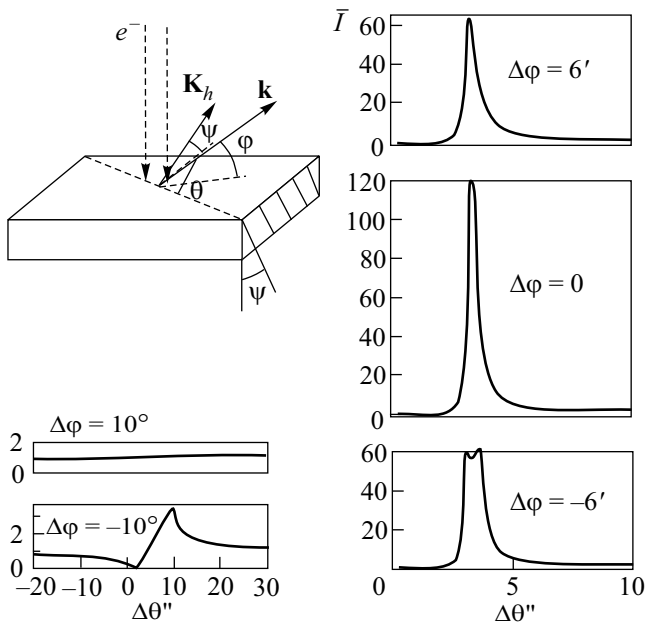


Рис.2. Схема дифракции Коссея в резко асимметричной схеме дифракции и распределение интенсивности рентгеновского излучения  $GeK_{\alpha}$  от кристалла Ge ( $\Psi = 30^\circ$ ) для (220)-отражения в окрестности “вырожденной” точки  $\varphi = 1128' + \Delta\varphi$  (справа) и вдали от нее (слева) в геометрии Брегга ( $\Delta\varphi = -10^\circ$ ) и Лауэ ( $\Delta\varphi = 10^\circ$ ). Масштаб кривых слева увеличен в 10 раз

кристалла Ge, вырезанного в направлении (110), и отражения (022) в предположении, что возбужденные излучающие атомы германия сконцентрированы вблизи поверхности с плотностью распределения экспоненциального вида

$$P(z) = e^{-z/L}, \quad (15)$$

где  $L$  – характерная глубина залегания возбужденных атомов, которая полагалась равной 50 нм. Как видно из этого рисунка, распределение интенсивности внутри линии Коссея имеет сильно выраженный пик с интенсивностью, более чем в 100 раз превышающую фоновую интенсивность. При этом расходимость по углу  $\theta$  составляет всего несколько угловых секунд, а по углу  $\varphi$  – десятки минут. Это как раз те параметры, которые достигаются при формировании узко коллимированного пучка с помощью многократных монохроматоров. Использование такого рода монохроматоров в качестве анализатора распределения излучения внутри линии Коссея позволит легко обнаружить предсказанный эффект.

Отметим, что в обычных схемах дифракции, симметричных или асимметричных с небольшой сте-

пенью асимметрии, в случае геометрии Брегга (см. рис.2,  $\Delta\varphi = -10^\circ$ ) наблюдаются относительно небольшие изменения интенсивности излучения, когда максимум распределения всего в несколько раз превосходит фоновую интенсивность. Этих вариаций вполне достаточно для того, чтобы зафиксировать на фотопластине чередование светлых и черных полос (эффект Коссея). В случае геометрии Лауэ (рис.2,  $\Delta\varphi = 10^\circ$ ) изменения интенсивности излучения внутри линии Коссея очень слабые, и такая геометрия обычно не используется.

При этом, естественно, остается решить вопрос о возбуждении атомов в узком слое вблизи поверхности. В случае возбуждения электронным пучком эта проблема решается путем понижения энергии падающих электронов. При возбуждении рентгеновским пучком эта задача решается путем уменьшения угла падения возбуждающего пучка на кристалл. В условиях, когда падающий пучок начинает испытывать зеркальное отражение, возбуждение атомов Ge, например, характеристическим излучением  $MoK_{\alpha}$  происходит на глубинах порядка 20 нм. Таким образом, экспериментальная реализация не представляется сверхтрудной задачей. Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект # 99-02-16665).

1. J. M. Cowley, Acta Crystallogr. **17**, 33 (1964).
2. J. P. Hannon, N. J. Carron, and G. T. Trammell, Phys. Rev. **B9**, 2810 (1974).
3. J. T. Hutton, G. T. Trammell, and J. P. Hannon, Phys. Rev. **B31**, 743 (1985).
4. T. Gog, P. M. Len, G. Materlik et al., Phys. Rev. Lett. **76**, 3132 (1996).
5. B. Adams, T. Hiort, E. Kossel et al., Phys. Stat. Sol. (b) **215**, 757 (1999).
6. W. Kossel, V. Loeck, and H. Voges, Z. Phys. **94**, 139 (1935).
7. A. M. Afanas'ev and A. V. Esayan, Phys. Stat. Sol. (a) **126**, 303 (1991).
8. А. М. Афанасьев, Р. М. Имамов, Э. Х. Мухамеджанов и др., ФТТ **32**, 650 (1990).
9. А. М. Афанасьев, Р. М. Имамов, Э. Х. Мухамеджанов, Кристаллография **40**, 567 (1995).
10. N. Hertel, M. V. Kovalchuk, A. M. Afanas'ev, and R. M. Imamov, Physics Lett. **75A**, 501 (1980).
11. M. von Laue, Roentgenstrahl-interferenzen, Academische Verlagsgesellschaft, Frankfurt, West Germany, 1960.