

УДК 548.0.532.783

КОН В. Г.

ПОЛНОЕ ОТРАЖЕНИЕ РЕНТГЕНОВСКИХ ЛУЧЕЙ В ЗАПРЕЩЕННЫЙ РЕФЛЕКС ПРИ МНОВОВОЛНОВОЙ ДИФРАКЦИИ В СХЕМЕ РЕНИНГЕРА

Теоретически показана возможность существования нового эффекта — полного дифракционного отражения рентгеновских лучей в запрещенный рефлекс без возбуждения других рефлексов. Эффект имеет место при падении параллельного пучка под углом Брэгга для запрещенного рефлекса и вблизи направления, соответствующего многоволновой дифракции рентгеновских лучей (схема Ренингера). Дано качественное объяснение всех особенностей непрямого возбуждения запрещенного рефлекса, в частности, выделены два различных механизма: амплитудный и резонансный. Проведен расчет коэффициентов отражения в конкретном случае (222, 113) дифракции AgK_{α} -излучения в Si.

1. Введение

В центросимметричных кристаллах с двумя и более атомами в элементарной ячейке, как известно, существуют векторы обратной решетки, которым соответствует нулевой структурный фактор (запрещенные рефлексы), в то время как структурные факторы для суммы или разности таких векторов могут быть отличны от нуля. Интенсивность отраженного пучка при двухволновой дифракции на соответствующем семействе плоскостей, естественно, равна нулю. Она становится отличной от нуля, если одновременно реализуются условия дифракции на другой или других системах плоскостей с не равным нулю структурным фактором, т. е. условия многоволновой дифракции.

Впервые эффект непрямого (окольного) возбуждения запрещенного рефлекса наблюдал Ренингер [1, 2] в экспериментальной схеме, в которой запрещенный рефлекс соответствует симметричной геометрии дифракции по Брэггу, т. е. вектор обратной решетки перпендикулярен поверхности кристалла. В этом случае легко реализовать условия многоволновой дифракции простым вращением кристалла в плоскости его поверхности, меняя при этом так называемый азимутальный угол φ . Вертикальный угол θ сохраняет свое значение, равное θ_B , и может изменяться лишь в малых пределах порядка угловой ширины области полного дифракционного отражения рентгеновских лучей. На практике со времен Ренингера и до сих пор меряется интегральная по углу θ интенсивность и исследуется ее зависимость от азимутального угла φ .

Такая схема эксперимента использовалась во многих работах, в частности, для прецизионного измерения параметра кристаллической решетки [3], прямого определения фазы структурного фактора [4–6]. В серии работ [4–6] экспериментально обнаружено интересное свойство непрямого возбуждения запрещенного рефлекса, состоящее в том, что многоволновые эффекты проявляются, хотя и в слабой форме, на очень большом угловом расстоянии порядка градусов от точного значения азимутального угла, соответствующего строгой многоволновой дифракции. При этом разрешенные рефлексы имеют практически нулевую интенсивность в указанной области углов. По этой причине авторы [4–6] назвали обнаруженный ими эффект виртуальным брэгговским рассеянием.

В настоящей работе впервые теоретически показано существование еще более интересного, на наш взгляд, свойства виртуального брэгговско-

го рассеяния — возможности осуществить полное дифракционное отражение рентгеновского пучка в запрещенный рефлекс. При этом разрешенные рефлексы практически не возбуждаются, но ширина области полного отражения зависит от величины и фазы структурных факторов этих рефлексов. Для экспериментального наблюдения эффекта необходима коллимация падающего пучка как по углу φ , так и по углу θ . Заметим, что эта проблема аналогична проблеме коллимации излучения при реализации брэгговской дифракции в условиях полного внешнего отражения [7, 8]. Эффективно решить ее с сохранением достаточно интенсивного полезного сигнала можно лишь с помощью высокоинтенсивных рентгеновских источников. При использовании синхротронного излучения указанной проблемы практически не существует.

В следующем разделе дана качественная теория эффекта полного отражения рентгеновского пучка в запрещенный рефлекс. В третьем разделе обсуждаются результаты численных расчетов для конкретного случая (222, 113) дифракции $Ag K_{\alpha}$ -излучения в монокристалле Si.

2. Теория

Общая теория многоволновой дифракции плоской рентгеновской волны в геометрии Брэгга развита достаточно хорошо [9–11]. Ниже приведем основные формулы теории, которые использовались при численных расчетах (см. раздел 3) и понадобятся в дальнейшем анализе. Коэффициенты отражения пучков, выходящих из входной поверхности толстой кристаллической пластины (брэгг-пучки), можно представить в виде

$$R_m^{(s)}(\theta, \varphi) = \sum_{s'} \left| \sum_j B_{ms'}(j) \lambda_s(j) \right|^2, \quad (1)$$

где индекс m нумерует отраженные пучки, индексы s и s' указывают состояние поляризации (σ или π), индекс j нумерует зоны дисперсионной поверхности. Сумма в (1) проводится лишь по тем значениям j , которым соответствует положительный коэффициент поглощения $\mu_j = \epsilon_{ij}$. Амплитуды волновых полей $B_{ms}(j)$ и комплексные параметры ϵ_j находятся из решения задачи на собственные значения

$$\sum_{ns'} G_{mn}^{ss'} B_{ns'}(j) = \epsilon_j B_{ms}(j), \quad (2)$$

где матрица рассеяния \hat{G} имеет следующий вид:

$$G_{mn}^{ss'}(\theta, \varphi) = \frac{2\pi}{\lambda(\gamma_m)^{1/2}(\gamma_n)^{1/2}} \chi_{mn}(\mathbf{e}_{ms}\mathbf{e}_{ns'}) - \alpha_m(\theta, \varphi) \delta_{mn}^{ss'}. \quad (3)$$

Здесь \mathbf{e}_{ms} — единичные поляризационные векторы, λ — длина волны излучения, γ_m — косинус угла между направлениями падающего ($m=0$) и m -го дифрагированного пучка (для брэгг-пучков $\gamma_m < 0$), χ_{mn} — фурье-компонента комплексной поляризуемости кристалла на векторе обратной решетки $\mathbf{h}_m - \mathbf{h}_n$, $\delta_{mn}^{ss'}$ — символ Кронекера,

$$\alpha_m(\theta, \varphi) = \frac{2}{\gamma_m} ((\mathbf{h}_m \mathbf{e}_1) \Delta\theta + (\mathbf{h}_m \mathbf{e}_2) \Delta\varphi). \quad (4)$$

В формуле (4) величины $\Delta\theta$ и $\Delta\varphi$ указывают угловое отклонение падающего пучка от точного многоволнового направления, т. е. $\Delta\theta = \theta - \theta_0$, $\Delta\varphi = \varphi - \varphi_0$. Единичные векторы \mathbf{e}_1 и \mathbf{e}_2 перпендикулярны направлению падающего пучка, причем \mathbf{e}_1 лежит в плоскости рассеяния для запрещенного рефлекса, а \mathbf{e}_2 перпендикулярен ей. Параметры $\lambda_s(j)$ определяют степень возбуждения соответствующей зоны дисперсионной поверхности. Как уже отмечалось, в толстом кристалле $\lambda_s(j) = 0$ для значений j , при которых $\mu_j < 0$. Остальные параметры находятся из решения линейной

системы уравнений

$$\sum_j B_{ms'}(j) \lambda_s(j) = \delta_{m0}^{s's}, \quad (5)$$

где индекс m соответствует только лауэ-пучкам.

Ситуация резко упрощается, когда все дифрагированные пучки отражаются по Брэггу. В этом случае в сумме по j в (4) остается лишь два члена, а $\lambda_s(j) = 1/B_{0s}(j)$. Формулы (4)–(5) представляют собой физически ясный и математически простой алгоритм расчета коэффициентов отражения дифрагированных пучков в геометрии Брэгга в условиях многоволновой дифракции. С их помощью можно получить угловую зависимость коэффициентов отражения во всех практически важных случаях.

Перейдем к качественному анализу эффекта полного отражения (ПО) падающего пучка в запрещенный рефлекс. Пусть этому рефлексу соответствует значение $m=1$. Рассмотрим для простоты дифракцию достаточно жесткого излучения, когда углы Брэгга для всех рефлексов малы. Как будет видно дальше, этот случай наиболее интересен. При этом векторы e_{ms} можно выбрать таким образом, что все векторы e_{m0} будут почти перпендикулярны e_{m1} , т. е. матрица $G_{mn}^{ss'} \approx G_{mn} \delta^{ss'}$ и поляризационные эффекты проявляются слабо. Поэтому далее индекс s будем опускать. Из системы уравнений (2) для амплитуды запрещенного рефлекса B_1 имеем выражение

$$B_1 = \frac{1}{(\epsilon - G_{11})} \sum_{m \neq 0,1} G_{1m} B_m. \quad (6)$$

Здесь в сумме по m отсутствует член с $m=0$, соответствующий падающему пучку, так как по определению $G_{10}=0$.

Согласно (6), амплитуда дифрагированной в запрещенный рефлекс волны может возрастать по двум причинам. Во-первых, с ростом амплитуды других дифрагированных волн B_m при последующем их перерасеянии в запрещенную волну, если $G_{1m} \neq 0$. Этот механизм будем называть амплитудным возбуждением запрещенной волны. Он реализуется в угловых областях, где имеет место сильное рассеяние падающей волны. B_0 в разрешенные волны B_m . Если m -й пучок отражается по Брэггу, то это будут области двухволнового ПО для этих рефлексов. Коэффициент отражения в запрещенный рефлекс в этих угловых областях, как правило, невелик, за исключением углов падения, при которых строго выполняются условия многоволновой дифракции, где он может достигать величины порядка 50%.

Второй причиной является близость знаменателя $(\epsilon - G_{11})$ к нулю в правой части (6). Этот механизм можно назвать резонансным возбуждением запрещенной волны. Легко понять, что теперь амплитуда B_1 может иметь максимально возможное значение при сколь угодно малых значениях амплитуд B_m . Именно этот механизм ответствен за виртуальное брэгговское рассеяние [4–6]. Рассмотрим эту ситуацию более подробно. Предположим, что все амплитуды B_m намного меньше амплитуд B_0 и B_1 и найдем их по теории возмущений из системы (2)

$$B_m = \frac{G_{m0} B_0 + G_{m1} B_1}{(\epsilon - G_{mm}(\varphi))}. \quad (7)$$

Подставляя затем это выражение в уравнения для B_0 и B_1 получаем

$$\begin{aligned} g_{00} B_0 + g_{01} B_1 &= \epsilon B_0, \\ g_{10} B_0 + g_{11} B_1 &= \epsilon B_1. \end{aligned} \quad (8)$$

Система уравнений (8) фактически описывает двухволновую дифракцию с отражением пучка в запрещенный рефлекс.

В отличие от обычного двухволнового случая матрица этой системы

зависит от структурных факторов других рефлексов $g_{kl} = G_{kl} + \Delta g_{kl}$, где

$$\Delta g_{kl} = \sum_{m \neq 0,1} \frac{G_{km} G_{ml}}{(\varepsilon - G_{mm}(\varphi))}. \quad (9)$$

Здесь индексы k, l принимают значения 0 и 1. Уравнения (8), (9) справедливы при малых значениях углового отклонения $\Delta\theta$ и больших значениях отклонения $\Delta\varphi$ азимутального угла от его многоволнового значения. Поэтому в правой части (9) $(\varepsilon - G_{mm})$ можно приближенно заменить на $\alpha_m(\Delta\varphi) \approx C_m \Delta\varphi$. Формулы типа (8), (9) в более общем случае (с учетом поляризационных множителей) были получены ранее в [12], как метод приближенного решения системы уравнений (2).

Из условия существования ненулевого решения системы (8) находим

$$\varepsilon = g_{00} + (-g_{01}g_{10})^{1/2}(-y \pm \sqrt{y^2 - 1}), \quad (10)$$

где

$$y = \frac{g_{00} - g_{11}}{2(-g_{01}g_{10})^{1/2}} = \frac{\Delta\theta \sin 2\theta_B - X_0}{X_1}, \quad (11)$$

$$X_0 = -\chi_0 - K/2(\Delta g_{00} - \Delta g_{11}) \approx -(\chi_0 + D_0/\Delta\varphi), \quad (12)$$

$$X_1 = K(-g_{01}g_{10})^{1/2} \approx D_1/|\Delta\varphi|, \quad K = \lambda\gamma_0/2\pi.$$

В слабопоглощающем кристалле, как известно, угловая область ПО определяется условием $|y| < 1$. Согласно (12), в нашем случае ширина этой области при движении вдоль двухволновой полосы убывает обратно пропорционально отклонению азимутального угла от многоволновой точки, т. е. крайне слабо по сравнению с уменьшением коэффициентов отражения сильных рефлексов, которые убывают обратно пропорционально второй степени $\Delta\varphi$. Этим и объясняется факт, что интегральная интенсивность запрещенного рефлекса по $\Delta\theta$ значительно превышает интенсивность разрешенных пучков в этой же угловой области с ростом $\Delta\varphi$, т. е. виртуальное брэгговское рассеяние.

Для правильной оценки величины максимума коэффициента отражения в области ПО необходимо принять во внимание поглощение рентгеновских лучей на длине экстинкции L_{ex} , вследствие которого значительная часть интенсивности может поглотиться обычным образом и отражение будет неполным. С учетом centrosимметричности кристалла и используя известные формулы (см., например, [11]), имеем для угловой зависимости коэффициента отражения выражение

$$\left| \frac{B_1}{B_0} \right|^2 = |-y + \sqrt{y^2 - 1}|^2 = L - \sqrt{L^2 - 1}, \quad (13)$$

где $L = |y|^2 + |y^2 - 1|$, $y = y_r + iy_i$. Максимальное значение отражения получаем при $y_r = 0$. В этой точке $L = 1 + 2s^2$, где $s = y_{i \max} = -X_{0i}/X_{1r}$.

При больших значениях $|\Delta\varphi|$, пренебрегая мнимой частью величин Δg_{00} и Δg_{11} по сравнению с χ_{10} , параметр s можно представить в виде $s = \mu_0 L_{ex}/2\gamma_0$, где $\mu_0 = 2\pi\chi_{10}/\lambda$ есть коэффициент поглощения рентгеновских лучей, $L_{ex} = 2/\text{Re}(-g_{01}g_{10})^{1/2}$. Таким образом, он непосредственно описывает степень поглощения рентгеновских лучей на длине экстинкции. Своеобразие рассматриваемого случая состоит в том, что величина s может стать сколь угодно большой с ростом $|\Delta\varphi|$, так как она прямо пропорциональна $|\Delta\varphi|$ при больших значениях $|\Delta\varphi|$. Поэтому ПО в запрещенный рефлекс реализуется в конечной области отклонений по азимутальному углу $\Delta\varphi$. Выражение (13) равно 0,5 уже при $L = 1,25$, что соответствует $s = 0,35$.

С учетом поглощения рентгеновских лучей интегральная по $\Delta\theta$ интенсивность отраженного в запрещенной рефлекс пучка убывает с ростом $|\Delta\varphi|$ быстрее, чем $|\Delta\varphi|^{-1}$. Конкретный расчет интегральной интенсивности легко выполнить с помощью аналитических формул, полученных в [13] (см. также [11]). Заметим также, что развитый выше подход позволяет оценить ход зависимости интегральной интенсивности от азиму-

тального угла и в более сложном случае, когда структурный фактор для запрещенного рефлекса, а следовательно, и поляризуемость $\chi_{01} \equiv \chi_h$ не равны нулю, хотя и очень малы, причем без привлечения сложных численных расчетов, как это было сделано, по-видимому, в работах [4–6]. В этом случае параметр $X_1 = (\chi_h + D_1/\Delta\varphi)^{1/2}$ и многоволновые поправки к интегральной интенсивности двухволнового фона оказываются асимметричными по отношению к знаку $\Delta\varphi$. Эта асимметрия и лежит в основе метода прямого определения фазы структурного фактора запрещенного рефлекса, развитого в [4–6].

3. Анализ конкретного случая отражения (222) AgK α -излучения в Si

С целью иллюстрации изложенной в предыдущем разделе теории на рисунке, *a, б* представлены результаты численного расчета коэффициентов отражения дифрагированных по Брэггу пучков в случае трехволновой (222, 113) дифракции AgK α -излучения ($\lambda = 0,0559$ нм) в Si. Расчет проводился на ЭВМ по общей схеме (1)–(5). Углы измеряются в единицах 10^{-5} рад ($\approx 2''$). Угол $\Delta\theta$ отсчитывается от кинематического угла Брэгга. При этом двухволновая полоса рефлекса (222) оказывается сдвинутой на величину $(-\chi_{r0}/\sin 2\theta_B) = 0,561 \cdot 10^{-5}$.

На рисунке, *a* видны все особенности эффекта возбуждения запрещенной волны. При значениях $\Delta\varphi \neq 0$ хорошо различаются два пика, связанные с различными механизмами возбуждения: амплитудным и резонансным. При $\Delta\varphi = 0$ оба механизма дают одинаковый вклад и $\Delta\theta$ – зависимость запрещенного отражения оказывается симметричной. Отметим, что в области резонансного возбуждения запрещенной волны одновременно снова возбуждается разрешенная волна по амплитудному механизму, т. е. рассеиваясь не из прямой волны, а через запрещенный рефлекс.

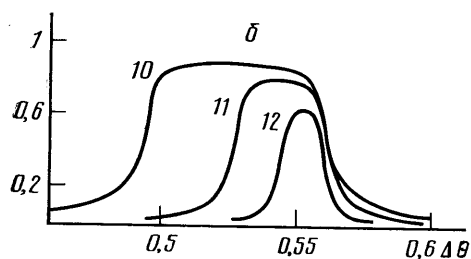
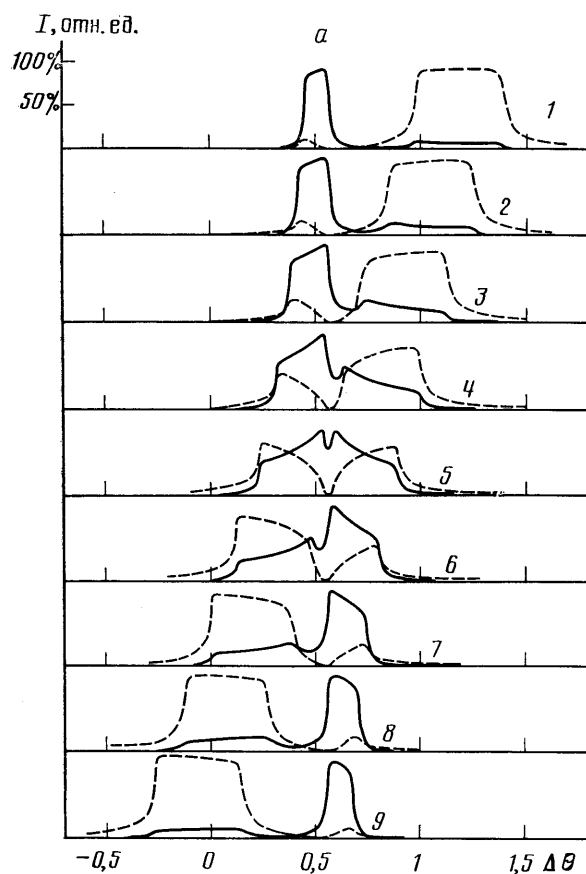
Как следует из рисунка, *б* в рассматриваемом случае эффект ПО (до 90%) в запрещенный рефлекс без возбуждения других рефлексов во всей угловой области ПО реализуется при $|\Delta\varphi| \geq 2$. При $|\Delta\varphi| > 4$ начинается заметное снижение максимума отражения из-за поглощения рентгеновских лучей на длине экстинкции. Именно по этой причине для анализа выбран случай с предельно низким поглощением ($\mu_0 = 7,3$ см $^{-1}$). С ростом коэффициента поглощения снижение максимума отражения происходит при еще меньших значениях $|\Delta\varphi|$ и эффект ПО в указанном смысле может вообще не иметь места.

Интересной особенностью угловой зависимости отражения в разрешенный рефлекс (113) является его резкое снижение практически до нуля в точке $\Delta\theta = -\chi_{r0}/\sin 2\theta_B$ независимо от значения азимутального угла $\Delta\varphi$. При $\Delta\varphi = 0$ эта особенность приводит к возникновению глубокого провала на кривой коэффициента отражения в области ПО. Эта особенность является спецификой лишь трехволнового случая дифракции. Математически она связана с тем обстоятельством, что задача

$$\begin{pmatrix} G_{00} & 0 & G_{02} \\ 0 & G_{11} & G_{12} \\ G_{20} & G_{21} & G_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} B_0 \\ B_1 \\ B_2 \end{pmatrix} = \varepsilon \begin{pmatrix} B_0 \\ B_1 \\ B_2 \end{pmatrix} \quad (14)$$

при $G_{11} = G_{00}$ имеет решение: $\varepsilon = G_{00}$, $B_2 = 0$, $B_1 = B_0 G_{20}/G_{21}$. Так как угол $\Delta\varphi$ входит лишь в матричный элемент G_{22} , то это решение не зависит от $\Delta\varphi$. В нашем случае в точке $\Delta\theta = -\chi_{r0}/\sin 2\theta_B$ равенство $G_{00} = G_{11}$ выполняется лишь для действительных частей матричных элементов, а их мнимые части различаются. Поэтому амплитуда B_2 не строго равна нулю, но уменьшается в меру отношения $\chi_{i0}/|\chi_{r0}|$ (в несколько десятков раз).

Как следует из результатов предыдущего раздела, дополнительные разрешенные волны могут отражаться как по Брэггу, так и по Лауэ. Интересно, что характер отражения в запрещенный рефлекс при этом не меняется не только качественно, но в некоторых случаях и количественно. Так, например, строгий численный расчет для случая (222, 113) приводит к точно такому же результату, как на рисунке, для коэффициента отра-



Угловая зависимость интенсивности запрещенного (222) (сплошные линии) и разрешенного (113) рефлексов (штриховые) в случае трехволновой (222, 113) дифракции $\text{AgK}\alpha$ -излучения в кристалле Si при $\Delta\varphi = -1$ до 1 (а) и $\Delta\varphi = 2, 4, 8$ (б)

а — $\Delta\varphi = 1$ (1), 0,75 (2), 0,5 (3), 0,25 (4), 0 (5), -0,25 (6), -0,5 (7), -0,75 (8), -1 (9); б — $\Delta\varphi = 2$ (10), 4 (11), 8 (12). Значения углов приведены в единицах 10^{-6} рад

жения в запрещенный рефлекс (222), хотя схемы расчета в этих двух случаях существенно различаются. В частности, во втором случае возбуждаются четыре зоны дисперсионной поверхности вместо двух в первом случае. Тем не менее этот результат удивления не вызывает, так как он является частным проявлением общего принципа взаимности. Более подробно об этом можно найти в книге Пинскера [11, с. 375].

Что касается зависимости от $\Delta\varphi$ полуинтегральной интенсивности запрещенного рефлекса, проинтегрированной по углу $\Delta\theta$, то она в рассмотренных численно случаях имеет обычный вид пика Ренингера с максимумом при $\Delta\varphi = 0$. Это непосредственно видно на рисунке. При значениях $\Delta\varphi$, которым соответствует эффект ПО, уменьшение полуинтегральной интенсивности с ростом $|\Delta\varphi|$ происходит по закону $|\Delta\varphi|^{-1}$ и обусловлено уменьшением угловой ширины области ПО.

В заключение отметим, что рассмотренный в данной работе эффект может быть использован для коллимации рентгеновских пучков по вертикальному углу $\Delta\theta$, причем степень параллельности пучка можно легко изменять выбором соответствующего диапазона значений азимутального угла. Такой метод может стать особенно эффективным при использовании синхротронного излучения.

Литература

1. *Renninger M.* // Z. Krist. 1937. B. 97. N 1/2. S. 107.
2. *Renninger M.* // Acta cryst. 1955. V. 8. N 10. P. 606.
3. *Hom T., Kiszewick W., Post B.* // J. Appl. Cryst. 1975. V. 8. N 4. P. 457.
4. *Chapmann L. D., Yoder D. R., Colella R.* // Phys. Rev. Lett. 1981. V. 46. N 24. P. 1578.
5. *Colella R.* // Z. Naturforsch. a. 1982. B. 37. N 5. S. 437.
6. *Schmidt M. C., Colella R.* // Phys. Rev. Lett. 1985. V. 55. N 7. P. 715.
7. *Marra W. C., Eisenberger P., Cho A. Y.* // J. Appl. Phys. 1979. V. 50. N 11. Pt. 1. P. 6927.
8. *Андреева М. А., Борусова С. Ф., Степанов С. А.* // Поверхность. 1985. № 4. С. 5.
9. *Colella R.* // Acta cryst. A. 1974. V. 30. N 3. P. 413.
10. *Kohn V. G.* // Phys. status solidi a. 1979. V. 54. N 1. P. 375.
11. *Пинскер З. Г.* Рентгеновская кристаллооптика. М.: Наука, 1982. 390 с.
12. *Hoier R., Martinsen K.* // Acta cryst. A. 1983. V. 39. N 6. P. 854.
13. *Afanasev A. M., Perstnev I. P.* // Acta cryst. A. 1969. V. 25. N 4. P. 520.

Институт атомной энергии
им. И. В. Курчатова

Поступила в редакцию
26.V.1986