КРИСТАЛЛОГРАФИЯ, 2006, том 51, № 5, с. 1–6

ДИФРАКЦИЯ И РАССЕЯНИЕ ИОНИЗИРУЮЩИХ ИЗЛУЧЕНИЙ

УДК 548.73

Посвящена 65-летию проф. Г. Фюсса

ДИНАМИЧЕСКОЕ ИЗМЕНЕНИЕ ПАРАМЕТРА РЕШЕТКИ КРИСТАЛЛА С ПОМОЩЬЮ УЛЬТРАЗВУКА В РЕНТГЕНОДИФРАКЦИОННЫХ ЭКСПЕРИМЕНТАХ

© 2006 г. А. Е. Благов[1, *], М. В. Ковальчук[1, 2], В. Г. Кон[2], Ю. В. Писаревский[1]

[1] *Институт кристаллографии РАН, Москва*

[2] *Российский научный центр "Курчатовский Институт", Москва*

* *e-mail: aopt@ns.crys.ras.ru*

Исследуется дифракция рентгеновских лучей в геометрии Лауэ в монокристаллах германия и кремния в случае воздействия на них длинноволновой ультразвуковой упругой деформации, распространяющейся вдоль поверхности образца. Рентгеновский пучок ограничен щелью размером 0.2 мм, много меньшим длины волны ультразвука, что позволяет выделить на кристалле участки с почти однородной деформацией. Соответственно измеренные стробоскопически в разные моменты времени кривые угловой зависимости отраженной интенсивности в двухкристальной бездисперсионной схеме, почти совпадают с кривыми дифракционного отражения для совершенного кристалла с изменяющимся во времени периодом решетки. При этом интегральные по времени эти кривые оказываются уширенными при сохранении интегральной интенсивности. Обсуждаются возможные применения развитого метода.

PACS: 61.10.Nz

ВВЕДЕНИЕ

Дифракция рентгеновских лучей в монокристаллах при воздействии на них ультразвуковой упругой деформации позволяет определять изменение параметра кристаллической решетки за счет деформации в разных участках кристалла. В течение последних нескольких десятков лет было опубликовано большое число работ, посвященных изучению различных аспектов этой проблемы. Одно из направлений исследований связано с возможностью получения информации о самих упругих колебаниях в монокристалле, что является важным для физической акустики, и, кроме того, может быть использовано для контроля качества различных устройств пьезотехники и акустоэлектроники. Другим направлением является поиск новых эффектов и фундаментальных особенностей рентгеноакустического взаимодействия в монокристаллах. В частности, в геометрии Лауэ с помощью ультразвука, распространяющегося по нормали к поверхности кристалла, были обнаружен эффект подавления аномального прохождения (явление Бормана) резонансным образом при длине волны ультразвука, равной длине экстинкции [1], а также эффект переброски всего рентгеновского пучка из направления прохождения в направление отражения [2] при длине волны ультразвука, в два раза превышающей толщину кристалла.

В случае дифракции в геометрии Брэгга, как правило, возбуждаются поверхностные акустические волны, причем в области засветки кристалла пучком укладывается большое число длин волн (см., например [3] и ссылки в ней). В этих условиях в кристалле образуется сверхрешетка, приводящая к возникновению дополнительных максимумов отражения рентгеновского пучка (сателлитов) и уменьшающая отражение в основной максимум, что может быть использовано в качестве электронного аналога механического прерывателя пучка. Другими применениями являются уширение кривой дифракционного отражения и использование стробоскопической техники при возбуждении ультразвука по нормали к поверхности (см., например, [4] и ссылки в ней).

Недавно нами был изучен новый случай [5], а именно, дифракция рентгеновских лучей в геометрии Лауэ в условиях возбуждения в монокристалле германия длинноволновой ультразвуковой волны вдоль поверхности образца. Падающий пучок был ограничен щелью с размером, намного меньшим длины волны ультразвуковой деформации. Оказалось, что деформация в кристалле имела все же достаточно резкий характер за счет паразитных колебаний. При этом был обнаружен эффект компенсации статической и динамической деформаций в области склейки образца с источником ультразвуковых колебаний.

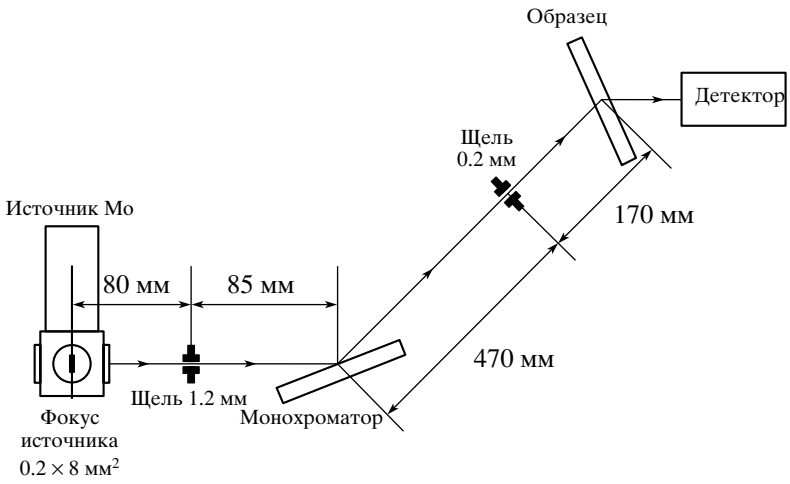

Рис. 1. Рентгенооптическая схема эксперимента.

В данной работе эксперименты выполнены в кристаллах германия и кремния в случае, когда на ширине пучка деформация кристалла оказывается практически однородной в одних участках вдоль поверхности кристалла или имеет очень слабый градиент в других участках.

1. СХЕМА ЭКСПЕРИМЕНТА

Схема экспериментальной установки, собранной на базе рентгеновского спектрометра ТРС-1 [6], показана на рис. 1. Использовалась двухкристальная бездисперсионная схема дифракции. Монохроматор и исследуемый образец представляли собой пластины с ориентацией поверхности [110] и $[1\bar{1}1]$. В экспериментах использовались кристаллы германия и кремния. Как в монохроматоре, так и в образце реализовалась симметричная дифракция (220), но монохроматор был установлен в геометрии Брэгга, в то время как образец – в геометрии Лауэ. Использовалась рентгеновская трубка с молибденовым анодом и размером фокуса 0.2×8 мм^2. Перед образцом на пути пучка устанавливалась щель размером 0.2 мм, которая выделяла спектральную линию $MoK_{\alpha 1}$. Интегральная по пространству интенсивность дифрагированного пучка измерялась сцинтилляционным детектором (**БДС**).

Ультразвуковые колебания в исследуемом кристалле (**ИК**) возбуждались с помощью кристалла-пьезопреобразователя (**КП**), в котором продольные колебания по длине пластины создавались электромагнитным сигналом, подаваемым от высокочастотного генератора на их боковые поверхности, покрытые с помощью катодного напыления проводящим слоем платины. КП изготавливались из кристаллического кварца (XYtwl, –18.5°/0°/0°)-среза. КП и ИК приклеивались друг к другу торцами и представляли собой сложный составной резонатор. Для обеспечения чистоты и добротности колебаний ширина пластин ИК и КП была в несколько раз меньше их длины, а торцы пластин полировались.

Условием возникновения механического резонанса в системе КП–ИК является совпадение их резонансных частот. В такой системе возникают высокодобротные колебания, и формируется объёмная продольная стоячая волна. При этом на каждой пластине укладывается половина длины основной упругой волны с максимумом деформаций в центре ИК и узлами на границах. Длина ИК во много раз превышала размер области засветки кристалла рентгеновским пучком, а длина КП выбиралась таким образом, чтобы собственные частоты колебаний ИК и КП совпадали. Расчетная собственная частота ИК составила 126.5 кГц, на эту частоту и настраивался КП. Ввиду резкой зависимости амплитуды от частоты колебаний использовался высокостабильный генератор сигналов, а настройка на резонанс контролировалась с помощью специального высокочастотного вольтметра.

Система генерации ультразвука была дополнена электронной схемой, позволяющей проводить стробоскопические измерения. Импульсный генератор создавал импульсы с регулируемым сдвигом по фазе колебаний КП (ошибка установки не более 10%). Схема совпадения для каждого импульса разрешала счет дифрагированных фотонов. Временной интервал счета составлял одну десятую периода колебаний КП, что позволяло регистрировать дифрагированный пучок в условиях квазистатической деформации, соответствующей определенной фазе колебаний ИК.

2. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

Германий. Исследуемый кристалл германия имел размеры $19.5 \times 10 \times 0.4$ мм^3 по осям x, y, z соответственно. Звук распространялся вдоль оси x, а толщина t кристалла (по оси z) соответствовала реализации эффекта Бормана с фактором поглощения $\mu t \approx 12$ (μ – линейный коэффициент поглощения). Измерялись кривые угловой зависимости интенсивности при малом вращении ИК относительно точного брэгговского положения, задаваемого кристаллом-монохроматором. На рис. 2 показаны КДО, измеренные в интегральном по времени режиме при различных мощностях ультразвука в области кристалла с почти однородной деформацией на ширине пучка. ИК имел высокое качество, на что указывает полуширина КДО в отсутствие ультразвука, равная 6 угл. с., что близко к теоретическому значению для совершенного кристалла. Ошибки в измерении угла и интенсивности были менее 0.5% и 1% соответственно.

С ростом амплитуды колебаний (мощности ультразвука) кривых дифракционного отражения КДО уширяется почти симметричным образом, однако площадь под кривой остается постоянной в пределах точности измерений. Таким образом, общее число отраженных фотонов не меняется, но они распределяются в более широком угловом интервале. Это соответствует ситуации, когда в разные моменты времени рассеяние происходит некогерентно на кристаллической решетке с изменяющимся во времени параметром и соответственно углом Брэгга. Уменьшение интенсивности при уширении КДО связано с тем, что кристалл проводит меньшее время в каждом состоянии деформации.

На рис. 3 показаны КДО, измеренные при различных значениях фазы колебаний φ с помощью стробоскопической техники, описанной выше. Видно, что КДО, соответствующие фазам $\varphi = -\pi/2$ и $\pi/2$, сдвинуты относительно центральной кривой на –20 и +20 угл. с. соответственно. Это означает, что в соответствующие моменты времени параметр кристаллической решетки изменился на ширине области засветки кристалла почти однородно. Тем не менее, слабая неоднородность деформации все же имела место, так как кривые несколько уширены и имеют слегка асимметричную форму.

Кремний. Исследуемый кристалл кремния имел размеры $30 \times 10 \times 0.9$ мм^3 по осям x, y, z соответственно. Звук распространялся вдоль оси x, а толщина t кристалла (по оси z) хотя и была больше, чем у германия, но все же не соответствовала реализации эффекта Бормана ($\mu t \approx 1.5$). В данном случае колебания имели характер, близкий к расчетному, при котором на длину образца укладывается половина длины стоячей волны. В этом можно убедиться, измеряя полуширину θ_0 кривой дифракционного отражения в интегральном по времени режиме в различных участках ИК, двигая кристалл относительно щели, ограничивающей пучок. Зависимость полуширины КДО от положения щели показана на рис. 4. Видно, что хотя паразитная коротковолновая гармоника все же присутствует, ее амплитуда меньше, чем у основной гармоники.

Соответственно на кристалле можно выделить три различных участка с номерами 1, 2 и 3, в которых деформация либо слабо и линейно меня-

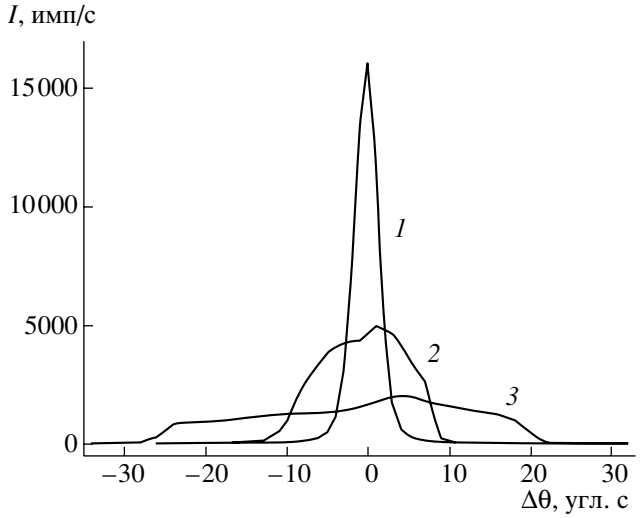

Рис. 2. Кривые дифракционного отражения в интегральном во времени измерении для Ge (220) при различных мощностях ультразвука: *1* – без звука, *2* – 40% максимальной мощности, *3* – максимальная мощность (0.1 Вт).

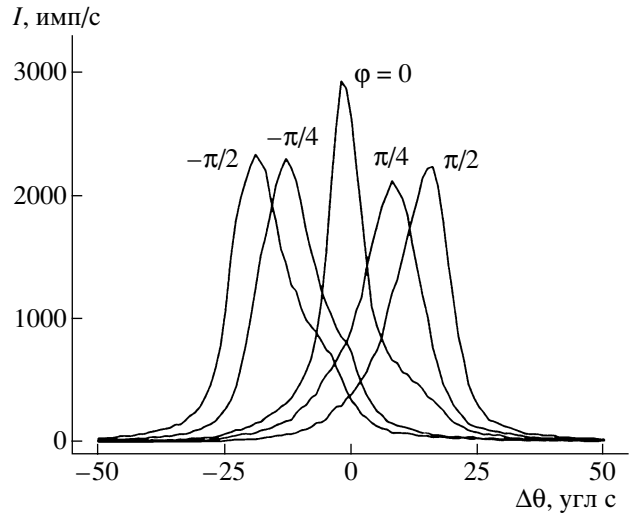

Рис. 3. Кривые дифракционного отражения Ge (220), измеренные стробоскопически при различных значениях фазы φ колебаний резонатора.

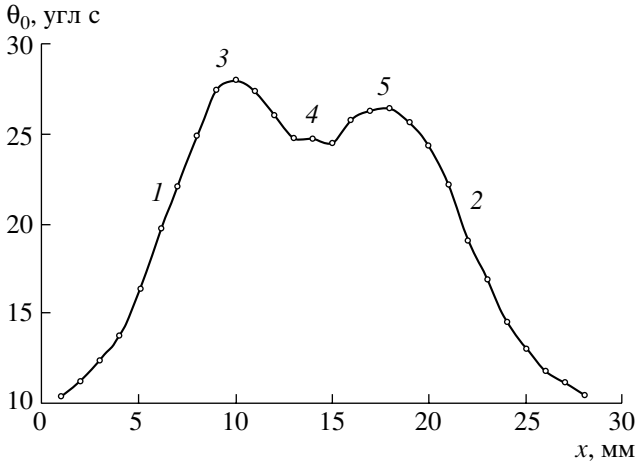

Рис. 4. Зависимость полуширины (θ_0) кривых дифракционного отражения Si (220) в интегральном по времени измерении от координаты центра щели, ограничивающей пучок, вдоль поверхности образца.

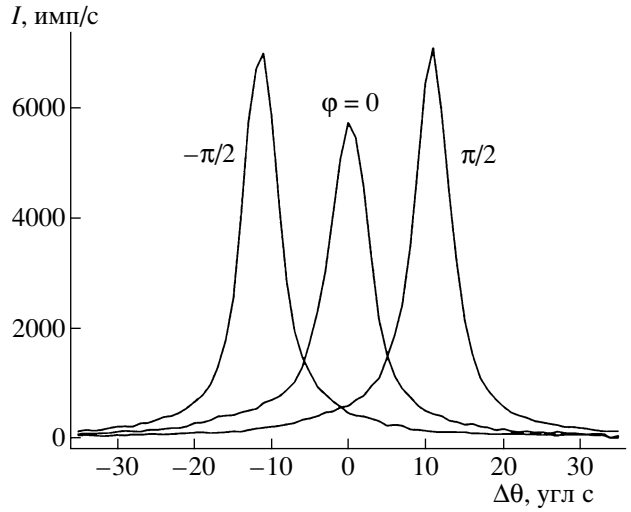

Рис. 5. Кривые дифракционного отражения Si (220), измеренные стробоскопически при различных значениях фазы φ колебаний резонатора на участке 3 (рис. 4) с практически однородной деформацией.

ется с координатой x, увеличиваясь (1) или уменьшаясь (2), либо остается практически постоянной (3). На рис. 5 показаны кривые, полученные с помощью стробоскопической техники для различных значений фазы колебаний $\varphi = -\pi/2$, 0 и $\pi/2$ на участке 3. Видно, что все кривые имеют почти идеальную форму. При этом центральная кривая слегка уширена по сравнению с боковыми кривыми, имеет меньшее максимальное значение и слегка меньшую площадь под кривой. Это связано с конечной временной областью счета фотонов и синусоидальным характером изменения деформации во времени. В максимуме деформации ее производная по времени равна нулю, в то время как при нулевой деформации ее производная максимальна. Соответственно для центральной кривой за время счета фотонов деформация изменяется более быстро. Интегральные по времени измерения дают огибающую кривых, показанных на рис. 5. Заметим, что в кристалле германия описанное выше свойство кривых не наблюдалось из-за неоднородности деформации в пределах ширины щели, ограничивающей пучок.

На рис. 6 показаны кривые, измеренные стробоскопически на участке 1 для тех же значений фазы колебаний, что и на рис. 5. В данном случае наблюдается слабая асимметрия. Число фотонов во временной фазе, соответствующей сжатию кристаллической решетки, больше, чем при растяжении. Такой же асимметричный характер имеет и кривая, измеренная в интегральном по времени эксперименте. На участке 2, где градиент имеет противоположный знак, асимметричное поведение кривых обращается. Теперь большее число фотонов отражается в тот момент, когда кристаллическая решетка растянута. Интегральная по времени кривая отражения также имеет противоположную асимметрию.

Тем не менее, полуширины КДО в разные моменты времени близки к полуширине кривой отражения для идеального кристалла. Это означает, что пространственное изменение деформации на участке кристалла, равном ширине щели, ограничивающей рентгеновский пучок очень мало, и оно практически не влияет на форму кривой отражения.

3. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Измеренные в различные моменты времени с помощью стробоскопической техники экспериментальные кривые близки к теоретическим кривым, получаемым в результате свертки кривых угловой зависимости отражения плоских волн кристаллами монохроматора и образца в случае, когда параметр кристаллической решетки изменяется по синусоидальному закону во времени и является однородным в пространстве. Вместе с тем, образец имеет неоднородную деформацию вдоль поверхности (почти перпендикулярно пучку). Кроме того, падающий пучок ограничен щелью. Очевидно, что приближение плоских волн будет справедливо в том случае, если реальная ширина когерентного пучка меньше ширины щели.

Источником когерентного излучения являются атомы (точки) на поверхности анода рентгеновской трубки. Они излучают сферическую волну, причем когерентными являются только монохроматические компоненты этой волны. Сферическая волна после отражения от монохроматора превращается в узкий пучок, так как монохрома-

тор имеет ограниченную угловую область отражения. Используя программу Степанова [7], легко находим, что для условий эксперимента и германиевого монохроматора угловая ширина области отражения равна $\Delta\theta = 27$ μрад. При этом на расстоянии 63.5 см от источника, то есть в области щели размер когерентного пучка равен 0.02 мм, что в 10 раз меньше размера щели. Таким образом, щель не ограничивает когерентный пучок, и, следовательно, плосковолновое приближение справедливо. В случае кремниевого монохроматора пучок имеет ширину 0.008 мм, то есть необходимые условия выполняются с запасом.

Кристаллическую решетку образца можно считать локально однородной, если в области засветки параметр решетки меняется несущественно. Полная область засветки при падении узкого пучка на кристалл определяется палаткой Бормана, которая на выходной поверхности кристалла имеет продольный размер, равный $\Delta = 2t\,\mathrm{tg}\,\theta_B$. Для германиевого образца ($t = 0.4$ мм, $\theta_B = 10.2°$) получаем оценку $\Delta = 0.15$ мм. Этот размер сравним с размером щели, и на градиентных участках он превышает размер области однородной деформации. Однако в случае германиевого образца реализуется эффект Бормана, который вообще говоря уменьшает эффективный поперечный размер засветки образца, так как поток энергии распространяется в основном по направлению нормали к поверхности кристалла. Для кремниевого образца ($t = 0.9$ мм, $\theta_B = 10.6°$) получаем оценку $\Delta = 0.34$ мм. Хотя в случае кремния размер области засветки больше, чем в случае германия, но деформация в кремниевом образце имеет более плавный характер, поскольку паразитные гармоники имеют малый вес (см. рис. 4). Поэтому указанные выше условия также выполняются.

Что касается некогерентной засветки образца, то она определяется размером источника (0.2 мм) и шириной развертки угла Брэгга из-за конечной ширины спектральной линии $MoK_{\alpha 1}$. Как известно из диаграммы Дю-Монда, $\Delta\theta_B = (\Delta E/E)\,\mathrm{tg}\,\theta_B$. В нашем случае $(\Delta E/E) = 3.4 \times 10^{-4}$, следовательно, некогерентное уширение пучка в области щели за счет немонохроматичности при отражении от монохроматора равно 635 мм $\times 0.18 \times 3.4 \times 10^{-4} = 0.04$ мм. Отсюда следует, что немонохроматичность излучения несущественна, в то время как щель почти равномерно засвечивается некогерентной суперпозицией узких когерентных пучков за счет относительно большого размера источника. Таким образом, необходимо обеспечить постоянство параметра решетки кристалла на всей ширине щели. В противном случае КДО уширяется даже в случае мгновенных (стробоскопических) измерений [5].

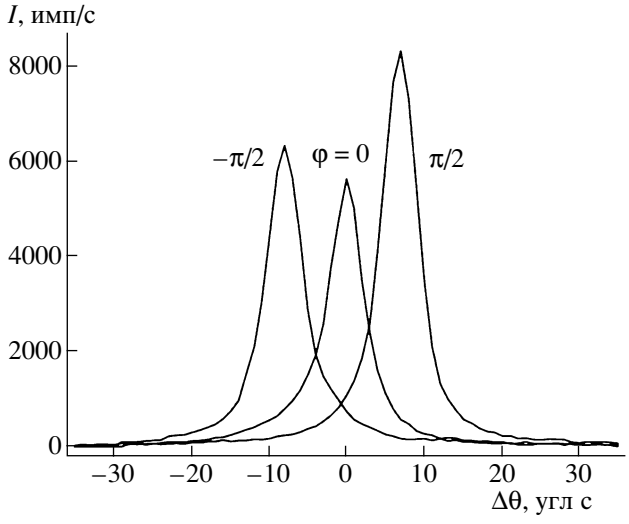

Рис. 6. Кривые дифракционного отражения Si (220), измеренные стробоскопически при различных значениях фазы φ колебаний резонатора на участке 1 (рис. 4) с градиентом деформации.

Что касается практических применений метода динамического изменения параметра кристаллической решетки в рентгенодифракционных измерениях, то можно рассмотреть несколько вариантов. Во-первых, результаты эксперимента дают непосредственную информацию о степени деформации кристалла при различных способах генерации ультразвука. Так, например, можно определить характер и интенсивность паразитных гармоник с более короткой длиной волны. Кроме того, определяется величина максимальной деформации в образце при подаче на пьезоэлектрический резонатор заданной мощности. Во-вторых, динамическое изменение параметра решетки кристалла позволяет управлять характеристиками отраженного пучка. В частности, если не вращать исследуемый кристалл, то интенсивность отраженного пучка становится периодической во времени. Это может быть использовано во времяразрешающих экспериментах. Если убрать щель перед кристаллом и, наоборот, установить узкую щель, ограничивающую размер источника, то в дисперсионной схеме эксперимента можно получить пучок, пространственное положение которого изменяется во времени за счет изменения угла Брэгга. В этом случае необходимо использовать излучение с большой полосой частот, например, от источника синхротронного излучения.

Авторы выражают благодарности В.В. Лидеру за помощь в проведении работ и ценные советы.

* * *

Работа выполнена при поддержке РФФИ (гранты: 04-02-17363, 06-02-08117)

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Энтин И.Р.* // Письма в ЖЭТФ. 1977. Т. 26 (5). С. 392.
2. *Мкртчан А.Р., Навасардян М.А., Мирзоян В.К.* // Письма в ЖТФ. 1982, Т. 8. С. 677.
3. *Tucoulou R., Roshupkin D.V., Mathon O., et al.* // J. Synchrotron Rad. 1998. V. 5. P. 1357.
4. *Zolotoyabko E., Quintana J. P.* // Rev. Sci. Instrum. 2004. V. 75. P. 699.
5. *Благов А.Е., Ковальчук М.В., Кон В.Г., и др.* // ЖЭТФ. 2005. Т.128 (5). С. 893.
6. *Ковальчук М.В., Ковьев Э.К., Пинскер З.Г.* // Кристаллография. 1975. Т. 20. С. 142.
7. интернет ресурс “http://sergey.gmca.aps.anl.gov”.