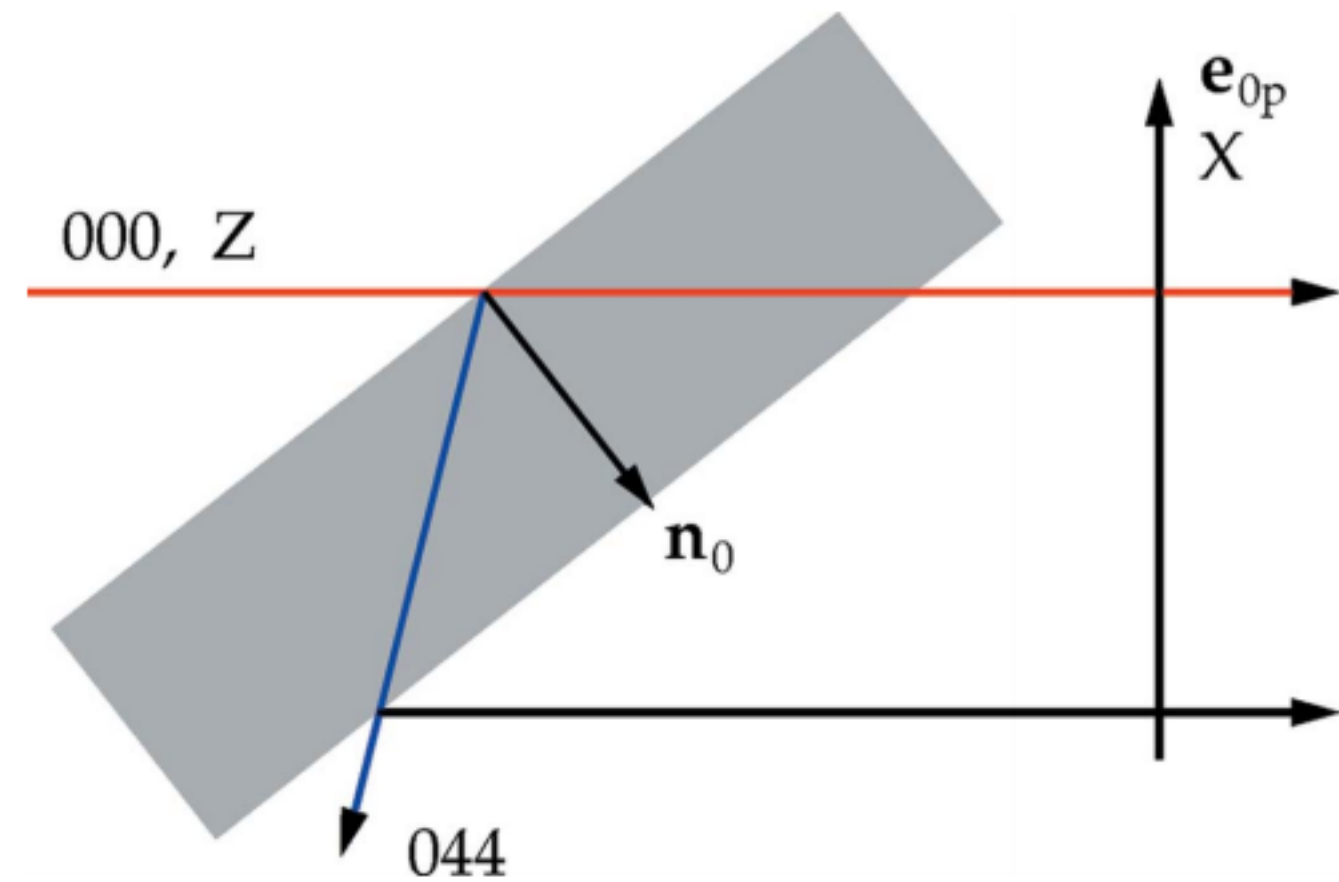
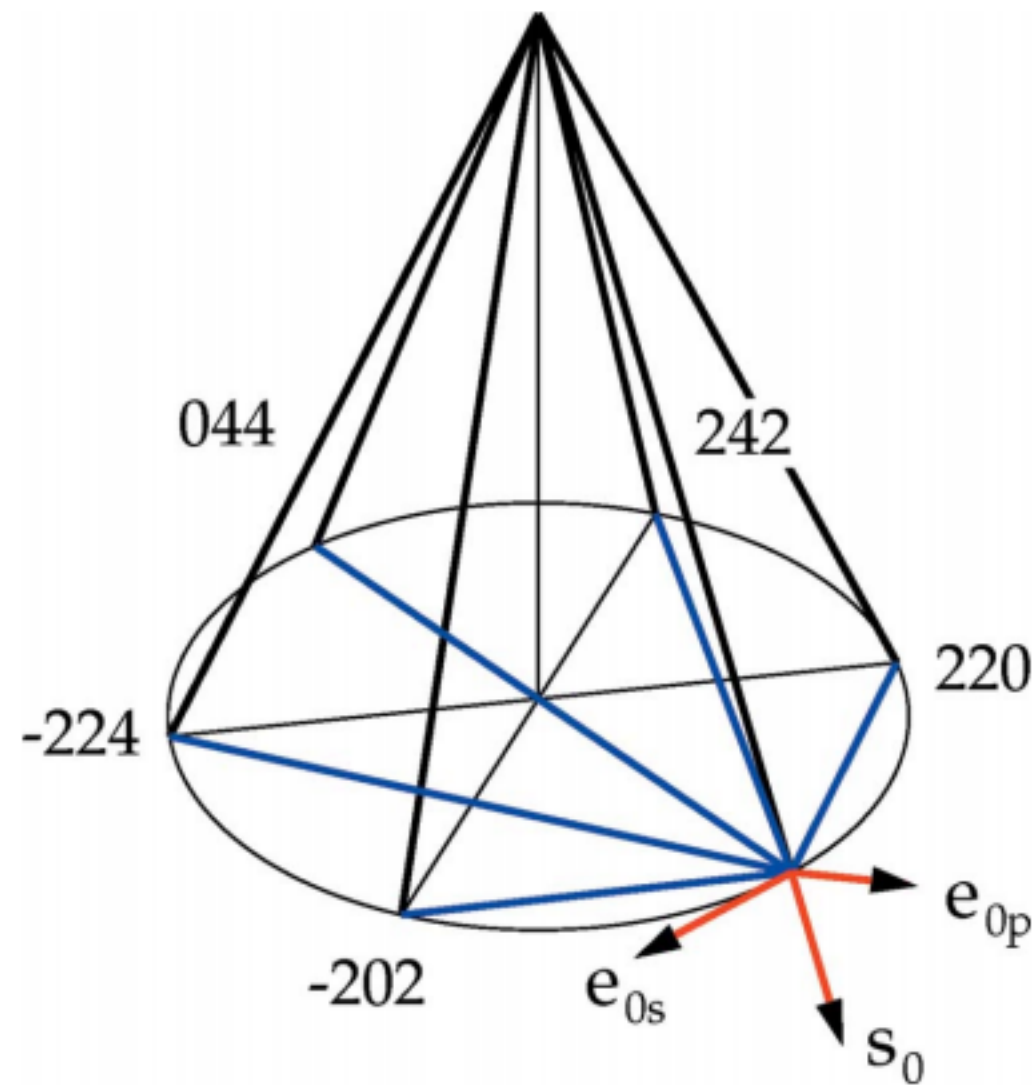


Виктор Г. Кош, <http://kohnvict.ucoz.ru/main.htm>

Computer simulations of X-ray six-beam diffraction in a perfect silicon crystal. I

Acta Cryst. (2016). **A72**, 349–356



История вопроса о суперпрозрачности кристалла (СПК)

1967. Joko T., Fukuhara A., *J. Phys. Soc. Japan*, **22**, 597-604.

Представили аналитическое (точное) решение в одной точке, указали на эффект СПК

1973. Huang T.C., Tillinger M.H., Post B., *Z. Naturforsch. Teil A*, **28**, 600-603.

Использовали схему с расходящимся пучком и расстоянием 2 метра **после** кристалла, источник размером **100 × 100** мкм. Эффект не обнаружили.

1976. Кшевецкий С. А., Михайлюк И. Р., *Кристаллография*, **21**, 381-382.

Использовали схему с расходящимся пучком и расстоянием 2 метра **перед** кристаллом, источник размером **10 × 10** мкм. Эффект обнаружили, но с особенностью.

1976. Кон В. Г., *Физика твердого тела*, **18**, 2538-2545.

Первый численный расчет угловой зависимости дифракции плоской волны, эффект асимметрии пропускания из-за резкой зависимости амплитуд слабопоглощаемых волн.

1977. Afanas'ev A. M., Kohn V. G., *Acta Cryst.*, **A33**, 178-184.

аналитическое решение в одной точке с точным расчетом коэффициентов поглощения

История вопроса о суперпрозрачности кристалла (СПК)

1982. Chang S-L. *Z. Naturforsch. Teil A*, 37, 501-504.

первый эксперимент на источнике СИ. Увидел изображение источника без 2-волновых полос, но разрешение никакое и никакого анализа не привел.

1986. Kohn V. G., Toneyan A. H, *Acta Cryst.*, A42, 441-449.

Теория дифракции сферической волны и расчеты методом стационарной фазы

1993. Kazimirov A. Yu., Kovalchuk M. V., Kohn V. G., Ishikawa T., Kikuta S., Hirano K., *Europhys. Lett.*, 24, 211-216. Эксперимент с двумя кристаллами – коллиматором и образцом. Для малых толщин все ОК, для больших теор. и эксп. не совпали.

2003. Okitsu K., *Acta Cryst.*, A59, 235-244.

Okitsu K., Imai Y., Ueji Y., Yoda Y., *Acta Cryst.*, A59, 311-316.

Новый метод расчета – решение многоволновых уравнений Такаги для точечного источника на поверхности с использованием суперкомпьютера. Эксперимент с очень толстым кристаллом и второй порядок. Двумерная щель 100×100 мкм. Теор. и эксп. совпали, но картинки представлены с низким разрешением.

История вопроса о суперпрозрачности кристалла (СПК)

2006. Okitsu K., Yoda Y., Imai Y., Ueji Y., Urano Y., Zhang X., *Acta Cryst.*, **A62**, 237-247.

Повторение предыдущей работы с лучшим разрешением. Щель 25×25 мкм, излучение специально поляризовано. Очень хорошее совпадение результатов теории и эксперимента.

2011. Okitsu K., Yoda Y., Imai Y., Ueji Y., *Acta Cryst.*, **A67**, 550-556.

Повторение предыдущей работы, но с П-образным кристаллом. Щель снова 100×100 мкм. Во всех расчетах размер щели и расстояние источник-детектор не учитывали. Все совпадало потому что кристалл был толстый и картинки имели очень большой размер.

Вывод: за 40 лет изучения вопроса достигнуты определенные успехи, но эффект суперпрозрачности кристалла так до конца и не исследован. Одной из причин является резкое снижение интереса к дифракции в кристаллах как способа диагностики их структуры. На очереди биология. Но проблемы все равно надо решать. Я уверен, что интерес возвратится.

Теория многоволновой дифракции плоской волны

To describe the electromagnetic field of X-rays inside a crystal, we use Maxwell's equations. In terms of space and time Fourier components of the electrical field vector, $\mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega)$,

$$(\mathbf{k}^2 - \kappa^2)\mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega) - \mathbf{k}[\mathbf{k}\mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega)] = \frac{4\pi i\omega}{c^2} \mathbf{j}(\mathbf{k}, \omega) \quad (2.1)$$

where $\kappa = \omega/c$, c is the light velocity, $\mathbf{j}(\mathbf{k}, \omega)$ is the Fourier component of the current density, which in fact is a quantum-mechanical average of the Fourier component of the current-density operator. In the linear approximation in E , taking into account the periodicity of the crystal lattice, we have

$$\frac{4\pi i\omega}{c^2} j^i(\mathbf{k}, \omega) = \kappa^2 \sum_m \chi^{il}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_m) \mathbf{E}^l(\mathbf{k}_m, \omega) \quad (2.2)$$

where $\mathbf{k}_m = \mathbf{k} + \mathbf{h}_m$, \mathbf{h}_m is 2π times the reciprocal-lattice vector, $\chi^{il}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_1)$ is 4π times the Fourier component of the polarizability tensor of the crystal.

The expression for $\chi^{il}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_1)$, which takes into account all possible interactions between the X-rays and the crystal, has been obtained by Afanas'ev & Kagan (1968). The real part of the polarizability is determined mainly by the Thomson scattering of X-rays by the electrons of the atoms. It has the form:

$$\begin{aligned} \chi_r^{il}(\mathbf{k} - \mathbf{k}_1) &= -\delta^{il} \frac{4\pi r_0}{\kappa^2 \Omega_0} \\ &\times \sum_j \exp[-i(\mathbf{k} - \mathbf{k}_1)\mathbf{q}_j] f_j(\mathbf{k} - \mathbf{k}_1) \exp[-W_j(\mathbf{k} - \mathbf{k}_1)]. \end{aligned} \quad (2.3)$$

Here the summation is over all the atoms in the unit cell of a crystal, $\exp(-W_j)$ and f_j are the Debye-Waller factor and the Fourier component of the electron density (form factor) of the j atom, Ω_0 is the volume of a unit cell, $r_0 = e^2/mc^2$.

Теория многоволновой дифракции плоской волны

To calculate the photoelectric-absorption contribution to the imaginary part of the polarizability one usually uses the multipole series (Hildebrandt, Stephenson & Wagenfeld, 1973). It is enough to retain only the dipole and quadrupole terms because the remaining terms are small; then we have

$$\chi_i^{il}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_1) = \chi_i^D(\mathbf{k} - \mathbf{k}_1)\delta^{il} + \chi_i^Q(\mathbf{k} - \mathbf{k}_1) \left[\delta^{il} \frac{(\mathbf{k}\mathbf{k}_1)}{\kappa^2} + \frac{k_1^i k^l}{\kappa^2} \right] \quad (2.4)$$

where

$$\chi_i^{D,Q}(\mathbf{k}) = \frac{1}{\kappa\Omega_0} \sum_j \exp(-i\mathbf{k}\mathbf{q}_j) \sigma_j^{D,Q} \exp[-W_j(\mathbf{k})] \quad (2.5)$$

and $\sigma_j^{D,Q}$ are the cross-sections of dipole and quadrupole photoabsorptions of the atom j . The dipole term of the imaginary part of the polarizability as well as the real part is diagonal in the vector indices. It is convenient to introduce the complex quantity $\chi^D = \chi_r^D + i\chi_i^D$, where χ_r^D is defined by (2.3). We note that for

to 3, 4 and 6. At a vacuum-crystal boundary the plane wave is refracted and the vector $\mathbf{\kappa}$ is transformed by $\mathbf{k}_0 = \mathbf{\kappa} + \kappa\epsilon_0\mathbf{n}_0/\cos\theta$; where \mathbf{n}_0 is the inner normal to the entrance surface of the plate, $\cos\theta = (\mathbf{s}_m\mathbf{n}_0)$, \mathbf{s}_m is the unit vector parallel to $\mathbf{k}_m = \mathbf{k}_0 + \mathbf{h}_m$ and ϵ_0 is a small quantity of the order of χ ; the imaginary part of which determines the interference absorption coefficient along vector $\mathbf{\kappa}$:

$$\mathbf{E}(\mathbf{k}_m) = E_{m\pi}\mathbf{e}_{m\pi} + E_{m\sigma}\mathbf{e}_{m\sigma}, \quad (2.8)$$

it is easy to obtain the set of linear homogeneous equations for amplitude E_{ms} , $s = \pi, \sigma$, in the form:

$$\sum_{ns'} g_{mn}^{ss'} E_{ns'} = \epsilon_0 E_{ms} \quad (2.9)$$

where

$$g_{mn}^{ss'} = \frac{1}{2} \left\{ \chi^D(\mathbf{h}_{m-n})(\mathbf{e}_{ms}\mathbf{e}_{ns'}) + i\chi_i^Q(\mathbf{h}_{m-n}) [(\mathbf{e}_{ms}\mathbf{e}_{ns'}) (\mathbf{s}_m\mathbf{s}_n) + (\mathbf{e}_{ms}\mathbf{s}_n)(\mathbf{e}_{ns'}\mathbf{s}_m)] \right\}. \quad (2.10)$$

Теория многоволновой дифракции плоской волны

The complete field of X-rays in a crystal has the form

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \sum_j \lambda_j \exp(i\mathbf{k}_0^{(j)} \mathbf{r}) \sum_{ms} E_{ms}^{(j)} \mathbf{e}_{ms} \exp(i\mathbf{h}_m \mathbf{r}) \quad (2.17)$$

where λ_j is the excitement coefficient determined from the boundary conditions. The eigenvectors (2.11) are orthonormalized in the following way:

$$\sum_{ms} E_{ms}^{(j)} E_{ms}^{(j')} = \delta_{jj'} \quad (2.18)$$

Taking this into account and assuming that the amplitude of the incident wave is equal to unity, one easily obtains

$$\lambda_j = \cos \varphi E_{0\pi}^{(j)} + \sin \varphi E_{0\sigma}^{(j)} \quad (2.19)$$

where φ is the angle between the polarization plane of the incident wave and the vector $\mathbf{e}_{0\pi}$. Therefore the

$$\mu^{(j)} = 2\kappa \sum_{\substack{ms \\ ns'}} E_{ms}^{(j)} g_{mni}^{ss'} E_{ns'}^{(j)} \quad (2.13)$$

$$\mu_{\min}^{(3)} = \mu_0 [1 - \exp(-W_1)] \simeq \mu_0 W_1 = \mu_0 B(T) h_1^2 \quad (3.3)$$

where $B(T) = 0.5 \langle u^2 \rangle$ is the factor which determines

$$\mu_{\min}^{(6)} \simeq \mu_0 [2W_1^3 + \frac{3}{2}W_1^2 \sin^2 \theta + \dots] \quad (3.7)$$

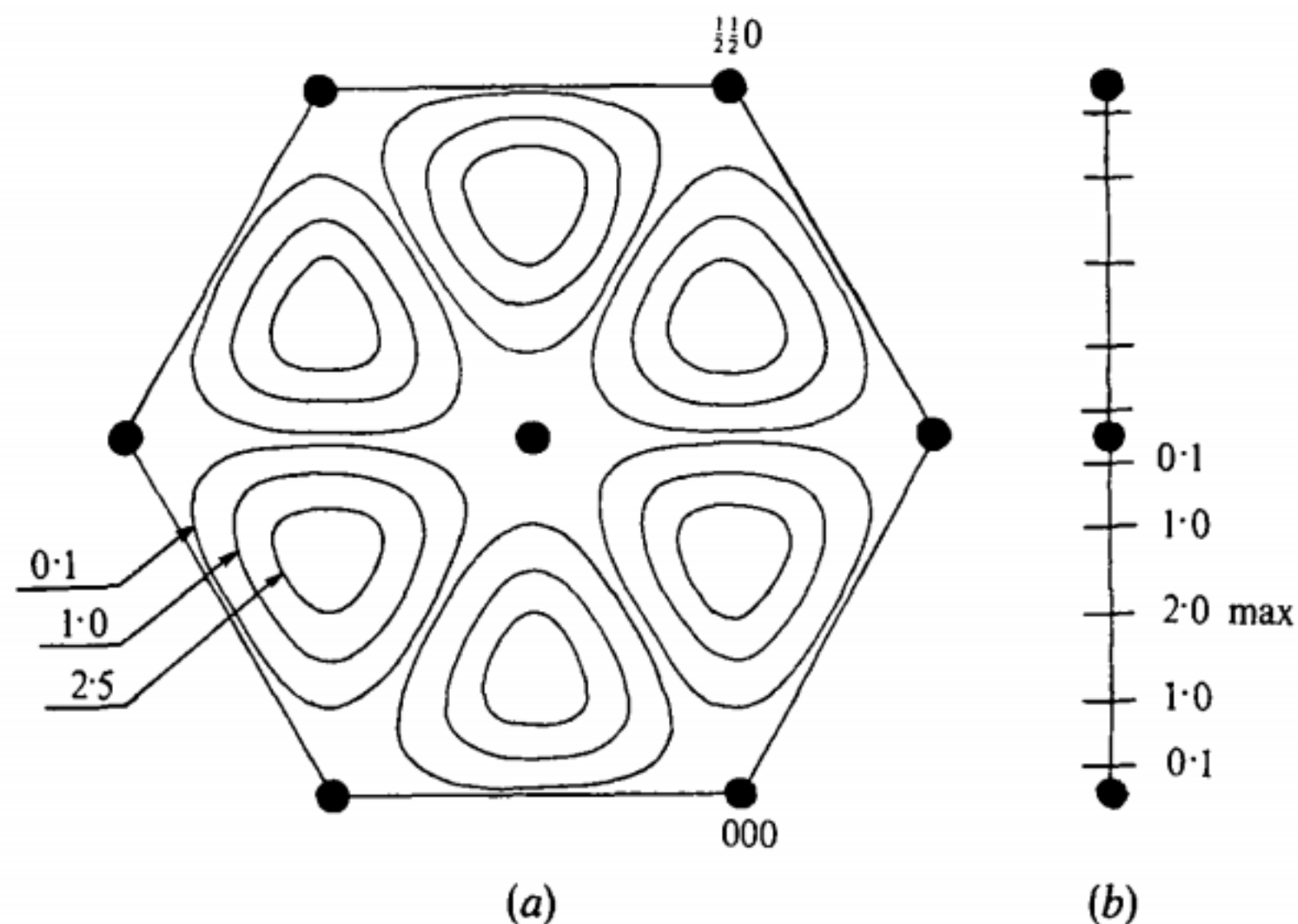
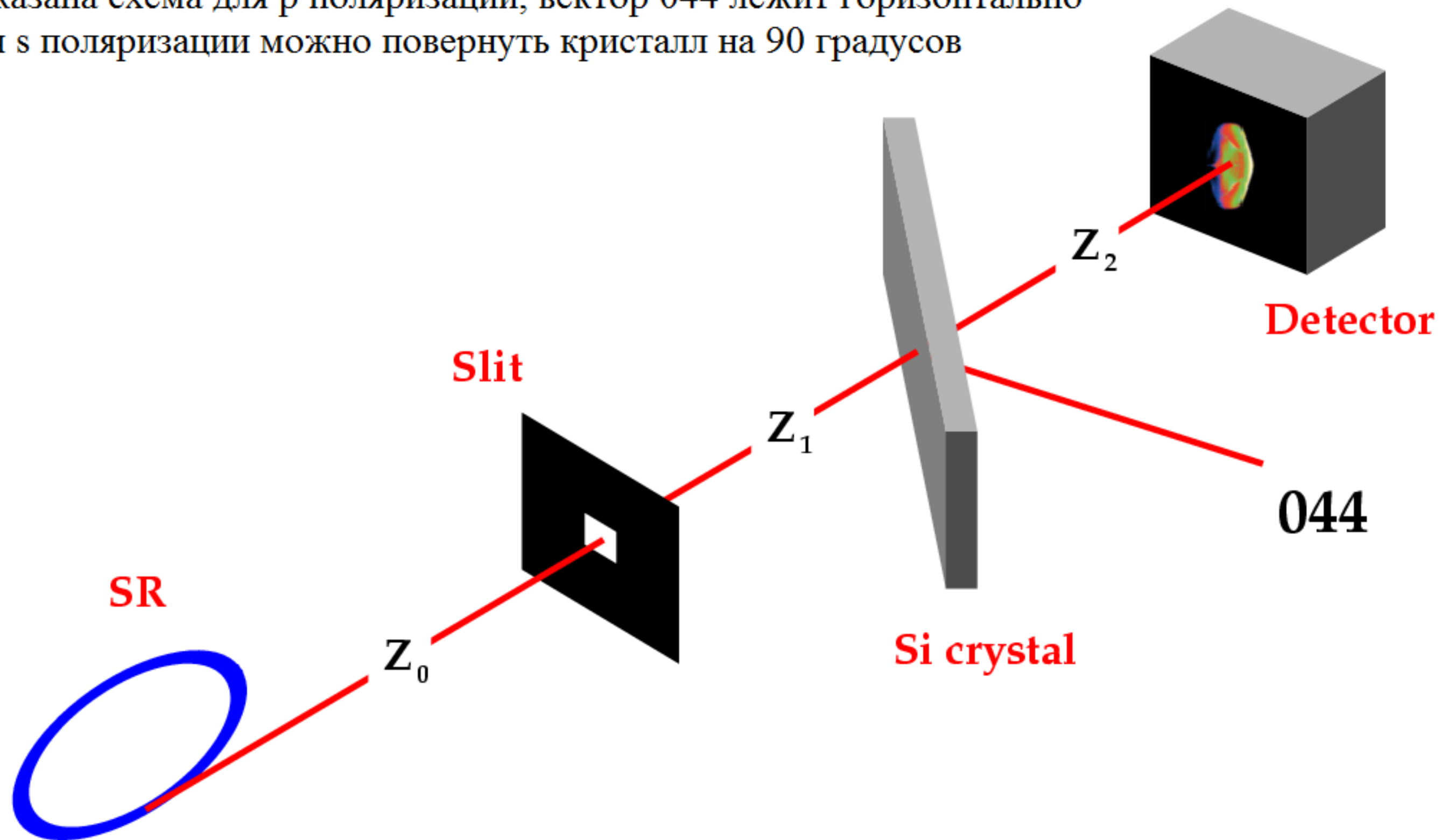


Fig. 1. The X-ray energy density between the atoms of a crystal in the six-wave case for Ag $K\alpha$ -radiation and $(2\pi, \sigma +)$ eigenvector.

Схема эксперимента по многоволновой дифракции на СИ (ESRF)

Показана схема для р поляризации, вектор 044 лежит горизонтально
Для s поляризации можно повернуть кристалл на 90 градусов



Теория многоволновой дифракции для СИ (ESRF)

$$\mathbf{E}_0(x, y, 0) = C \mathbf{e}_{0i} \exp(iKz_0) P_2(x, y, z_0). \quad (1)$$

$$P_2(x, y, z) = P(x, z)P(y, z), \quad (2)$$

$$P(x, z) = (i\lambda z)^{-1/2} \exp(i\pi x^2 / \lambda z). \quad (3)$$

For third-generation synchrotron-radiation sources, where $\alpha = 1 \mu\text{rad}$ and $\lambda = 0.15 \text{ nm}$, we have $L_{\text{tc}} = 75 \mu\text{m}$. Now the slit has a size generally comparable to or less than L_{tc} . Accordingly, the incident wave is modified specifically due to diffraction at the slit. On the other hand, the diameter of the first Fresnel zone of the propagator $P(x, z)$ at $\lambda = 0.15 \text{ nm}$ and $z_0 = 50 \text{ m}$ is equal to $D = 2(\lambda z_0)^{1/2} = 170 \mu\text{m}$. Thus, in the region of the slit the incident radiation can be considered as a plane wave.

$$\mathbf{E}_0(x, y, 1) = \mathbf{e}_{0i} \exp(iKz_0) T(x, y), \quad (4)$$

$$T(x, y) = \theta(x_0 - |x|) \theta(y_0 - |y|). \quad (5)$$

The field **in front** of crystal is

$$\mathbf{E}_0(x, y, 2) = \mathbf{e}_{0i} \psi_{2i}(x, y), \quad (6)$$

$$\psi_{2i}(x, y) = P_2(x - x_1, y - y_1, z_1) * T(x_1, y_1). \quad (7)$$

The field **behind** the crystal is

$$\mathbf{E}_0(x, y, 3) = \sum \mathbf{e}_{0v} \psi_{3v}(x, y), \quad (8)$$

$$\psi_{3v}(x, y) = P_C^{vi}(x - x_1, y - y_1, t) * \psi_{2i}(x_1, y_1). \quad (9)$$

The field **in front** of detector

$$\mathbf{E}_0(x, y, 4) = \sum \mathbf{e}_{0v} \psi_{4v}(x, y), \quad (10)$$

$$\psi_{4v}(x, y) = P_2(x - x_1, y - y_1, z_2) * \psi_{3v}(x, y). \quad (11)$$

$$\begin{aligned} \psi_{4v}(x, y) = & P_2(x - x_2, y - y_2, z_t) \\ & * P_C^{vi}(x_2 - x_1, y_2 - y_1, t) * T(x_1, y_1) \end{aligned} \quad (12)$$

where $z_t = z_1 + z_2$. It follows from this expression that the

Теория многоволновой дифракции для СИ (ESRF)

$$\psi_{4v}(x, y) = \int \frac{dqdp}{(2\pi)^2} \exp(iqx + ipy) \times P_{Cf}^{vi}(q, p, t) P_{2f}(q, p, z_t) T_f(q, p). \quad (13)$$

This integral is calculated by means of the FFT procedure and the multipliers of the integrand are calculated directly. So we have

$$P_{2f}(q, p, z) = \exp\left[-i \frac{\lambda z}{4\pi} (q^2 + p^2)\right], \quad (14)$$

$$T_f(q, p) = 4x_0 y_0 \text{sinc}(qx_0) \text{sinc}(py_0), \quad (15)$$

where

$$\text{sinc}(x) = \frac{\sin(x)}{x}. \quad (16)$$

The function $P_{Cf}^{vi}(q, p, t)$ describes the angular dependence of the plane-wave transmission through the crystal under conditions of multiple (six-beam) diffraction, which is calculated previously, for example, by Kon (1976a,b). Below we

$$\sum_{nv'} G_{mn}^{vv'} E_{nv'} = \varepsilon E_{mv} \quad (17)$$

$$G_{mn}^{vv'} = -\frac{K\alpha_m}{\gamma_m} \delta_{mn} \delta_{vv'} + \frac{K\chi_{m-n}}{(\gamma_m \gamma_n)^{1/2}} (\mathbf{e}_{mv} \mathbf{e}_{nv'}) \quad (18)$$

where the parameter $\alpha_m = (|\mathbf{k}'_m|^2 - |\mathbf{k}'_0|^2)/K^2$ depends on the angles $\theta = q/K$ and $\varphi = p/K$, and the diffraction parameters

$$(G'')_{mn}^{vv'} = \frac{K\chi''_{m-n}}{(\gamma_m \gamma_n)^{1/2}} \left\{ (1 - Q)(\mathbf{e}_{mv} \mathbf{e}_{nv'}) + Q[(\mathbf{e}_{mv} \mathbf{e}_{nv'}) (\mathbf{s}_m \mathbf{s}_n) + (\mathbf{e}_{mv} \mathbf{s}_n)(\mathbf{e}_{nv'} \mathbf{s}_m)] \right\} + \frac{C_{CS} K \chi'_{m-n}}{(\gamma_m \gamma_n)^{1/2}} (\mathbf{e}_{mv} \mathbf{e}_{nv'}) \quad (20)$$

where χ''_{m-n} has to be calculated from the experimental value of the photoelectric absorption coefficient, $Q = \sigma_Q / (\sigma_D + \sigma_Q)$, $\sigma_{D,Q}$ are cross sections of the dipole and quadrupolar contributions to the photoelectric absorption, $C_{CS} = 4\pi r_0 / 3\lambda$, $r_0 = e^2 / mc^2$ is the classic electron radius. The values of Q were calculated in the work of Hildebrandt *et al.* (1975).

Теория многоволновой дифракции для СИ (ESRF)

Finally, the transmission amplitude of the polarized plane wave through the crystal is equal to

$$P_{Cf}^{vi}(q, p, t) = \gamma_0^{-1/2} \sum_j \lambda_j(\varphi) E_{0v}^{(j)} \exp(i\varepsilon_j t/2). \quad (23)$$

In this work we consider two polarization states of the incident wave for which $\varphi = 0$ and $\pi/2$, *i.e.* the vector \mathbf{e}_{0i} is equal to either \mathbf{e}_{0p} or \mathbf{e}_{0s} .

$$\lambda_j(\varphi) = \gamma_0^{1/2} [E_{0p}^{(j)} C_p + E_{0s}^{(j)} C_s]. \quad (22)$$

Here we assume that the incident wave amplitude is equal to unity, $C_p = \cos \varphi$, $C_s = \sin \varphi$.

Each eigenvector comes in the full field with the weight $\lambda_j(\varphi)$, which is determined from the boundary conditions and

$$\sum_j \lambda_j(\varphi) E_{mv}^{(j)} = \gamma_0^{1/2} \delta_{m0} C_v(\varphi). \quad (21)$$

$$\mu_j = \varepsilon_j'' = \sum_{mv, nv'} E_{mv}^{(j)} (G'')_{mn}^{vv'} E_{nv'}^{(j)} \quad (19)$$

Параметры компьютерного эксперимента

$E = 8 \text{ keV}$, близко к CuK_α линии рентген. трубки

$t = 1 \text{ mm}$, толщина кристалла умеренная

угол $\theta_0 = 58.3^\circ = \theta_B$ для 044 рефлекса

$\gamma_0 = \cos \theta_0 = 0.59$, $\exp(-\mu_0 t/\gamma_0) = 3 \cdot 10^{-11}$

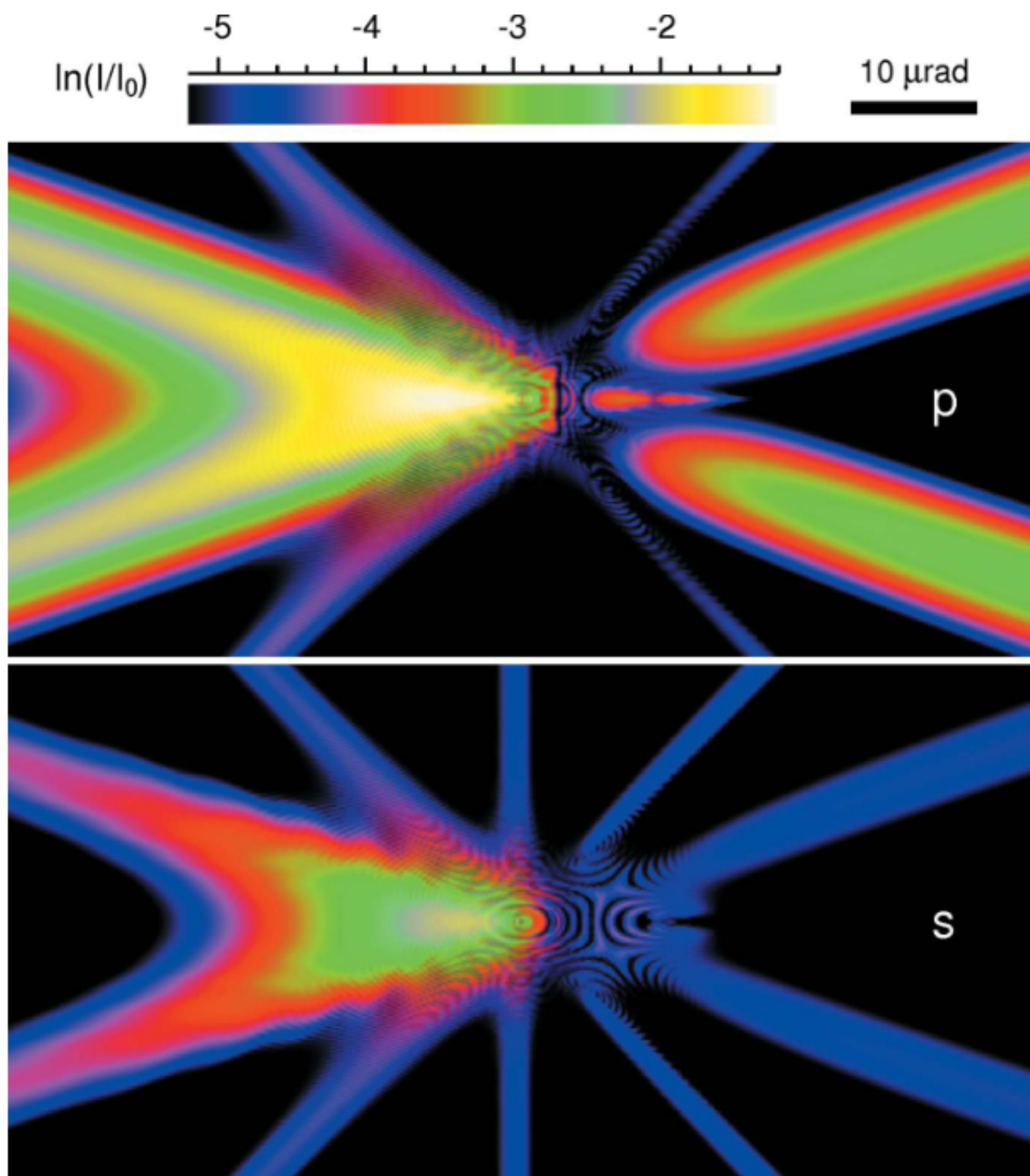
$\exp(-\mu_{\min}^{(220)} t) = 0.47$, то есть 2-волновые хвосты есть

Размеры щели $1.892 \times 3.784 \text{ мкм}^2$ (так мало специально)

Шаг сетки по углам одинаковый $\Delta = 0.04 \text{ мкрад}$

Число точек сетки 4096×2048

Размер угловой области $163.84 \times 81.92 \text{ мкрад}^2$



Угловая зависимость интенсивности поляризованной плоской волны в прямом пучке на выходе из кристалла. Показана только центральная часть расчетной области с размерами 81.92×40.96 мкрад². Чтобы лучше представить все значения показан натуральный логарифм относительной интенсивности. Линия 044 рефлекса для p поляризации отсутствует из-за сильного поглощения.

Расчетные картинки показывают осцилляции с очень мелким шагом, которые пропали после конвертирования картинки в формат pdf. Резкая асимметрия по оси X связана с тем фактом, что существует много зон дисперсионной поверхности с малым расстоянием между ними (Кон, 1976). Интенсивность для p поляризации выше из-за более слабого поглощения сильных 220 рефлексов.

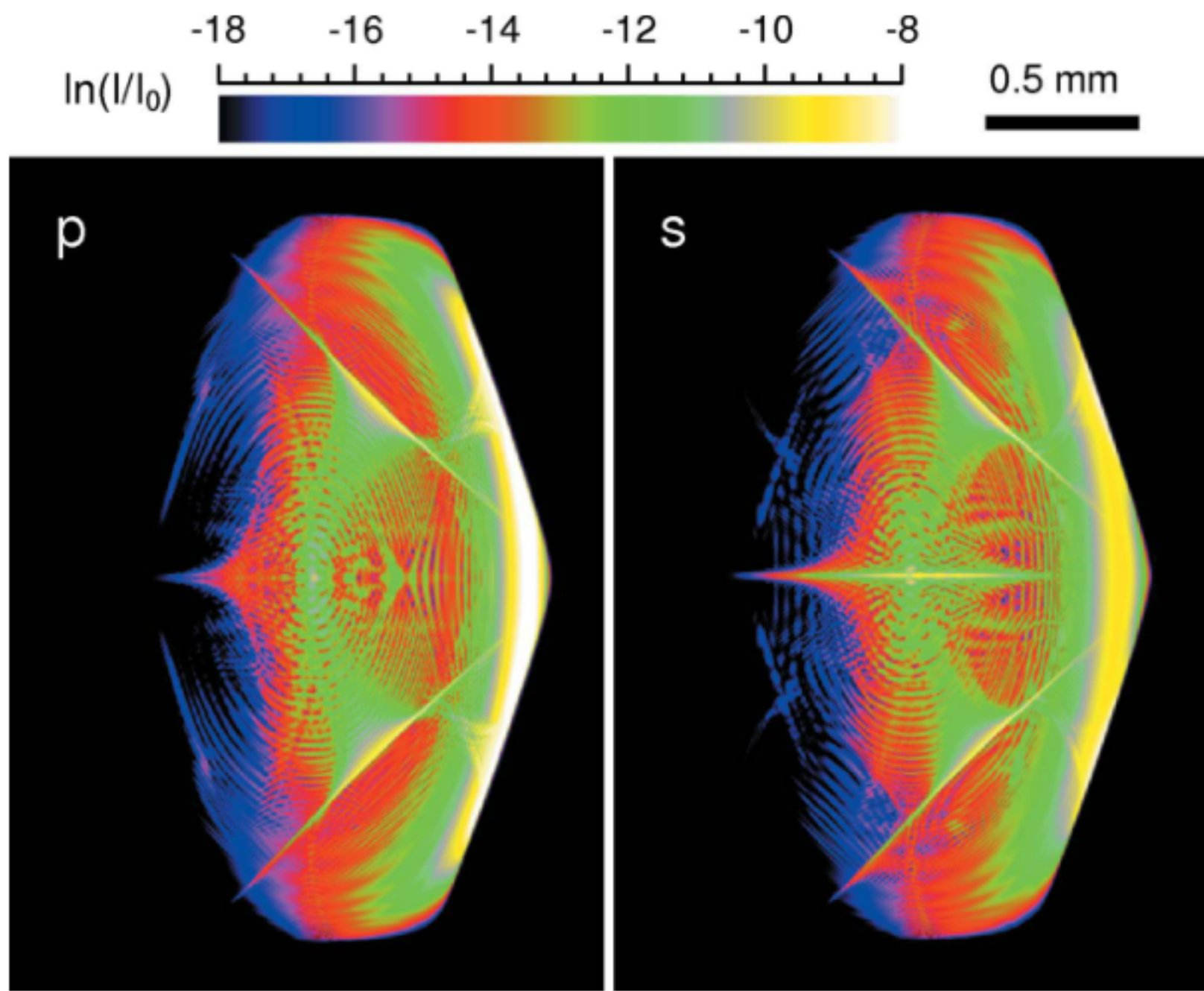


Figure 4
 The section topograph of the six-beam diffraction for the distance of 1 cm between the slit and the detector. A logarithm of the transmitted-beam intensity is shown for two polarization states of the incident wave, p (left) and s (right). The horizontal axis corresponds to the x coordinate shown in Fig. 2. Both axes have the same units which are shown above the picture.

Секционная топограмма кристалла на расстоянии 1 см. В плоскости поверхности кристалла картинка имеет вид правильного 6-угольника. Она сжимается по оси X из-за проектирования на плоскость, нормальную к направлению пучка.

Картинка резко асимметричная с большим перепадом значений интенсивности. Очень малые значения связаны с тем, что излучение проходит через 2D щель с малыми размерами. Хотя потери на поглощение невелики, но интеграл сильно размазан по площади пучка, которая имеет размер в 2048^2 раз больше размера площади щели.

Такая особенность 6-волновой дифракции была обнаружена еще в первых экспериментах в 1970 году и правильно интерпретирована позднее Umeno M., *Physica Status Solidi A*, **2**, K203-K205

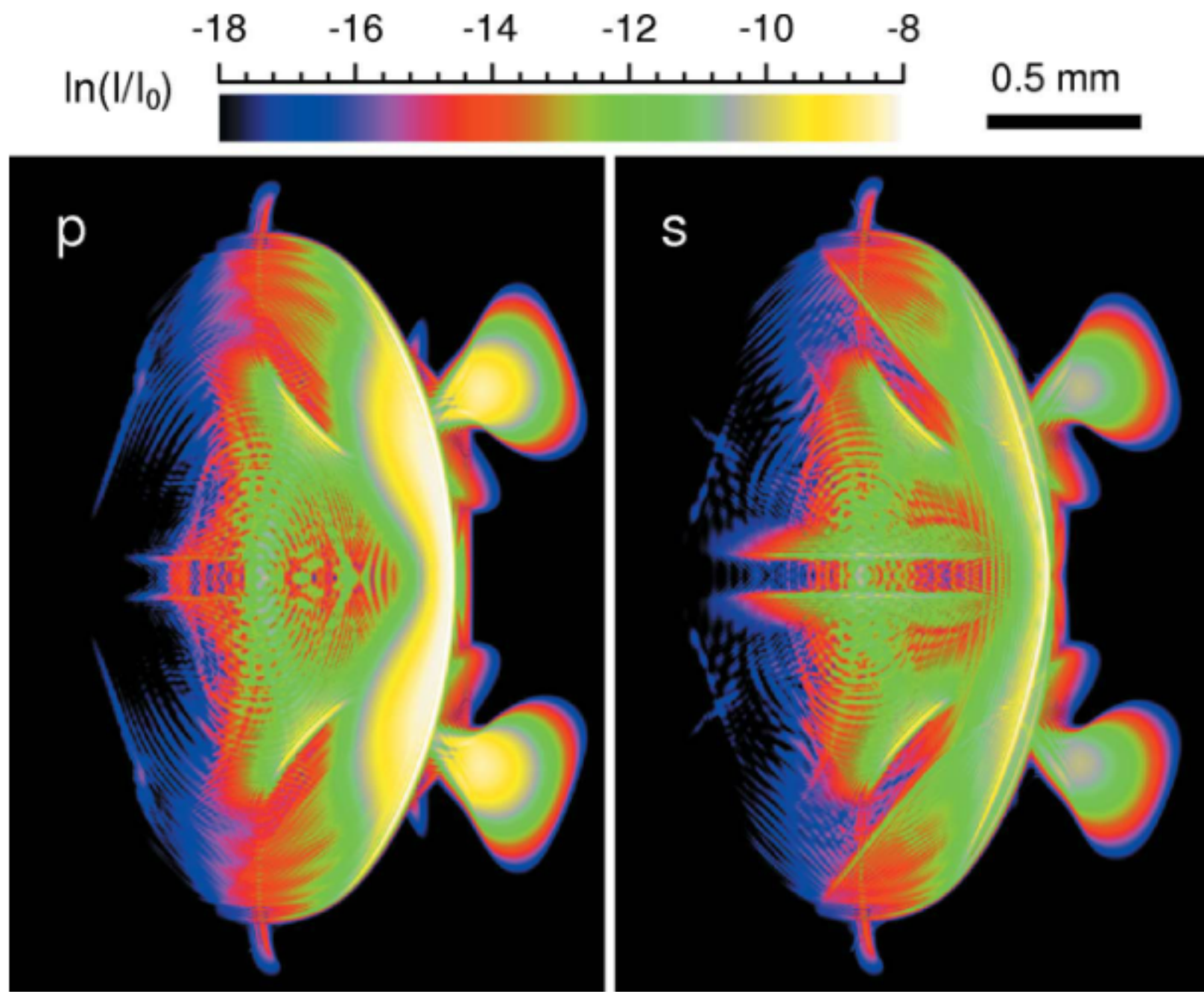


Figure 5
 The section topograph of the six-beam diffraction for the distance of 5 m between the slit and the detector. A logarithm of the transmitted-beam intensity is shown for two polarization states of the incident wave, p (left) and s (right). The axes and units are the same as in Fig. 4.

Секционная топограмма кристалла на расстоянии 5 метров. Кроме расстояния больше ничего не менялось. Расстояние вытягивает из топограммы двухволновые хвосты. Они не очень длинные потому что 2D щель коллимирует пучок и обрезает двухволновые хвосты угловой зависимости. Чтобы эффект был заметнее, в расчетах использовалась очень маленькая 2D щель.

Двухволновые хвосты идут как наружу, так и внутрь топограммы. Внутри они интерферируют с 6-волновой областью. Главный заметный эффект интерференции расщепление двухволновых линий.

Расчет для 10 метров усиливает обнаруженные тенденции, но ничего существенно не добавляет, потому не показан.

История многоволновой секционной топографии

Umeno M., *Physica Status Solidi A*, 1970, 2, K203-R205 ; 1972, 11, 501-511 ;
1976, 37, 561-570 ; 1976, 38, 701-711.

Микрофокусный источник (10×10 мкм), расходящееся излучение, малое расстояние.

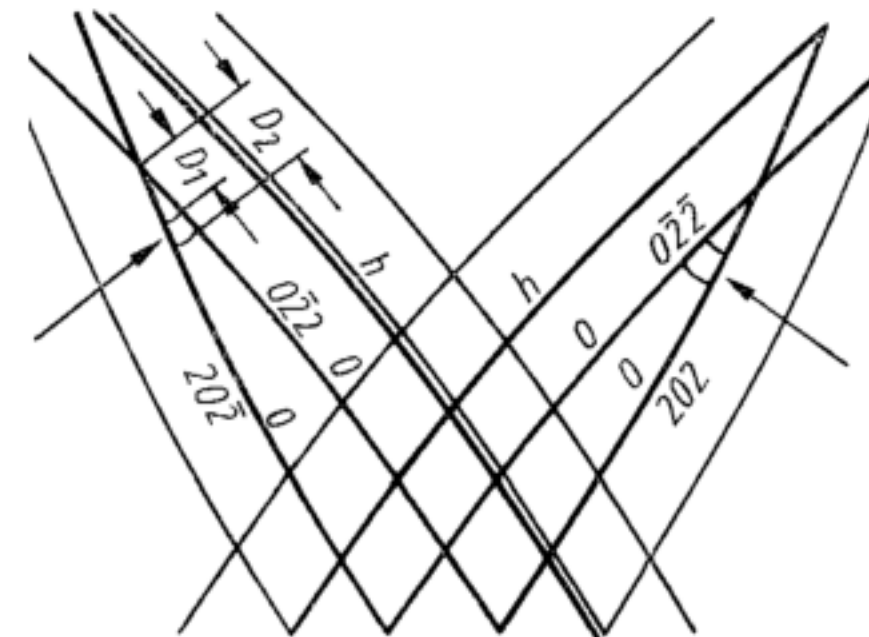
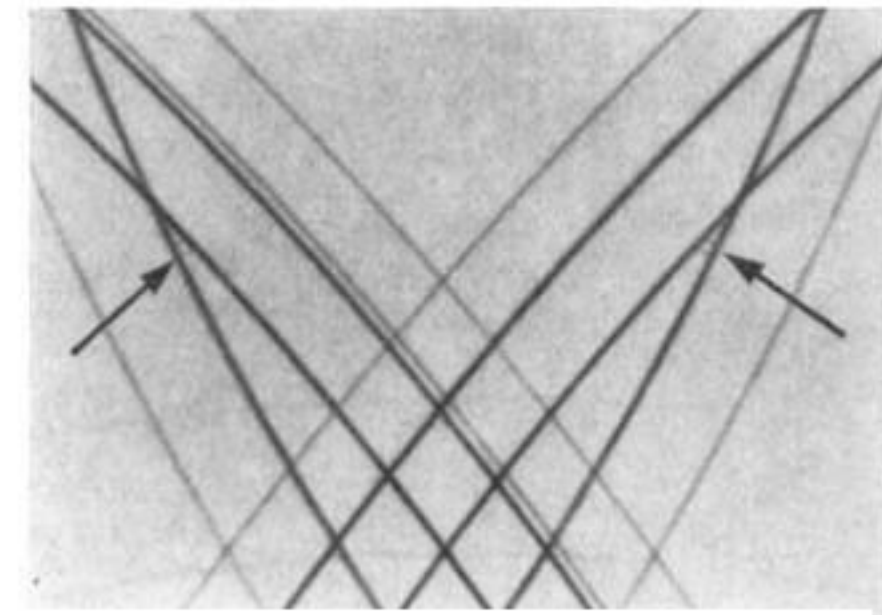
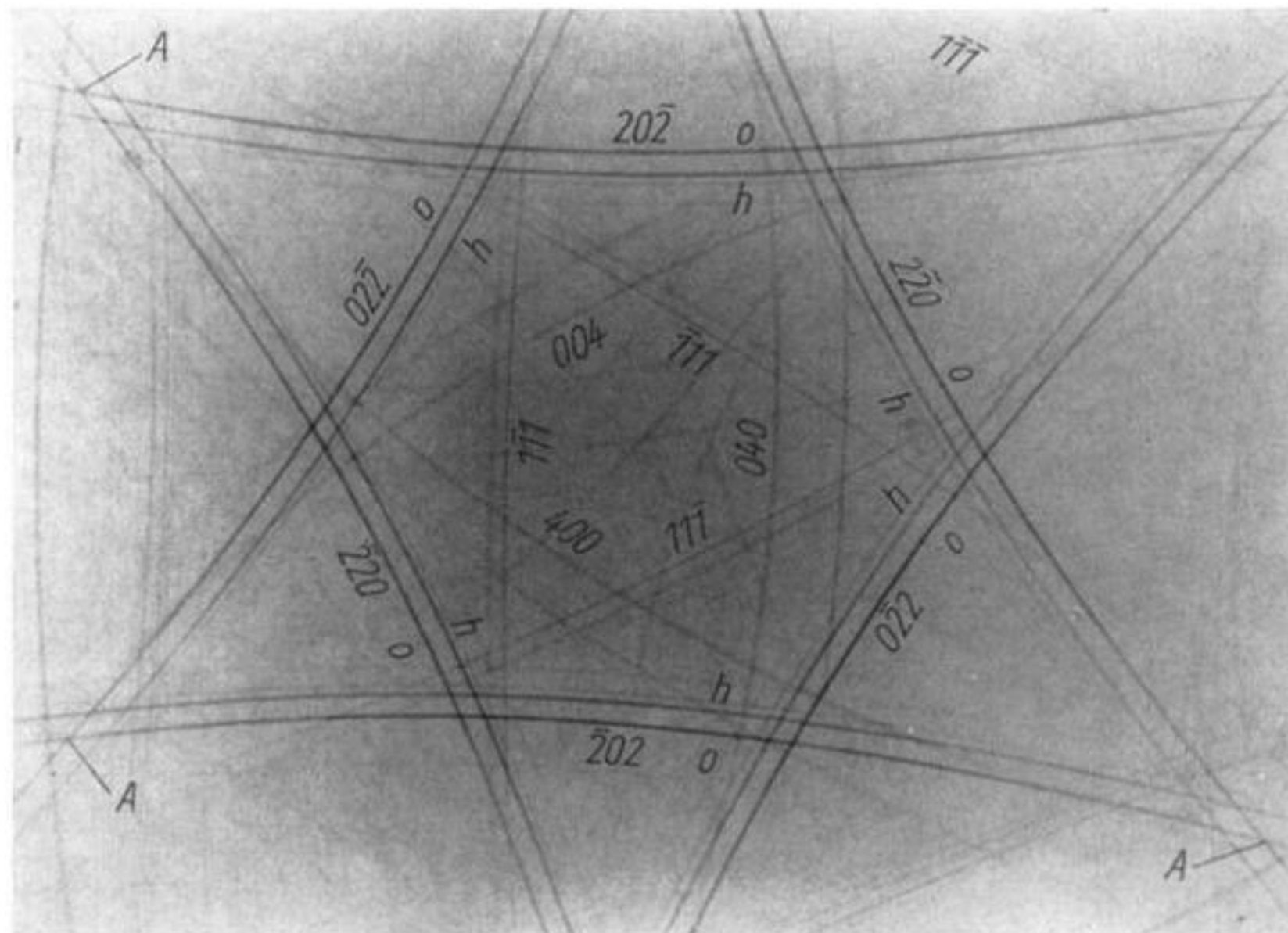
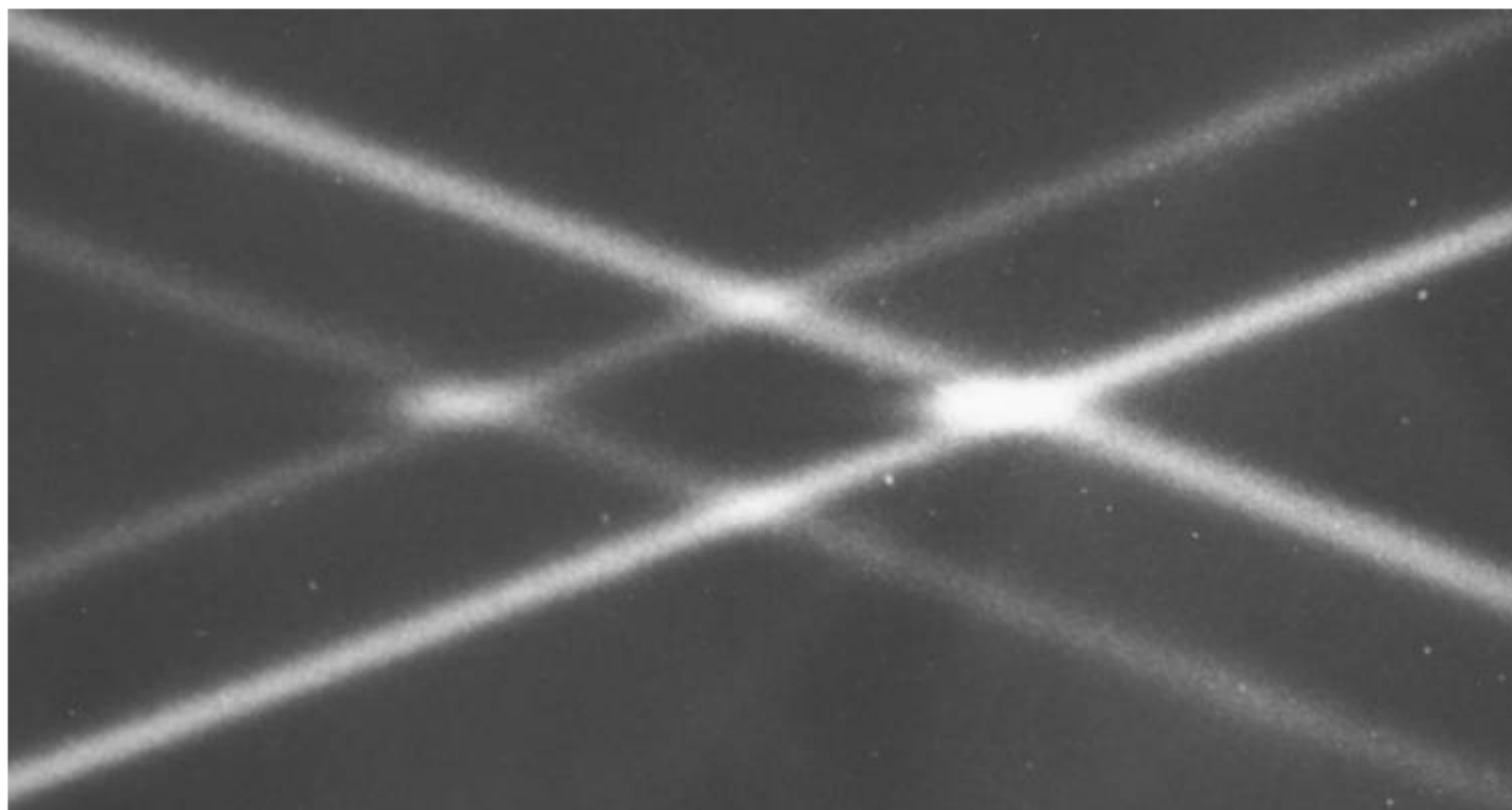


Fig. 1. An anomalous transmission pattern of {111} Ge. Anomalies are observed at the point A. X-ray: $\text{GeK}\alpha$

История многоволновой секционной топографии

1976. Кшевецкий С. А., Михайлюк И. Р., *Кристаллография*, **21**, 381-382.



Черновицкий университет.
Источник 10 мкм,
расстояние до кристалла 2 м.
Толщина кристалла t такова,
что $\mu t \approx 20$
Более слабые двухволновые
полосы других отражений не
видны, так как поглощаются.
Яркость пятна пропадет при
более высоких толщинах.

История многоволновой секционной топографии

1986. Kohn V. G., Toneyan A. H, *Acta Cryst.*, A42, 441-449.

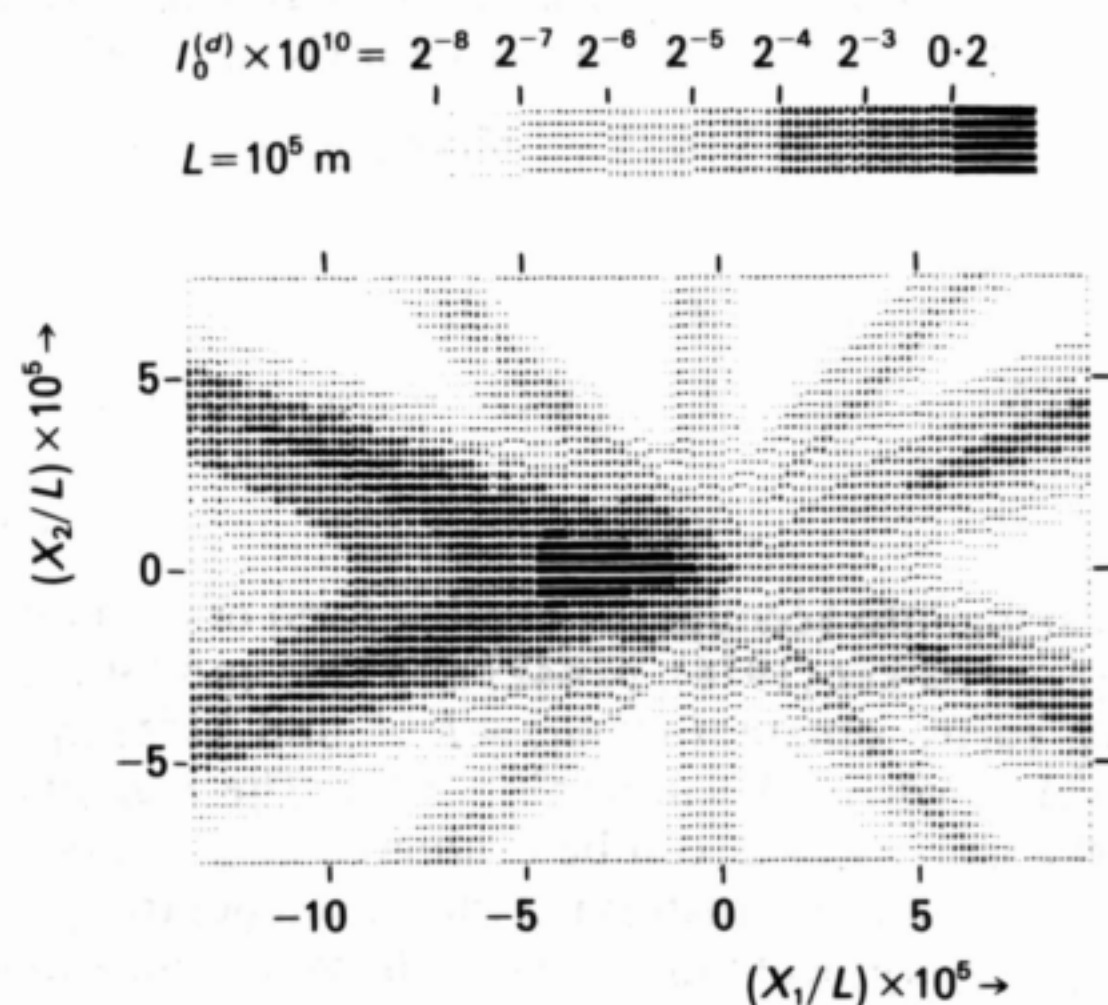


Fig. 4. The forward direct-beam topograph computed in the case of six-beam (220/242/044/ $\bar{2}24/\bar{2}02$) diffraction of Cu $K\alpha$ radiation in a Ge crystal of thickness 0.2 mm. The distance between the source and the film $L = 10^5$ m.

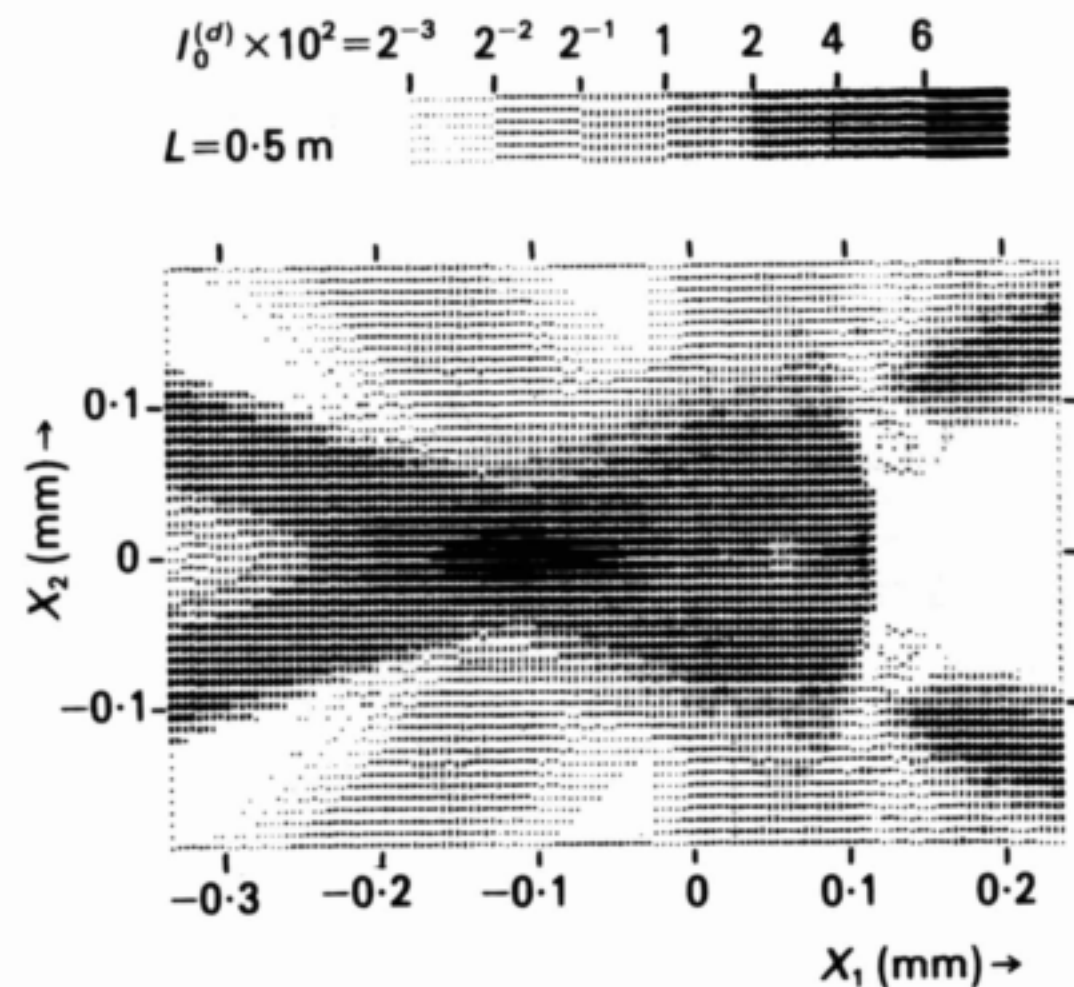
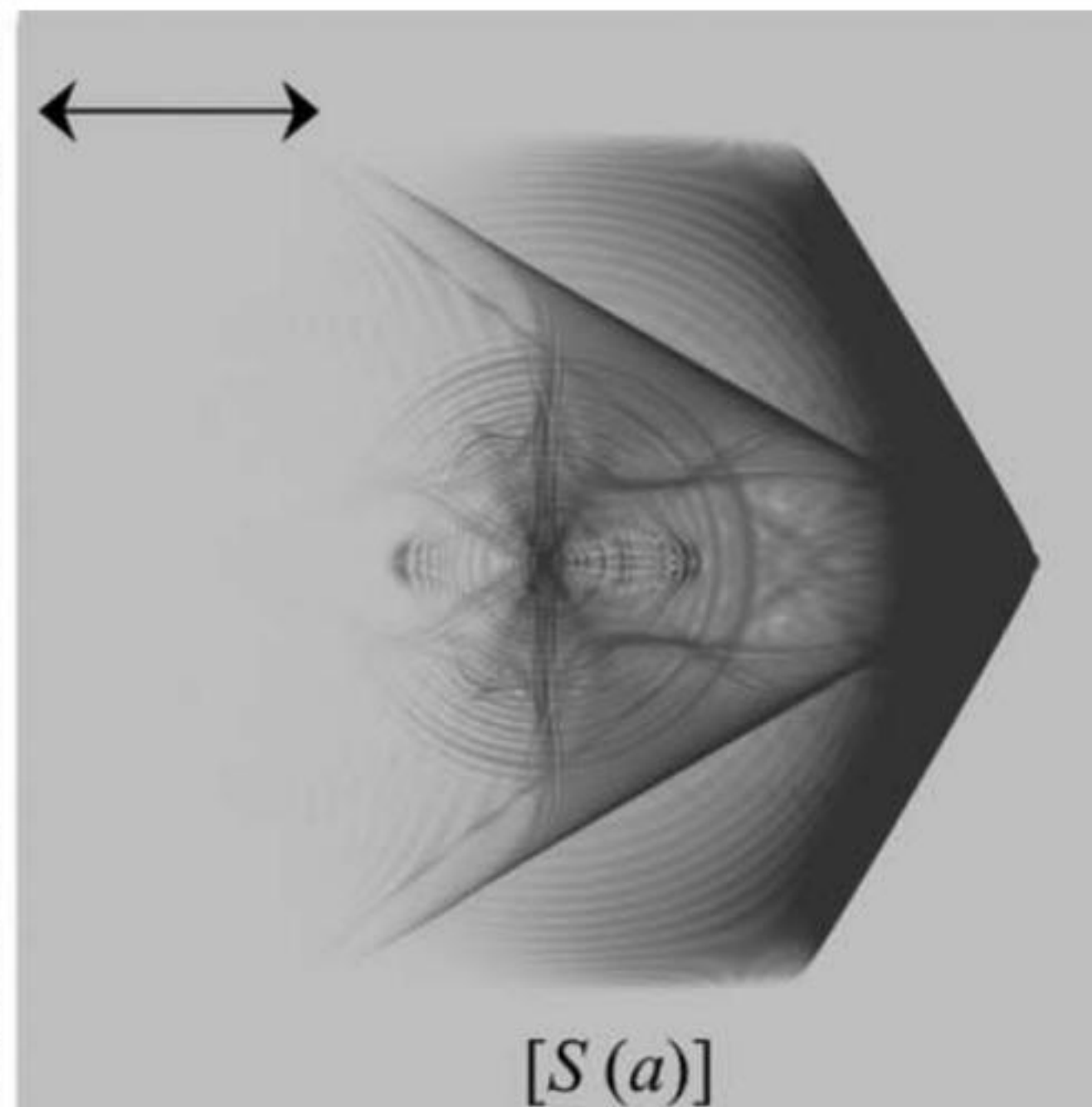
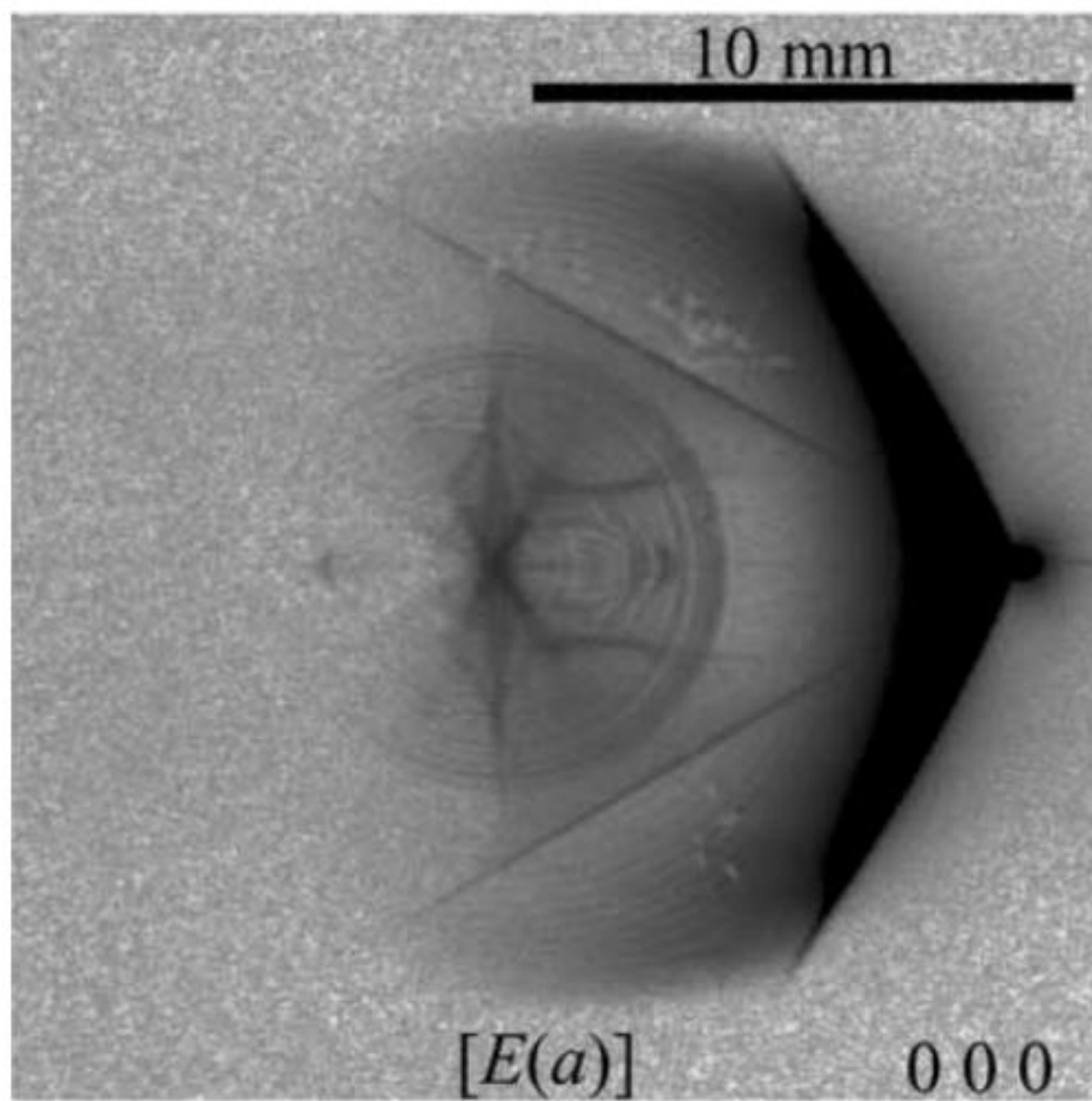


Fig. 8. Computed topograph for the same conditions as in Fig. 4, but with $L = 0.5$ m.

История многоволновой секционной топографии

2006. Okitsu K., Yoda Y., Imai Y., Ueji Y., Urano Y., Zhang X., *Acta Cryst.*, **A62**, 237-247



Выводы

- 1. Секционная топография является наиболее удобным экспериментальным методом изучения б-волновой дифракции, так как позволяет получить всю картинку за одно измерение. При использовании источников СИ уменьшение локальной интенсивности не является проблемой потому что фотонов много.**
- 2. Для компьютерного эксперимента по б-волновой дифракции в идеальном кристалле наиболее перспективным методом является метод преобразования Фурье угловой зависимости дифракции плоских волн. Этот метод не требует использовать суперкомпьютер, а также позволяет корректно учесть размер 2D щели и всех расстояний между различными элементами экспериментальной схемы.**
- 3. б-волновая топограмма в прямом пучке является асимметричной и содержит большое число интерференционных полос разной структуры, которые можно использовать для прецизионного измерения малых изменений структурных параметров кристалла.**
- 4. Предложен эффективный метод для изучения эффекта суперпрозрачности кристалла. Продолжение работы планируется.**
- 5. Эффект суперпрозрачности кристалла может найти применение на XFEL.**

Благодарю

за

Внимание