

ИССЛЕДОВАНИЕ МНГОВОЛНОВОЙ ДИФРАКЦИИ РЕНТГЕНОВСКИХ ЛУЧЕЙ В СОВЕРШЕННЫХ КРИСТАЛЛАХ С ПОМОЩЬЮ СИНХРОТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

© 1994 г. А. Ю. Казимиров, М. В. Ковальчук, В. Г. Кон*

Институт кристаллографии РАН

** Российский научный центр "Курчатовский институт"*

Поступила в редакцию 20.07.93 г.

Представлен обзор выполненных с участием авторов экспериментов по многоволновой дифракции рентгеновских лучей в совершенных кристаллах, включая прямое измерение аномального прохождения в условиях шестиволновой дифракции и изучение выхода фотоэлектронов в условиях трехволновой дифракции (многоволновая модификация метода стоячих рентгеновских волн). Дан анализ различных рентгенооптических схем двумерной коллимации, необходимой для наблюдения многоволновых интерференционных эффектов. Полученное достаточно хорошее согласие эксперимента с теорией подтверждает эффективность предложенных решений и перспективность создания на их основе новых неразрушающих методов анализа структурного совершенства кристаллов и поверхностных слоев.

1. ВВЕДЕНИЕ

Динамическая теория дифракции рентгеновских лучей, разработанная еще в начале нашего века, явилась выдающимся достижением теоретической физики своего времени. Суть этой теории состоит в самосогласованном учете взаимодействия падающей и рассеянной рентгеновских волн, результатом которого является возникновение в кристалле единого волнового поля. Интенсивность этого поля пространственно модулирована и повторяет периодическую структуру кристаллической решетки совершенного кристалла.

Все интерференционные эффекты динамического рассеяния рентгеновских лучей непосредственно связаны с существованием этого волнового поля и его взаимодействием с атомами кристаллической решетки. К основным эффектам такого рода можно отнести явление аномального прохождения рентгеновских лучей и аномальные угловые зависимости выхода вторичных излучений (фотоэлектронов, флуоресценции и др.). Однако отсутствие совершенных кристаллов достаточно большого размера задержало экспериментальное изучение предсказанных динамической теорией эффектов на десятилетия.

Появление искусственно выращенных кристаллов высокой степени совершенства стимулировало бурный рост исследований динамических эффектов в наиболее простой геометрии двухволновой дифракции, когда условия отражения реализуются лишь для одной системы кристаллических плоскостей. Результатом этих исследований явилось создание новых методов диагностики

структуры почти совершенных монокристаллов (рентгеновская топография, дифрактометрия, метод стоячих рентгеновских волн в различных его модификациях), широкое использование которых во многом способствовало совершенствованию современных технологий выращивания монокристаллов для различных технически важных применений, в первую очередь, микроэлектроники.

Многоволновая дифракция представляет собой более сложный случай, когда условия отражения реализуются одновременно для двух и более систем кристаллических плоскостей, а в кристалле возникает три и более сильных пучка, распространяющихся в разных направлениях. Когерентная суперпозиция этих пучков образует сложную структуру волнового поля, интенсивность которого модулирована в пространстве в двух направлениях. Это обстоятельство обуславливает потенциально более богатые возможности проявления интерференционных эффектов рассеяния рентгеновских лучей и их использования для структурной диагностики. Достаточно полное описание различных многоволновых конфигураций представлено в фундаментальной монографии З.Г. Пинскера [1].

Между тем экспериментальное изучение динамических эффектов многоволновой дифракции долгие годы сдерживалось наличием объективных трудностей. В первую очередь это необходимость коллимации падающего рентгеновского пучка одновременно в двух направлениях (двумерная коллимация) с высокой точностью порядка угловой секунды. Такая коллимация, помимо

сложности ее технической реализации, приводит к резкому (на несколько порядков по сравнению с двухволновой дифракцией) уменьшению интенсивности. Кроме того, используемое гониометрическое оборудование должно предусматривать возможность прецизионного поворота исследуемого кристалла вокруг нескольких (как минимум, двух) осей. Неудивительно поэтому, что подобные эксперименты стали возможными только в последние годы, главным образом благодаря использованию высокоинтенсивных пучков синхротронного излучения (СИ).

Настоящая работа является кратким обзором основных экспериментальных результатов, полученных авторами с использованием как обычных рентгеновских источников в лаборатории рентгеновской оптики и СИ Института кристаллографии РАН, так и СИ на источнике "Фабрика фотонов" (Цукуба, Япония), при непосредственном участии сотрудников лаборатории И.Ю. Харитонова и Л.В. Самойловой, а также С. Кикуты и Т. Ишикавы (Токийский университет) [2 - 6].

В следующем разделе рассмотрены основные уравнения динамической многоволновой дифракции и метод их решения. Способам решения основной экспериментальной проблемы многоволнового эксперимента - двумерной коллимации пучка - посвящен третий раздел. В четвертом разделе приведены результаты первых дифрактометрических измерений интенсивностей пучков при аномальном прохождении рентгеновских лучей в условиях шестиволновой дифракции. Впервые получено весьма хорошее количественное совпадение экспериментальных результатов с теоретическим расчетом.

Измерение выхода вторичных излучений в условиях многоволновой дифракции (многоволновая модификация метода стоячих рентгеновских волн) представляет собой самостоятельную экспериментальную задачу. В разделе 5 представлены первые результаты измерения выхода фотоэлектронов в условиях трехволновой дифракции рентгеновских лучей. Здесь же описан метод расчета выхода вторичных излучений в многоволновой геометрии и проведено сравнение теории с экспериментом.

Главным недостатком стандартного двухволнового рентгеновского эксперимента является потеря фазовой информации. Метод стоячих рентгеновских волн дает фазовую информацию, но при этом требует значительного усложнения эксперимента, связанного с необходимостью измерения выхода вторичных излучений. Многоволновая дифракция позволяет решить фазовую проблему без использования вторичных процессов. Наиболее оптимальный путь решения этой проблемы применительно к почти совершенным монокристаллам описан в шестом разделе.

2. ТЕОРИЯ

Динамическая теория дифракции рентгеновских лучей первоначально развивалась как феноменологическая (более подробно историю вопроса см. в [1, 7]). Впоследствии появилась строгая теория, которая наиболее последовательно была представлена в работе Кагана и Афанасьева [8]. В этой теории стартовым является уравнение Максвелла для амплитуды электрического поля рентгеновской волны в обратном пространстве $E(\mathbf{k}, \omega)$, т.е.

$$(k^2 - K^2) E(\mathbf{k}, \omega) - \mathbf{k} (\mathbf{k} \cdot E(\mathbf{k}, \omega)) = (4\pi i \omega / c^2) \mathbf{j}(\mathbf{k}, \omega), \quad (1)$$

где $K = \omega/c = 2\pi/\lambda$, λ - длина волны. В правой части стоит компонента Фурье плотности индуцированного тока $\mathbf{j}(\mathbf{k}, \omega)$, которая строго вычисляется как квантовомеханическое среднее от оператора плотности тока по состоянию кристалла в поле излучения. С учетом слабости взаимодействия рентгеновских лучей с кристаллом можно пренебречь вторым членом в (1) (непоперечностью) и вычислять ток в линейном по полю приближении. Для строго периодического монокристалла в общем случае имеем соотношение

$$j^i(\mathbf{k}_0, \omega) = (c^2 K^2 / 4\pi i \omega) \sum_{mj} \chi_{\omega}^{ij}(\mathbf{k}_0, \mathbf{k}_m) E^j(\mathbf{k}_m, \omega), \quad (2)$$

где $\mathbf{k}_m = \mathbf{k}_0 + \mathbf{h}_m$, \mathbf{h}_m - вектор обратной решетки с номером m (умноженный на 2π), $\chi_{\omega}^{ij}(\mathbf{k}_0, \mathbf{k}_m)$ - компонента Фурье комплексного тензора поляризуемости кристалла, которая может быть вычислена с учетом всех процессов взаимодействия рентгеновских лучей с кристаллом (подробнее см. [8, 9]).

Подставляя (2) в (1), получаем бесконечную систему уравнений для амплитуд $E(\mathbf{k}_m, \omega)$. Однако в обычном случае все амплитуды $E(\mathbf{k}_m) \equiv E_m$ будут малы по сравнению с E_0 , поскольку $(\mathbf{k}_0^2 - K^2) \approx \chi_0 K^2$, а $(\mathbf{k}_m^2 - K^2) = 2\mathbf{k}_0 \mathbf{h}_m + \mathbf{h}_m^2$ порядка K^2 . Таким образом, отношение $E_m/E_0 \approx \chi_0 \approx 10^{-5}$, что вполне достаточно для того, чтобы пренебречь всеми рассеянными волнами по сравнению с E_0 . Ситуация меняется, если кристалл ориентирован относительно вектора падающей волны \mathbf{k}_0 таким образом, что для вектора обратной решетки с номером n также выполняется условие

$$(\mathbf{k}_n^2 - K^2) \approx \chi_0 K^2. \quad (3)$$

В этом случае амплитуды E_0 и E_n будут иметь сравнимые величины, и необходимо решать систему из двух векторных уравнений. Возникает двухволновая дифракция с одним дифрагированным пучком.

Легко убедиться непосредственно, что для любой длины волны излучения простым поворотом

кристалла вокруг двух взаимно перпендикулярных осей можно удовлетворить условию (3) для двух векторов обратной решетки одновременно, например, с номерами n и l . В этом случае два дифрагированных пучка будут сильными, и возникает трехволновая дифракция. Реальная ситуация, однако, несколько сложнее. Одновременное выполнение условий $\mathbf{k}_0^2 = \mathbf{k}_n^2 = \mathbf{k}_l^2 = K^2$ означает, что в обратной решетке кристалла через три узла $0, N, L$ проведена окружность, которая является сечением сферы Эвальда, т.е. сферы с радиусом K . В ряде случаев из-за высокой симметрии обратной решетки этот круг может пройти и еще через несколько ее узлов. Тогда дифракция будет не 3-волновой, а 4-, 5-, 6-волновой и т.д. Изящный метод нахождения дополнительных узлов описан в книге Пинскера [1].

Принимая во внимание это обстоятельство, рассмотрим сразу случай, когда условие (3) выполняется для $N - 1$ векторов обратной решетки и реализуется N -волновая дифракция в плоскопараллельной пластине с нормалью к входной поверхности \mathbf{n}_0 . В этом случае волновой вектор падающей волны в кристалле \mathbf{k}_0 выражается через волновой вектор вакуумной волны \mathbf{K}_e соотношением $\mathbf{k}_0 = \mathbf{K}_e + \varepsilon \mathbf{n}_0/2$. Переходя от векторных амплитуд электрического поля к скалярным с помощью разложения

$$\mathbf{E}(\mathbf{k}_m) = \gamma_m^{-1/2} \sum_{s=\pi, \sigma} B_{ms} \mathbf{e}_{ms}, \quad (4)$$

где $\mathbf{e}_{m\pi}$ и $\mathbf{e}_{m\sigma}$ – взаимно перпендикулярные единичные векторы поляризации, перпендикулярные \mathbf{k}_m , $\gamma_m = (\mathbf{k}_m \cdot \mathbf{n}_0)/K$, систему из $2N$ самосогласованных уравнений можно представить в виде задачи на собственные значения некоторой матрицы

$$\varepsilon B_{ms} = \sum_{m's'} K \gamma_m^{-1/2} \gamma_{m'}^{-1/2} (-\alpha_m \delta_{mm'}^{ss'} + \chi_{mm'}^{s's'}) B_{m's'}. \quad (5)$$

Здесь $\delta_{mm'}^{ss'}$ – символ Кронекера, α_m – параметр, характеризующий степень невыполнения условия Брэгга для вектора обратной решетки с номером m ,

$$\alpha_m = ((\mathbf{K}_e + \mathbf{h}_m)^2 - K^2) / K^2, \quad (6)$$

а матрица

$$\chi_{mm'}^{ss'} = \sum_{ij} e_{ms}^i \chi_{\omega}^{ij}(\mathbf{k}_m, \mathbf{k}_{m'}) e_{m's'}^j, \quad (7)$$

составлена из элементов, которые в кинематическом приближении представляют собой амплитуду рассеяния дифрагированных пучков. По этой причине будем называть эту матрицу кинематической матрицей рассеяния.

Задача (5) имеет $2N$ решений. Соответственно в кристалле возникает $2N$ различных простран-

ственных конфигураций волнового поля излучения (стоячих рентгеновских волн), каждая из которых различным способом взаимодействует с атомами кристалла и, в частности, по-разному поглощается при распространении в нем. Полная амплитуда электрического поля рентгеновской волны представляет собой суперпозицию всех стоячих волн с различными коэффициентами a_j , которые называются степенями возбуждения. Конкретные значения этих величин определяются из граничных условий на тех поверхностях пластины, на которые падают внешние пучки. Построим из амплитуд внешних пучков вектор $\mathbf{D}_{ms} \gamma_m^{-1/2}$. Тогда системе уравнений для определения величин a_j можно записать в виде

$$\sum_j B_{msj} \exp(i\varepsilon_j t_m/2) a_j = \mathbf{D}_{ms}, \quad (8)$$

где $t_m = 0$, если $\gamma_m > 0$ и $t_m = t$, если $\gamma_m < 0$, t – толщина пластины кристалла. Неизвестные амплитуды дифрагированных пучков равны

$$R_{ms} = \sum_j B_{msj} \exp(i\varepsilon_j z_m/2) a_j, \quad (9)$$

где $z_m = t$, если $\gamma_m > 0$ и $z_m = 0$, если $\gamma_m < 0$. Коэффициент отражения скалярной волны (ms) в волну ($m's'$) равен квадрату модуля отношения неизвестной амплитуды к известной

$$P(m's', ms) = \left| \frac{R_{m's'}}{D_{ms}} \right|^2. \quad (10)$$

Полное решение граничной задачи проще всего получить средствами алгебры матриц. Перепишем уравнения (5), (8), (9) в матричном виде

$$\mathbf{B} * \varepsilon = \mathbf{G} * \mathbf{B}, \quad \mathbf{X} * \mathbf{A} = \mathbf{D}, \quad \mathbf{R} = \mathbf{Y} * \mathbf{A}, \quad (11)$$

где $\varepsilon_{jj} = \varepsilon_j \delta_{jj}$ – диагональная матрица собственных значений. Вычисляя вектор \mathbf{A} с помощью обратной матрицы \mathbf{X}^{-1} , получаем неизвестный вектор \mathbf{R} в виде

$$\mathbf{R} = \mathbf{Y} * \mathbf{X}^{-1} * \mathbf{D} = \mathbf{M} * \mathbf{D}, \quad \mathbf{M} = \mathbf{Y} * \mathbf{X}^{-1}. \quad (12)$$

Таким образом, мы получили новую матрицу \mathbf{M} , которая непосредственно связывает неизвестные амплитуды дифрагированных пучков с известными амплитудами падающих пучков. Вполне естественно назвать эту матрицу динамической матрицей рассеяния.

В стандартном рентгенодифракционном эксперименте на кристалл обычно падает только один пучок. Однако это совсем не так, если кристаллическая пластинка представляет собой один из слоев многослойной кристаллической системы. Не останавливаясь на деталях, отметим лишь, что точное решение этой сложной задачи было получено в работе [10]. Похожая ситуация может возникнуть в многокристальной системе.

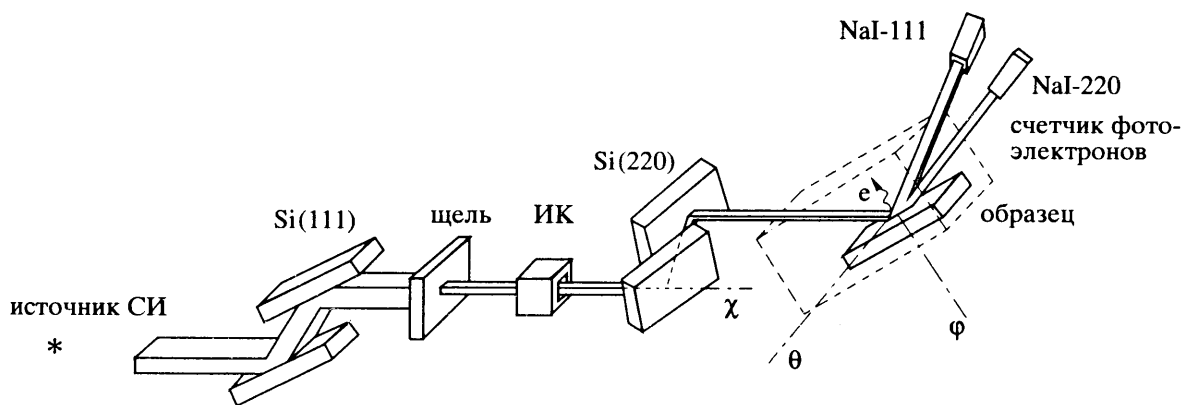


Рис. 1. Рентгенооптическая схема многоволнового эксперимента, использующая для двумерной коллимации щелевой кристалл-коллиматор (ИК – ионизационная камера).

3. РЕНТГЕНОВСКАЯ ОПТИКА МНГОВОЛНОВОГО ЭКСПЕРИМЕНТА

Для наблюдения динамических эффектов в обычном двухволновом эксперименте необходимо выполнение двух основных требований к падающему на образец пучку. Во-первых, угловое распределение интенсивности должно быть меньше, чем ширина собственной кривой отражения исследуемого кристалла. Это достаточно легко достигается путем использования асимметричного кристалла-коллиматора [11]. Во-вторых, спектральное распределение $\Delta\lambda/\lambda$ должно быть такого же порядка или менее. В двухволновом эксперименте выполнение второго условия можно избежать, если использовать бездисперсионную схему, в которой дифракционные плоскости кристалла-коллиматора и образца параллельны. Неудивительно поэтому, что широкое распространение в двухволновых экспериментах получили двух- или многокристалльные бездисперсионные схемы с асимметричными кристаллами.

В многоволновых экспериментах оба перечисленных условия должны выполняться одновременно для всех отражений. Прежде всего это означает необходимость угловой коллимации падающего пучка одновременно в нескольких направлениях. Авторы [12] в трехволновом (333/511) эксперименте для уменьшения горизонтальной расходимости пучка СИ использовали узкую щель. Коллимация дополнительным кристаллом использовалась авторами [13] и [14] для решения фазовой проблемы. Наилучшая угловая коллимация 0.5 и 8 угл. с соответственно в горизонтальной и вертикальной плоскостях была достигнута в [14] путем использования асимметричного кристалла Si(111) и щелевого кристалла-коллиматора Si(220), ориентированных взаимноперпендикулярно. Тем не менее, проблема дисперсии осталась нерешенной.

В наших экспериментах [5] использовались две многокристалльные схемы, представленные на

рис. 1 и 2 применительно к методу стоячих рентгеновских волн. В первой (рис. 1) для монохроматизации пучка СИ от поворотного магнита и коллимации в вертикальной плоскости в экспериментах по трехволновой (111/220) дифракции использовался двухкристалльный монохроматор с симметричными Si(111) кристаллами. Для коллимации в горизонтальной плоскости использовался Si(220) щелевой кристалл-коллиматор с двукратным отражением. Для того чтобы сделать схему полностью бездисперсионной, щелевой кристалл-коллиматор был наклонен таким образом, чтобы дифракционные плоскости (220) коллиматора и образца были параллельны. Это осуществлялось поворотом кристалла вокруг направления падающего пучка на соответствующий угол. Таким образом, при обработке экспериментальных данных оказалось возможным учитывать только угловую расходимость падающего пучка. Последняя определялась как произведение кривых отражения двухкристалльного монохроматора R_{111} и щелевого кристалла-коллиматора R_{220} . На двумерной (θ , ϕ) диаграмме распределение интенсивности падающего пучка представляется как область пересечения двух полос (рис. 8б). Именно эта область использовалась в процедуре свертки при обработке результатов теоретических расчетов для сравнения с экспериментальными данными. Отличное совпадение теории с экспериментом [5] подтверждает эффективность данной схемы.

Основным недостатком рассмотренного подхода является отсутствие универсальности. Поэтому большой интерес представляет поиск схемы коллимации, которую можно было бы использовать для самых различных многоволновых комбинаций. Наиболее перспективным представляется использование для этих целей самих многоволновых эффектов. Известно, в частности [15] (см. также следующий раздел), что угловая область аномального прохождения рентгеновских лучей в условиях шестиволновой дифракции

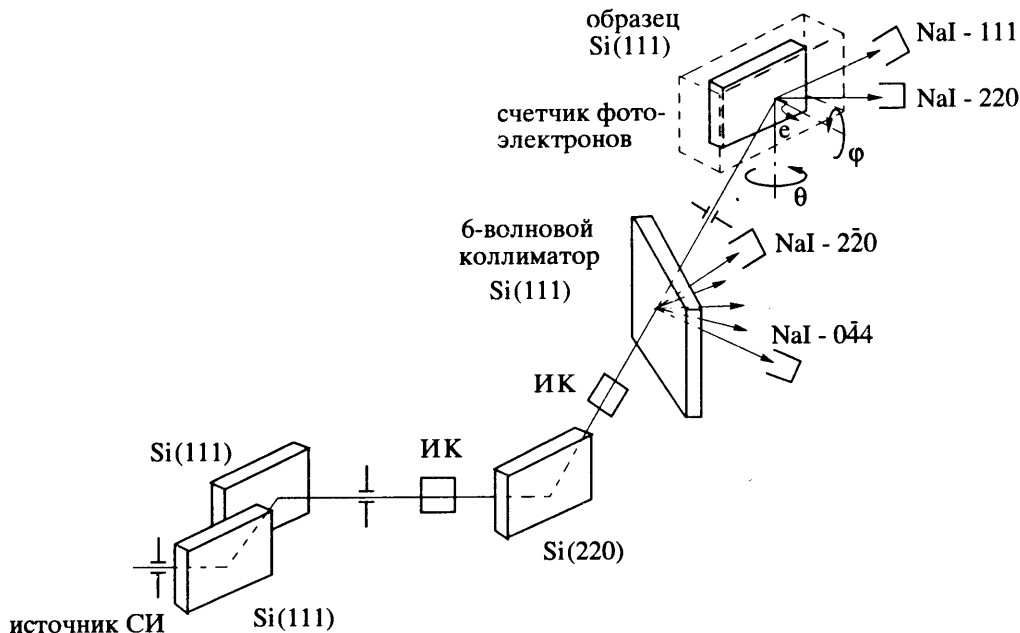


Рис. 2. Рентгенооптическая схема многоволнового эксперимента на основе шестиволнового коллиматора.

сильно ограничена в двух взаимно перпендикулярных направлениях. Это явление и было использовано во второй рентгенооптической схеме (рис. 2).

Пучок СИ от вертикального вивггера, монохроматизированный с помощью двух симметричных Si(111) кристаллов, отклонялся кристаллом Si(220) на последующие коллиматор и образец. В качестве коллиматора использовался кристалл Si толщиной 5 мм с ориентацией поверхности (111), установленный в положение шестиволновой дифракции по Лауэ. На последующий кристалл-образец падал аномально прошедший прямой пучок. Данная схема использовалась нами как в экспериментах по изучению самой шестиволновой дифракции, так и в экспериментах по трехволновой (111/220) дифракции. Необходимо отметить, что в общем случае эта схема является дисперсионной. Однако, как показали наши исследования [5], шестиволновой коллиматор осуществляет дополнительную монохроматизацию пучка (до уровня $\Delta\lambda/\lambda = 1.5 \times 10^{-5}$). В случае трехволновой (111/220) дифракции эта величина много меньше угловых областей изучаемых отражений, что позволяет пренебречь немонахроматичностью и учитывать только угловую расходимость.

В заключение этого раздела отметим, что вторая схема является принципиально новой и использовалась нами впервые, однако многообразие возможных рентгенооптических схем для многоволновых экспериментов не ограничивается рассмотренными выше случаями. С другой стороны, развитие способов двумерной угловой коллимации может быть с успехом использовано в других областях рентгеновской дифракции (ди-

фракция в условиях полного внешнего отражения, топография и т.д.).

4. АНОМАЛЬНОЕ ПРОХОЖДЕНИЕ РЕНТГЕНОВСКИХ ЛУЧЕЙ ПРИ ШЕСТИВОЛНОВОЙ ДИФРАКЦИИ

Явление аномального прохождения рентгеновских лучей через толстый поглощающий кристалл в условиях двухволновой дифракции было впервые обнаружено Борманом в 1941 г. [16] и с тех пор детально исследовано как теоретически, так и экспериментально. Физическая причина этого эффекта заключается в возбуждении в кристалле поля стоячей волны, интенсивность которого модулирована вдоль вектора дифракции и близка к нулю на отражающих плоскостях. Более сложная структура волнового поля в условиях многоволновой дифракции открывает новые возможности для дальнейшего уменьшения взаимодействия рентгеновского излучения с атомами кристалла.

С этой точки зрения наибольший интерес представляет случай шестиволновой (220, 242, 044, $\bar{2}24$, $\bar{2}02$) дифракции. Внутри кристалла возбуждаются 12 блоховских волн (шесть для каждого состояния поляризации), каждая из которых обладает собственным коэффициентом поглощения. При этом структура наиболее слабопоглощаемого поля такова, что не только амплитуда, но также первая и вторая производные амплитуды по координатам равны нулю в узлах кристаллической решетки. В результате фотоэлектрическое поглощение оказывается сильно подавленным, а

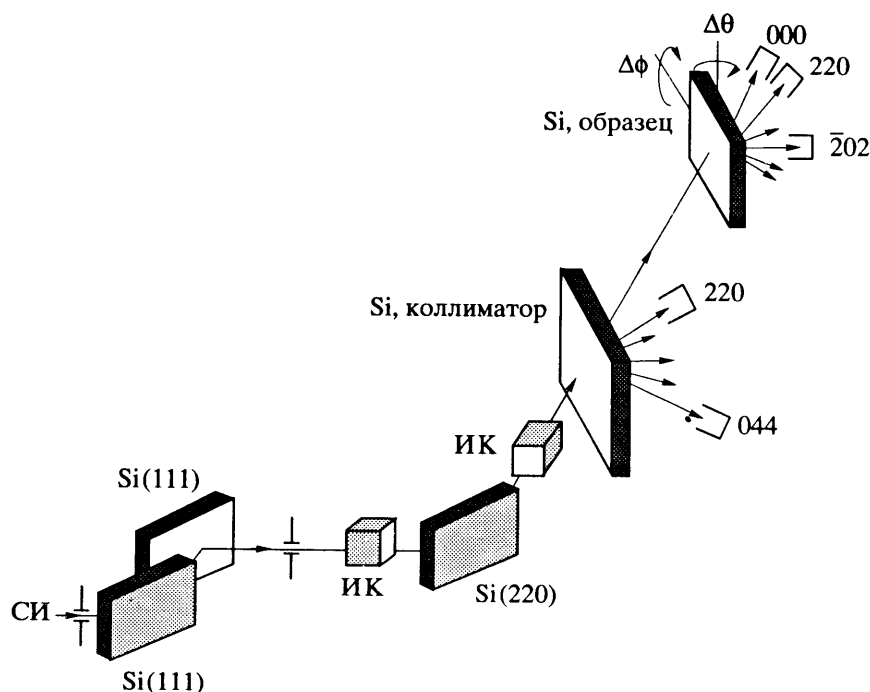


Рис. 3. Экспериментальная схема для исследования аномального прохождения в условиях шестиволновой дифракции.

минимальный коэффициент поглощения ограничен лишь комптоновским рассеянием [17, 18].

Уникальные свойства шестиволновой дифракции привлекали внимание многих исследователей (см. ссылки в [1, 7]). При этом использовалась наиболее простая экспериментальная схема, основанная на регистрации линий аномального прохождения на фотопластинке. Теоретический анализ экспериментальных результатов показал [19, 20], что в данном случае эффект аномального прохождения маскируется оптическими эффектами фокусировки и дефокусировки, делаая практически невозможным его количественное исследование. Остается, таким образом, единственный путь: прямое измерение интенсивности прошедшего пучка в дифрактометрическом эксперименте. Такие измерения впервые выполнены недавно с использованием СИ [2].

Схема эксперимента представлена на рис. 3. Особенности шестиволнового коллиматора рассмотрены в предыдущем разделе. Здесь лишь отметим, что использование исследуемого эффекта для угловой коллимации позволяло надеяться, что степень этой коллимации будет достаточной для исследований самого эффекта.

В качестве образца использовались бездислокационные кристаллы Si толщиной 3 и 5 мм. В эксперименте измерялись $\Delta\theta$ -зависимости интенсивности прошедшего пучка для различных величин $\Delta\phi$. Измерения проводились для длин волн $\lambda = 0.93$ и 1.15 \AA , что соответствует $\mu t = 12$ и 24 для кристалла с $t = 3$ мм и $\mu t = 19.4$ и 39.7 для $t = 5$ мм.

На рис. 4 представлено экспериментальное двумерное распределение интенсивности прошедшего пучка для случая $\mu t = 12$. Величина $\Delta\phi = 0$ соответствует центру шестиволновой области. Относительно небольшая величина μt позволяет наблюдать особенности распределения интенсивности как внутри, так и вне шестиволновой области и осуществить детальное сравнение с теорией. Как следует из рисунка, интенсивность пика в центре шестиволновой области более чем в 3 раза превышает интенсивность 220 пиков. Этот факт однозначно свидетельствует о существовании эффекта усиления аномального прохождения, хотя для данной величины μt он и выражен в слабой форме.

Для сравнения эксперимента с теорией рассчитывались коэффициенты прохождения $P(0p, 0s, \Delta\theta, \Delta\phi)$, определяемые как отношение интенсивности p -поляризованной плоской волны в прямом пучке на выходной поверхности кристалла к интенсивности s -поляризованной волны на входной поверхности (см. формулу (10)). С учетом введенных в разделе 2 обозначений они вычисляются по следующей формуле:

$$P(0p, 0s, \Delta\theta, \Delta\phi) = \sum_j [B_{0pj} B_{0sj}]^2 \exp(-\mu_j t). \quad (13)$$

В данном случае чисто лауэвской геометрии для упрощения расчетов практически без потери точности можно использовать приближение, в котором задача (5) решается для непоглощающего кристалла, т.е. в нулевом порядке по отношению χ_i/χ_r . Коэффициенты поглощения μ_j для каждого

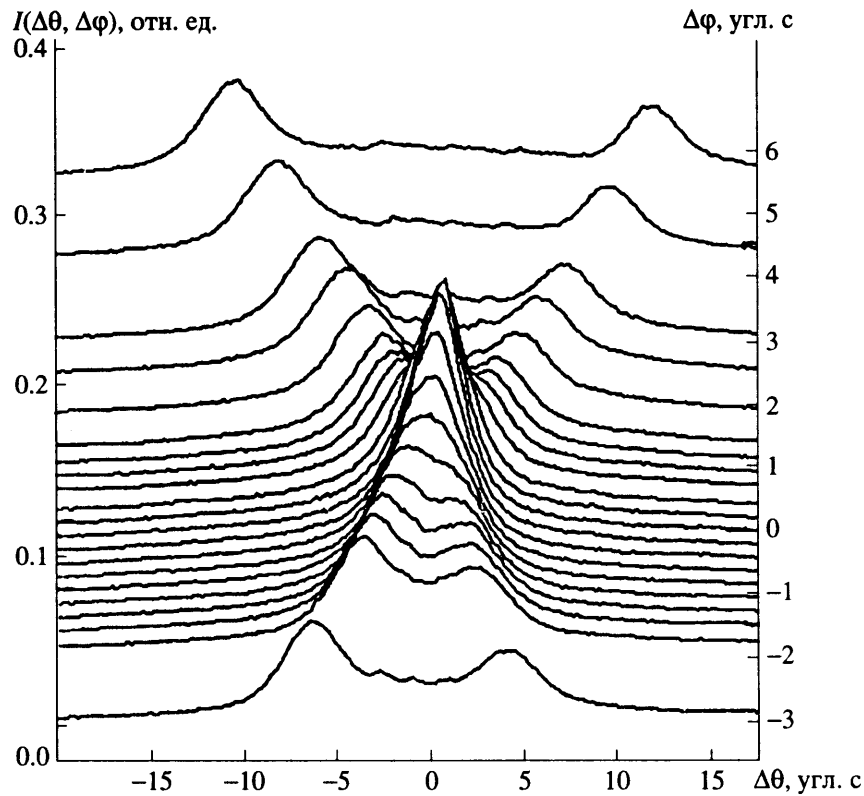


Рис. 4. Экспериментальное двумерное $(\Delta\theta, \Delta\phi)$ распределение коэффициента прохождения в условиях шестиволновой дифракции.

поля стоячей волны рассчитываются в первом порядке как диагональные элементы матрицы, описывающей поглощение,

$$\mu_j = \sum_{mp} \sum_{ns} B_{mpj} [K\gamma_m^{-1/2} \gamma_n^{-1/2} \chi_{imn}^{ps}] B_{nsj}. \quad (14)$$

На рис. 5 представлено расчетное двумерное распределение интенсивности прошедшего через образец пучка для случая падающей σ -поляризованной плоской волны (так называемые собственные кривые). Хорошо видно наличие пяти пересекающихся полос, соответствующих угловым областям двухволнового эффекта Бормана. Полосы, соответствующие слабым отражениям, более узкие, но максимум прохождения довольно высокий, что связано с достаточно низким значением μ . На экспериментальных кривых пики, соответствующие слабым отражениям, не видны. Это связано с недостаточной коллимацией падающего пучка. Для сравнения теоретических расчетов с экспериментом необходимо вычислить двумерную свертку коэффициента прохождения образца с коэффициентом прохождения шестиволнового коллиматора $P_c(s, \sigma, \Delta\theta, \Delta\phi)$. Последняя вычисляется по формуле

$$I(\Delta\theta, \Delta\phi) = \left(\sum_{ps} \int_R d\xi d\eta P(0p, 0s, \Delta\theta + \xi, \Delta\phi + \eta) \times P_c(s, \sigma, \xi, \eta) \right) \times \left(\sum_s \int_R d\xi d\eta P_c(s, \sigma, \xi, \eta) \right)^{-1}. \quad (15)$$

Эта формула учитывает изменение состояния поляризации падающего σ -поляризованного пучка СИ при прохождении через кристалл-коллиматор. Угловой диапазон R , используемый в расчетах, существенно влияет на результат усреднения. Однако с учетом немонахроматичности излучения его величина точно неизвестна, и следует брать угловую область шире, чем это следует из оптической схемы предколлимации монохроматического излучения. Такая проблема возникает только для малых значений μ .

Результат сравнения теоретических и экспериментальных кривых для трех значений $\Delta\phi$ представлен на рис. 6. Достаточно хорошее согласие теории и эксперимента подтверждает

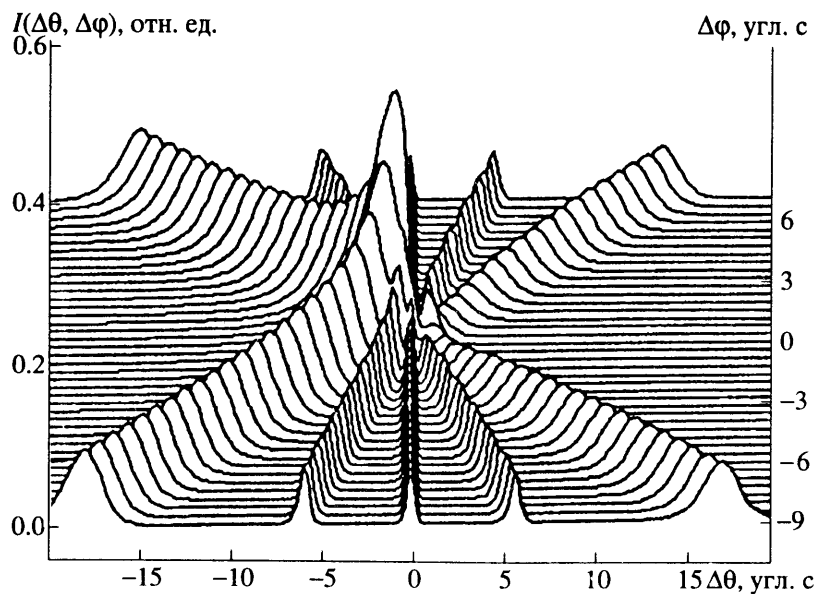


Рис. 5. Теоретическое двумерное $(\Delta\theta, \Delta\phi)$ распределение коэффициента прохождения σ -поляризованной плоской волны в условиях шестиволновой дифракции.

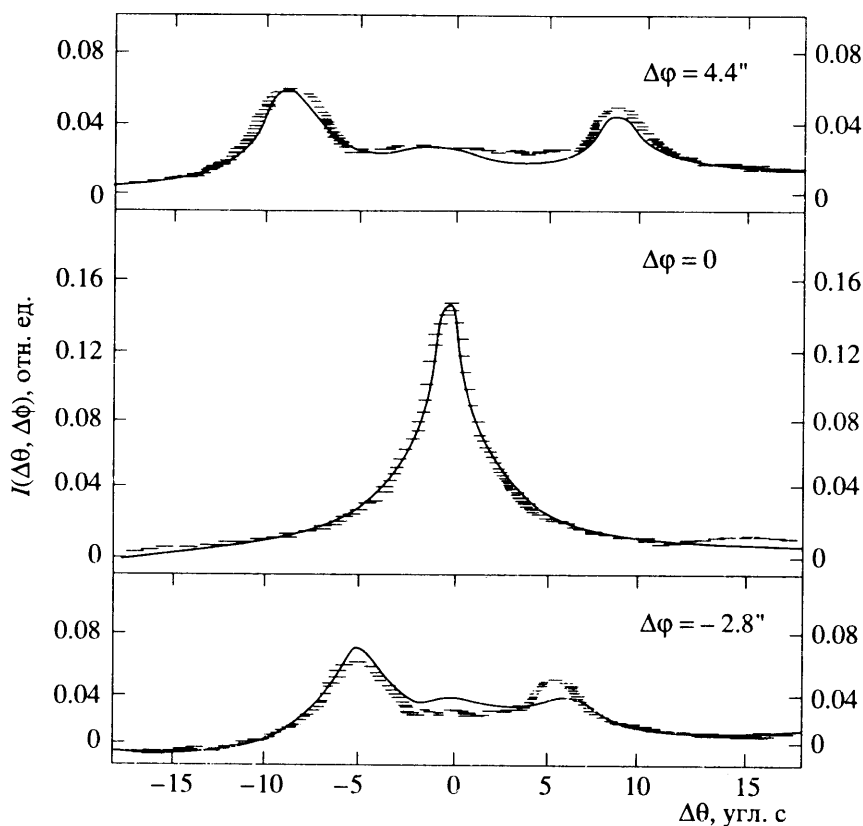


Рис. 6. Сравнение экспериментальных (штриховые) и теоретических (сплошные линии) кривых коэффициента прохождения с учетом двумерной свертки.

эффективность предложенного экспериментального подхода к количественному изучению эффекта аномального прохождения при шестиволновой дифракции. Наблюдения большего усиления эффекта аномального прохождения требует больших величин μ . Анализ этого случая будет проведен в ближайшее время.

5. МЕТОД СТОЯЧИХ РЕНТГЕНОВСКИХ ВОЛН В УСЛОВИЯХ МНОГОВОЛНОВОЙ ДИФРАКЦИИ

В методе стоячих рентгеновских волн наряду с интенсивностью дифрагированных пучков измеряется интенсивность неупругих каналов

рассеяния (вторичных процессов). Метод расчета этой величины теоретически сводится к следующему [21, 22]. Вычисляется интенсивность суммарного поля излучения в некоторой точке \mathbf{r} вблизи положения атомного ядра \mathbf{r}_A , расположенного на глубине z

$$F(\mathbf{r}) = \left| \sum_m \mathbf{E}(\mathbf{k}_m) \exp(i\mathbf{k}_m \mathbf{r}) \right|^2 = \sum_{mn} \mathbf{E}_m^*(z) \mathbf{E}_n(z) \exp(i[\mathbf{h}_n - \mathbf{h}_m] \mathbf{r}). \quad (16)$$

Здесь необходимо усреднить фазовый множитель с учетом конкретного распределения электронной плотности атома и вероятности неупругого процесса, а также тепловых колебаний.

Результат можно записать в виде

$$I_s(z) = \langle F(\mathbf{r}) \rangle = \sum_m |\mathbf{E}_m(z)|^2 + \sum_{mn} \mathbf{E}_m^*(z) \mathbf{E}_n(z) \frac{\chi_{imn}(s)}{\chi_{i00}(s)}. \quad (17)$$

Здесь штрих у знака суммы означает исключение члена с $m = n$, $\chi_{imn}(s)$ описывает вклад в мнимую часть фурье-компоненты поляризуемости за счет рассматриваемого процесса поглощения рентгеновских лучей, обозначаемого буквой s . Наконец, для вычисления интенсивности выхода вторичного излучения из кристалла, результат нужно проинтегрировать по глубине кристалла с учетом вероятности выхода вторичного излучения $P_s(z)$

$$I_{SR}^s = \int_0^t dz P_s(z) I_s(z). \quad (18)$$

В случае измерения фотоэлектронной эмиссии с входной поверхности кристалла при дифракции по Брэггу (на отражение) глубина выхода вторичного излучения намного меньше глубины отражения, а отношение поляризуемостей близко к единице. При этом угловая зависимость вторичного процесса просто отражает угловую зависимость интенсивности рентгеновского волнового поля в точках расположения атомов в приповерхностном слое кристалла.

$$I_{ph} \approx \left| \sum_m \mathbf{E}_m(0) \right|^2. \quad (19)$$

Если же атом смещен из узла решетки, либо узлы решетки в приповерхностном слое смещены относительно нижележащей матрицы, в которой формируются стоячие рентгеновские волны, то формула изменится

$$I_{ph} \approx \left| \sum_m \mathbf{E}_m(0) \exp[i\mathbf{h}_m \mathbf{u}(0)] \right|^2. \quad (20)$$

Дополнительные фазовые множители, учитывающие смещение атомов, в корне изменяют характер угловой зависимости, которая, в отличие от двухволнового случая, чувствительна к двум координатам смещения в плоскости векторов обратной решетки. Таким образом, открывается возможность двумерной локализации.

В работе [12] исследовался выход флуоресценции из кристалла Ge в условиях трехволновой (511/333) дифракции. В наших экспериментах измерялся выход фотоэлектронов, возбужденных стоячей рентгеновской волной в условиях трехволновой (111/220) дифракции [3, 6]. В качестве образца использовался совершенный кристалл Si с ориентацией поверхности (111). Выход K -фотоэлектронов измерялся с помощью газового пропорционального счетчика. Конструкция счетчика [23], специально разработанная для многоволновых измерений, позволяла осуществлять с достаточной точностью поворот кристалла вокруг ϕ -оси, перпендикулярной поверхности, без нарушения герметичности.

На рис. 7 представлен ряд кривых выхода и кривых (111) и (220) отражений, измеренных в центральной области трехволновой дифракции при различных значениях азимутального угла $\Delta\phi$ (точка $\Delta\theta = \Delta\phi = 0$ соответствует центру трехволновой области). Поскольку глубина выхода фотоэлектронов (≈ 0.2 мкм) мала, фотоэмиссионные кривые отчетливо демонстрируют интерференционное взаимодействие волновых полей в кристалле. Так, наблюдается значительное уменьшение выхода фотоэлектронов для областей полного отражения, соответствующих меньшим углам падения (для кривых 220 при $\Delta\phi > 0$ и кривых 111 при $\Delta\phi < 0$ на рис. 7). С другой стороны, при точном условии трехволновой дифракции (рис. 7в) выход фотоэлектронов в полтора раза превышает соответствующее значение для двухволновой дифракции.

Одно из преимуществ использования многоволновой схемы в методе стоячих волн заключается в возможности измерения кривых выхода для нескольких рефлексов в условиях практически двухволновой дифракции. На рис. 7е представлены угловая зависимость выхода фотоэлектронов и кривые отражения для достаточно большого отстройки от точного трехволнового положения ($\Delta\phi = 30$ угл. с). Полученная экспериментальная кривая достаточно хорошо совпадает с кривыми, рассчитанными по двухволновой теории. Очевидно, что с увеличением угла $\Delta\phi$ точность двухволнового приближения будет возрастать. Таким образом, за один угловой проход регистрируются кривые выхода вторичного процесса для нескольких отражений. Это может оказаться особенно

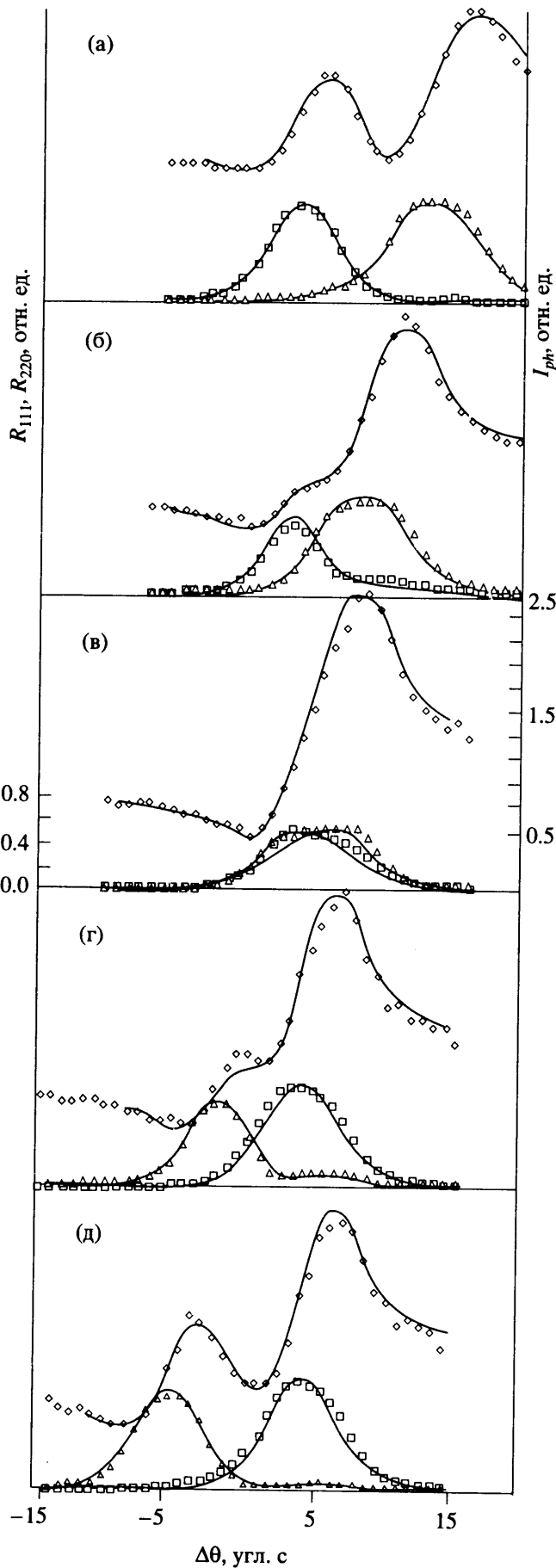


Рис. 7. Кривые выхода фотоэлектронов (ромбы) и кривые отражения (111 – квадраты, 220 – треугольники) в условиях трехволновой (111/220) дифракции для различных углов $\Delta\phi$: -12.8 (а), -7 (б), -0.5 (в), 5.3 (г), 12 угл. с (д), е – то же вне области сильного взаимодействия ($\Delta\phi = 30$ угл. с), штриховой линией показан расчет по двухволновой теории.

полезным, когда необходимо изучать происходящие во времени структурные изменения.

6. ИЗМЕРЕНИЕ ФАЗОЧУВСТВИТЕЛЬНЫХ КРИВЫХ МЕТОДОМ ТРЕХВОЛНОВОЙ ДИФРАКЦИИ

Трехволновая дифракция позволяет реализовать ситуацию, близкую к двухволновому методу стоячих рентгеновских волн, но без измерения вторичных процессов. Такая ситуация возникает, когда для одного пучка H условие Брэгга (3) выполняется хорошо, а для другого пучка G – плохо. В этом случае пучок G можно рассматривать в кинематическом приближении. Не влияя на сильные пучки 0 и H , он сам порождается их когерентной суперпозицией. Следовательно, его угловая зависимость в существенной степени формируется угловой зависимостью фазы амплитуды отражения, что в свою очередь позволяет измерять фазу структурного фактора, то есть прямым методом решить фазовую проблему структурного анализа. Это было наглядно продемонстрировано в [14].

Более того, аналогия этого метода с методом стоячих рентгеновских волн, оказалась более глубокой. Как было показано в [10, 22, 24], этот метод очень удобен для изучения структуры плавно нарушенных приповерхностных слоев, поскольку слабый пучок формируется вблизи поверхности и глубина отражения обратно

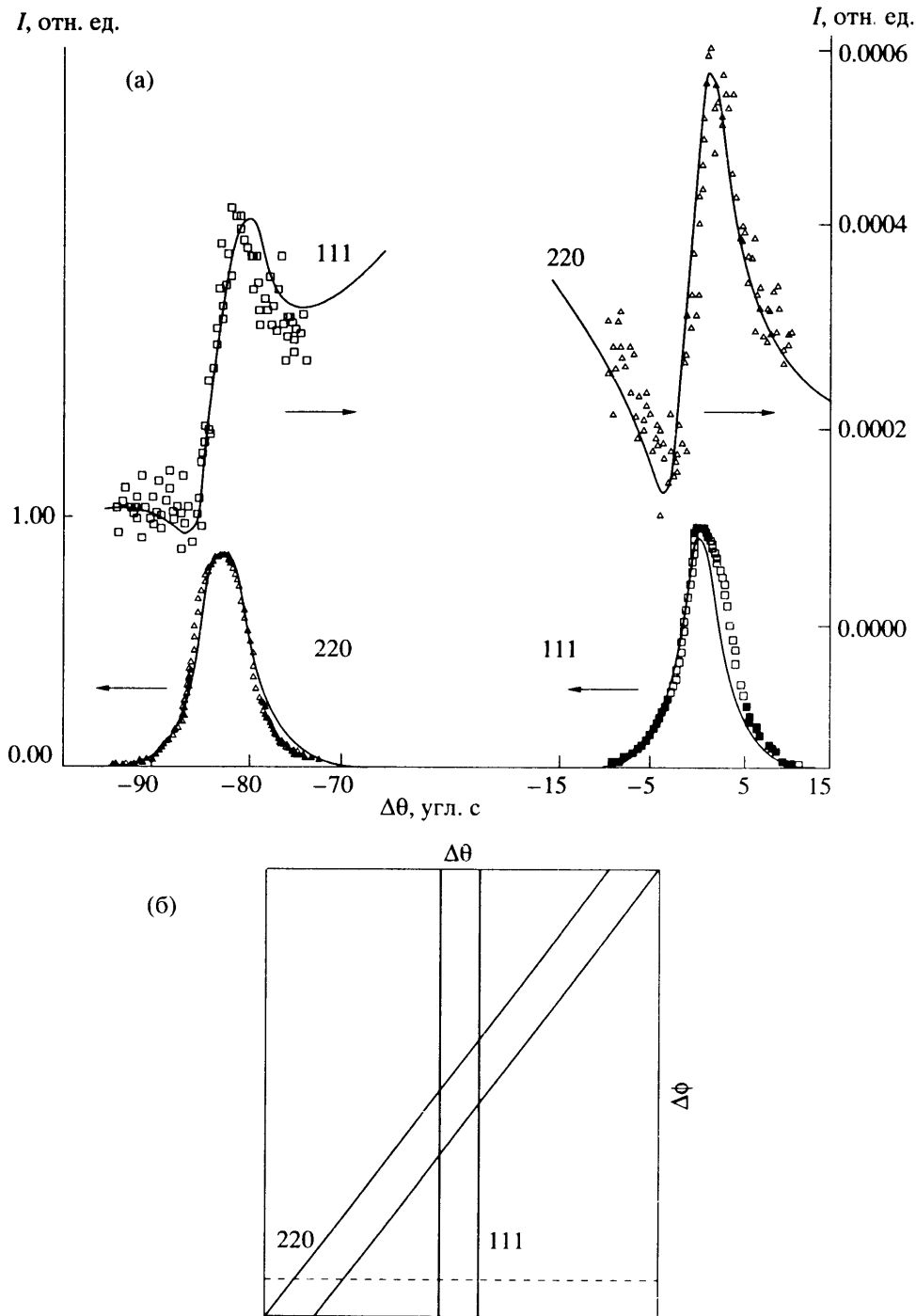


Рис. 8. Угловые зависимости интенсивностей “хвостов” кривых отражения (111) и (220) в угловых областях полного отражения (220) и (111) соответственно (а) и взаимное расположение областей отражения на $(\Delta\theta, \Delta\phi)$ диаграмме (б). Штриховая линия соответствует $\Delta\theta$ -сканированию.

пропорциональна углу отстройки от угла Брэгга в полной аналогии с известным методом асимптотической дифракции [25]. Уже при относительно небольшой отстройке эффективная глубина отражения становится меньше глубины выхода фотоэлектронов, и можно ограничиться приближением нулевой глубины отражения. В этом приближении интенсивность слабого пучка G определяется формулой

$$I_{gs}(z) \approx \sum_{p=\pi, \sigma} (\mathbf{e}_{gp} \mathbf{e}_{0s})^2 \times \left| \mathbf{E}_{0s}(0) + \mathbf{E}_{hs}(0) \frac{\chi_{gh}^{ps}}{\chi_{g0}^{ps}} \exp[-i\mathbf{h}\mathbf{u}(0)] \right|^2, \quad (21)$$

в которой используется обозначение (7), s – индекс двухволновой поляризации для пучков 0 и H ,

p – индекс поляризации пучка G . Как следует из формулы (21), для наблюдения аномальной угловой зависимости необходимо, чтобы все три отражения были разрешены.

До настоящего времени эксперименты по изучению структуры нарушенных поверхностных слоев этим методом не проводились. Что касается совершенных кристаллов, то существует достаточно много работ, в которых предлагался тот или иной способ прямого определения фазы структурного фактора. Однако дифрактометрический метод, аналогичный методу стоячих рентгеновских волн, который описан выше, был впервые использован в [14] в измерениях с помощью обычной рентгеновской трубки. Измерение кривых аномальной угловой зависимости, напоминающих фотоэмиссионные кривые, с использованием СИ и нового метода коллимации, описанного в разделе 3, впервые было выполнено в нашей работе [4].

Эксперимент был выполнен на кристалле кремния с ориентацией поверхности 111 в трехволновом случае (111, 220). Угловая зависимость обоеих пучков в двухволновых областях полного отражения показана на рис. 8а для угла отстройки от точного трехволнового условия $\Delta\theta = -115$ угл. с. Верхние кривые соответствуют слабым пучкам с аномальной угловой зависимостью, нижние – сильным пучкам, коэффициент отражения для которых близок к единице. Сплошные кривые вычислены по точным формулам многоволновой дифракции с учетом свертки с угловым распределением интенсивности после кристалла-коллиматора. На рис. 8б представлена двумерная ($\Delta\theta$, $\Delta\phi$) диаграмма, иллюстрирующая взаимное расположение (111) и (220) областей полного отражения и линии $\Delta\theta$ -сканирования (штриховая линия). Полученные кривые наглядно показывают, во-первых, фазочувствительный характер угловой зависимости слабых пучков, во-вторых, точное соответствие теоретическим расчетам (заметим, что в [14] детальное сопоставление с теорией отсутствовало). Это позволяет надеяться, что данный метод вполне сможет служить новым методом структурной диагностики слабонарушенных приповерхностных слоев.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Пинскер З.Г. Рентгеновская кристаллооптика. М.: Наука, 1982.
2. Kazimirov A.Yu., Kovalchuk M.V., Kohn V.G. et al. // Photon Factory Activity Report. 1991. V. 9. P. 238.
3. Kazimirov A.Yu., Kovalchuk M.V., Kohn V.G. et al. // Photon Factory Activity Report. 1991. V. 9. P. 239.
4. Kazimirov A.Yu., Kovalchuk M.V., Kohn V.G. et al. // Photon Factory Activity Report. 1991. V. 9. P. 240.
5. Kazimirov A.Yu., Kovalchuk M.V., Kharitonov I.Yu. et al. // Rev. Scient. Instrum. 1992. V. 63. № 1. P. 1019.
6. Kazimirov A.Yu., Kovalchuk M.V., Kohn V.G. et al. // Phys. Status Solidi. A. 1993. V. 135. P. 507.
7. Чжан Ш. Многоволновая дифракция рентгеновских лучей в кристаллах. М.: Мир, 1987.
8. Afanasev A.M., Kagan Yu. // Acta Cryst. A. 1968. V. 24. № 1. P. 163.
9. Колпаков А.В., Бушуев В.А., Кузьмин Р.Н. // УФН. 1978. Т. 126. № 3. С. 479.
10. Kohn V.G. // J. Moscow Phys. Soc. 1991. V. 1. № 4. P. 425.
11. Renninger M. // Z. Naturforsch. 1961. B. 160. S. 1110; Kohra K. // J. Phys. Soc. Japan. 1962. V. 17. P. 1322.
12. Greiser N., Materlik G. // Z. Phys. B. 1987. B. 66. S. 83.
13. Post B., Nicolosi J., Ladell J. // Acta Cryst. A. 1984. V. 40. P. 684.
14. Ковьев Э.К., Симонов В.И. // Письма в ЖЭТФ. 1986. Т. 43. С. 244.
15. Кон В.Г. // ФТТ. 1976. Т. 18. С. 2538.
16. Borrmann G. // Z. Phys. 1941. V. 42. P. 157.
17. Afanasev A.M., Kohn V.G. // Acta Cryst. A. 1977. V. A33. P. 178.
18. Кон В.Г. // Кристаллография. 1987. Т. 32. С. 844.
19. Кон В.Г. // ФТТ. 1977. Т. 19. С. 3567.
20. Kohn V.G., Toneyan A.H. // Acta Cryst. A. 1986. V. 42. P. 441.
21. Кон В.Г. // ФТТ. 1986. Т. 28. С. 3028.
22. Kohn V.G. // Phys. Status Solidi. A. 1988. V. 106. P. 31.
23. Ковальчук М.В., Николаенко А.М., Семилетов А.С. и др. // ПТЭ. 1991. № 3. С. 176.
24. Kohn V.G., Samoiloa L.V. // Phys. Status Solidi. A. 1992. V. 133. P. 9.
25. Афанасьев А.М., Александров П.А., Имемов Р.М. Рентгенодифракционная диагностика субмикронных слоев. М.: Наука, 1989.