

МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ

имени М.В.ЛОМОНОСОВА

Физический факультет

Кафедра оптики, спектроскопии и физики наносистем

ДИССЕРТАЦИЯ

Разработка алгоритмов расчета двух- и трехкристальных кривых дифракционного отражения с учетом вклада аппаратной функции рентгеновского дифрактометра для моделирования КДО исследуемых кристаллов

Руководитель, к. ф-м. н.

ФНИЦ «Кристаллография и

Н.В. Марченков

фотоника» РАН

Руководитель, к. ф-м. н.

МГУ им. М.В. Ломоносова

С.Ю. Стремоухов

Исполнитель, студент

МГУ им. М.В. Ломоносова, гр. 241М

И.И. Аткнин

Москва 2016

## Содержание

1	Литературный обзор .....	3
1.1	Атомный фактор рассеяния .....	3
1.2	Структурный фактор рассеяния .....	4
1.3	Температурный фактор рассеяния .....	5
1.4	<b>Кинематическая теория рассеяния</b> .....	6
1.5	Основные уравнения динамической теории .....	6
1.5.1	Уравнения Максвелла .....	6
1.5.2	Основная система динамических уравнений .....	7
1.5.3	Границные условия диапазоне частот .....	8
1.5.4	Брэговское отражение совершенным кристаллом .....	8
1.5.5	<b>Дифракция в геометрии Лауз</b> .....	9
1.5.6	<b>Ассиметрическая схема дифракции</b> .....	9
1.5.7	<b>Послойный анализ</b> .....	9
1.5.8	<b>Нарушенный слой</b> .....	9
1.5.9	Поляризуемость кристалла в рентгеновском .....	9
2	Методы и оборудование .....	10
2.1	Аппаратная функция .....	11
2.1.1	Источник .....	11
2.1.2	Щелевые коллиматоры .....	12
2.1.3	Учет дифракции на щели .....	13
2.2	Однокристальная схема отражения .....	14
2.3	Двухкристальная схема .....	16
2.4	Трехкристальная схема .....	22
3	Результаты и обсуждения .....	24
3.1	Аппаратная функция .....	24
3.2	Однокристальный эксперимент .....	25
3.3	Двухкристальный эксперимент .....	28
3.4	Влияние внешнего электрического поля .....	30
3.4.1	Сохранение формы кривой .....	30
3.4.2	Изменение положения пика .....	30
3.5	Трехкристальная КДО .....	30

# 1 Литературный обзор

## 1.1 Атомный фактор рассеяния

Рентгеновское излучение, взаимодействуя с электронами атомов вещества рассеивается. Величина такого рассеяния зависит от количества электронов в атоме. Тяжелые металлы, например свинец,  $Pb$  ( $Z = 82$ ), рассеивают рентгеновское излучение сильнее легких, таких как  $Ni$  ( $Z = 28$ ) или  $Co$  ( $Z = 27$ ), а такие атомы, как  $He$  или  $H$  – прозрачны для рентгеновского излучения. Величина, которая характеризует о том, как сильно рассеивает атом, называется атомным фактором рассеяния  $f$ .

На рис. 1.1 представлена диаграмма направленности атомного фактора лантана в зависимости от угла, максимальная величина наблюдается в случае рассеяния вперед и рассеяния назад.

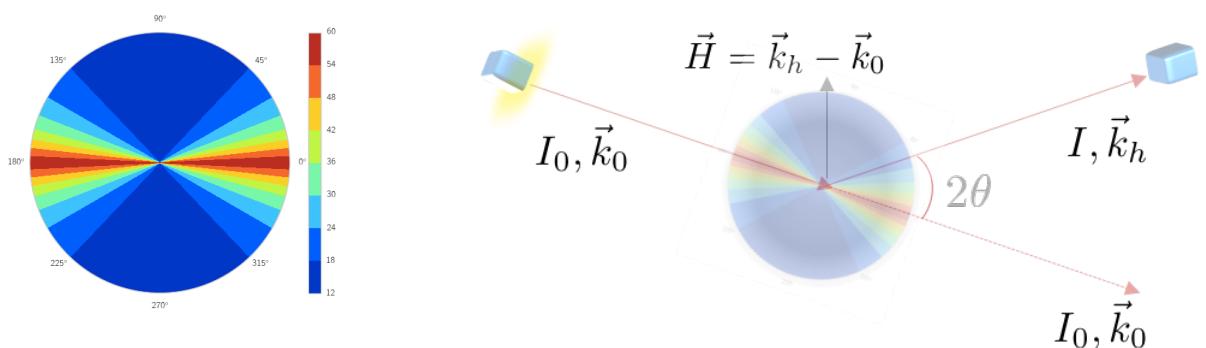


Рисунок. 1.1. (Слева) фактор рассеяния для атома лантана ( $La, N = 57$ ), (справа) схема расположения векторов для падающей и рассеянной волн

Приближенное выражение для расчета атомного фактора рассеяния представляется [1] в виде выражения:

$$f_0 = \sum_{i=1}^4 \cdot a_i e^{-b_i \left(\frac{\sin \vartheta_B}{\lambda}\right)^2} + c \quad (1.1)$$

Где  $a_i$ ,  $b_i$  и  $c$  - коэффициенты Кромер–Манна для бездисперсионного канала рассеяния атомами решетки,  $0 < \sin \vartheta / \lambda < 2.0 \text{ \AA}^{-1}$ . Характерная зависимость структурного фактора от угла рассеяния и длины волны для атомов входящих в состав кристалла LGT ( $La, Ga, Ta, O$ ) представлена на рис. 1.2.

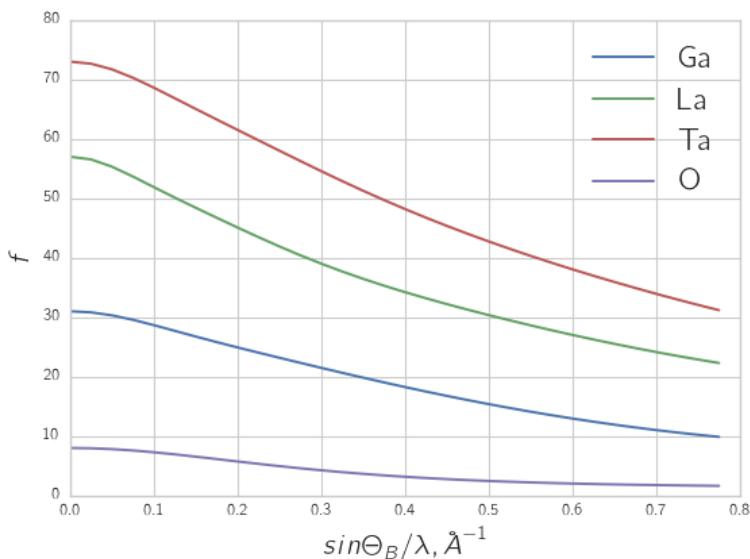


Рисунок. 1.2. Атомный фактор рассеяния для атомов: галлия (Ga), лантана (La), тантала (Ta) и кислорода (O)

В общем случае атомный фактор рассеяния является комплексной величиной, но мнимая часть выражения становится значимой только вблизи края собственного поглощения, когда энергия кванта близка к резонансной энергии атома.

$$f = f_0 + f' + i f'' \quad (1.2)$$

$f_0$  - атомный фактор рассеяния, независящий от энергии падающего излучения,  $f'$ ,  $f''$  - действительная и мнимая части дисперсионной поправки [2], обусловленные преломлением и поглощением.

## 1.2 Структурный фактор рассеяния

Атомы решетки излучают рассеянное электромагнитное излучение. Если в элементарной ячейке более одного атома, волны от разных атомов, интерферируя между собой, вносят вклад в общую картину рассеяния, ослабляя или усиливая ее.

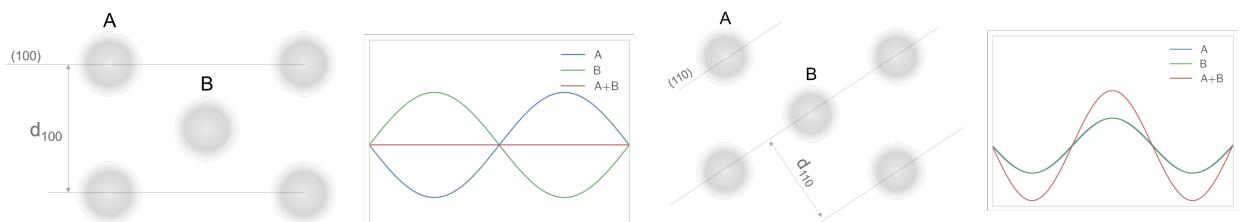


Рисунок. 1.3. Примеры деструктивной(слева) и конструктивной (справа) интерференции двух волн, отраженных соседними атомными плоскостями.

Рассеяние от набора атомов характеризуется структурным фактором рассеяния  $F$ , с учетом векторного сложения всех фаз по всем атомам  $N$  элементарной ячейки:

$$F = \sum_n f \cdot e^{-i\phi_n} \quad (1.3)$$

$$\phi_n = 2\pi(h \cdot x_n + k \cdot y_n + l \cdot z_n) \quad (1.4)$$

На рис. 2.4 цветом изображена величина структурного фактора для разных индексов плоскостей отражения в сравнении между кристаллом LGT и Si. В таком представлении просматривается периодичность образования запрещенных рефлексов в кубическом кремнии. В кристалле LGT запрещенных (синий цвет) индексов для отражения на порядок меньше, связанно это с более низкими симметричными свойствами.

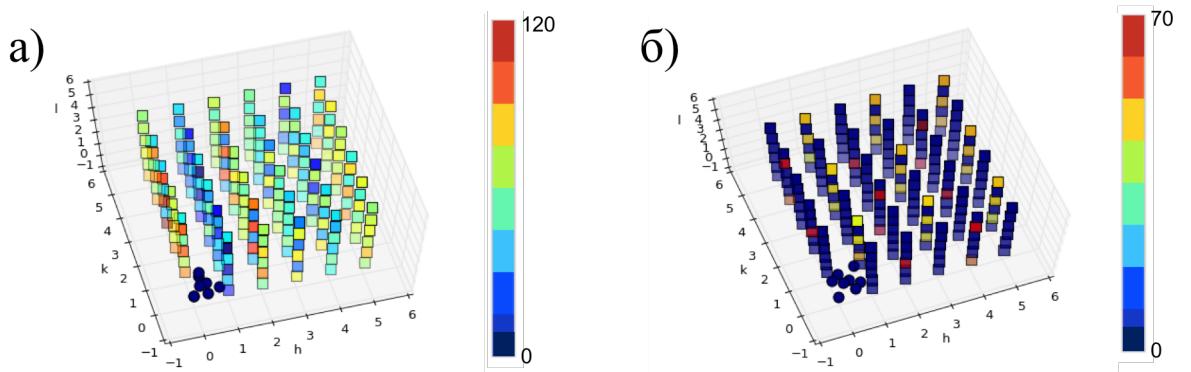


Рисунок. 2.4. Карта распределения величины структурного фактора (цвет соответствует его величине) в координатах индексов Миллера для кристаллов а) LGT, б) Si.

### 1.3 Температурный фактор рассеяния

При определении положений атомов следует также учитывать их тепловые колебания около равновесных положений, нарушающих «совершенность» решетки. Мерой смещения атомов при тепловых колебаниях служит их среднеквадратичная амплитуда  $u^2$ . Структурный фактор рассеяния для колеблющихся атомов имеет вид:

$$F_T = F \cdot e^{-B \frac{\sin \vartheta_B}{\lambda} u^2}, \quad (1.5)$$

где  $B = 8\pi^2 u^2$  – температурный фактор (фактор Дебая - Валлера). Величина  $B$  может варьироваться в диапазоне от  $(1 - 100)\text{\AA}^2$ .

## 1.4 Кинематическая теория рассеяния

Взаимодействие рентгеновского излучения (РЛ) характеризуется восприимчивостью  $\chi^{\text{кристалла}}(r) \sim \rho_e(r)$ . Считается, что восприимчивость кристалла равна сумме атомных восприимчивостей:

$$\chi^{\text{кристалла}}(r) = \sum \chi_i^{\text{атомн}}(r - r_i)$$

где  $r_i$  - радиус вектор i-го атома.[3]

## 1.5 Основные уравнения динамической теории

### 1.5.1 Уравнения Максвелла

В рентгеновском диапазоне частот длина волны сравнима с междуатомными расстояниями, макроскопический подход не применим. Будем исходить из микроскопических уравнений [разобраться].

$$\begin{cases} \operatorname{div} \overrightarrow{E_m} = 4\pi\rho \\ \operatorname{div} \overrightarrow{H_m} = 0 \end{cases} \quad \begin{cases} \operatorname{rot} \overrightarrow{H_m} = \frac{4\pi}{c} j + \frac{1}{c} \frac{\partial \overrightarrow{E_m}}{\partial t} \\ \operatorname{rot} \overrightarrow{E_m} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \overrightarrow{H_m}}{\partial t} \end{cases}$$

$\rho(\vec{r}, t)$ - величина возмущенной электронной плотности, свободные заряды – их нет [в тетроборате есть ?].

$$\operatorname{rot} [\operatorname{rot} \overrightarrow{E_m}] = \operatorname{rot} \left[ -\frac{1}{c} \frac{\partial \overrightarrow{H_m}}{\partial t} \right] = -\frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} \operatorname{rot} \overrightarrow{H_m} = -\frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} \left[ \frac{4\pi}{c} \vec{j} + \frac{1}{c} \frac{\partial \overrightarrow{E_m}}{\partial t} \right] = -\frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial \vec{j}}{\partial t} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \overrightarrow{E_m}}{\partial t^2}$$

токи стационарны,  $j$ -ток смещения шредингера, обусловленный поляризацией  $P$  под действием электрического поля.

$$\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{D}}{\partial t^2} - \Delta \vec{D} = 4\pi \cdot \operatorname{rot} \operatorname{rot} \vec{P}$$

здесь  $c$  – скорость света,  $\vec{P}(\vec{r}, t)$  – вектор поляризации кристалла возникающий под действием электрического поля  $\vec{E}(\vec{r}, t)$ , причем между ними существует линейная связь, имеющая для фурье-компонент следующий вид:

$$4\pi \vec{P}(\vec{r}, \lambda) = \chi(\lambda, \vec{r}) \vec{E}(\vec{r}, \lambda) \quad (1.5.1.1)$$

Вектор электрического смещения определяется как

$$\vec{D}(\vec{r}, \lambda) = \vec{E}(\vec{r}, \lambda) + 4\pi \vec{P}(\vec{r}, \lambda)$$

Поляризуемость кристалла  $\chi(\lambda, \vec{r})$  как функция координаты  $\vec{r}$  является периодической функцией, т.е.

$$\chi(\vec{r} + \vec{r}_h) = \chi(\vec{r}),$$

$r_h$ - вектор трансляции.

В силу соотношения (1.5.1.1) можно разложить  $\chi(\vec{r})$  в ряд Фурье по векторам обратной решетки:

$$\chi(\vec{r}) = \sum_h \exp(i\vec{h}\vec{r})$$

Пляризуемость  $\chi(\vec{r})$  играет ту же роль, что и периодический потенциал в теории дифракции электронов только для фотонов. Если на кристалл падает монохроматическая волна с длинной волны  $\lambda$  в направлении  $\vec{q}_0$ , то в кристалле образуются упругие волны той же длины волны в направлении  $\vec{q}_h = \vec{q}_0 + \vec{h}$  с амплитудой  $\vec{D}_h$ . Представляя волновое поле в кристалле в виде

$$\vec{D}(\vec{r}, \lambda) = \sum_h \vec{D}_h \exp(i\vec{h}\vec{r} - i\omega t) \quad [\text{разобраться с индексом } \sum_h], \quad + \text{ связать с вектором напряженности } \mathbf{E}$$

### 1.5.2 Основная система динамических уравнений

В случае двухвольновой дифракции

$$\begin{cases} \vec{E}_0 = \vec{e}_0 E_0 e^{i\vec{q}_0 \vec{r}} \\ \vec{E}_h = \vec{e}_h E_h e^{i\vec{q}_h \vec{r}} \\ \chi = \chi_0 + \chi_h e^{i\vec{h}\vec{r}} + \chi_{\bar{h}} e^{-i\vec{h}\vec{r}} \end{cases} \quad [\text{почему нету } \exp(-i\omega t)]$$

Подставляем выше в (№ формулы выше), получаем

$$\begin{cases} \sigma_0 \vec{E}_0 - c \chi_{\bar{h}} \vec{E}_h = 0 \\ \sigma_h \vec{E}_h - c \chi_h \vec{E}_0 = 0 \end{cases}$$

$$\text{где } \sigma_0 = \frac{q_0^2 - k_0^2}{k_0^2} - \chi_0 = 2\varepsilon\gamma_0 - \chi_0, \quad \sigma_h = \frac{q_h^2 - k_0^2}{k_0^2} - \chi_0 = 2\varepsilon\gamma_h - \frac{k_0^2 - (\vec{k}_0 + \vec{h})^2}{k_0} \chi_0$$

$$\text{обозначим } \alpha = \frac{k_0^2 - (\vec{k}_0 + \vec{h})^2}{k_0} = -\frac{\vec{k}_0 \cdot \vec{h} - h^2}{k_0^2} = 2\Delta\Theta \sin 2\theta_B, \quad \text{характеризует угловую}$$

отстройку падающего излучения от угла Брэгга. Уравнение (3.5) решается аналитически и имеет два корня.

$\Delta\Theta$  - отстройка от точного угла Брэгга

Ищем решение, приравняв детерминант системы к нулю:

$$\sigma_0 \sigma_h - c^2 \chi_h \chi_{\bar{h}} = 0$$

### 1.5.3 Границные условия диапазоне частот

При переходе излучения из одной среды в другую, тангенциальная составляющая вектора падающего и дифрагированного пучка сохраняется, но вектор падающей волны не сохраняется (присутствует преломление), чтобы найти введем в неявном виде величину аккомодации  $\varepsilon$ , преломление же описывается адекватно вдали от Брэгговских углов:

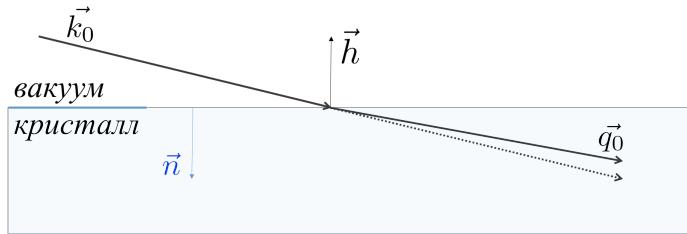


Рисунок. 3.1. Схема расположения волнового вектора падающей волны вне кристалла и внутри него

$$\vec{q}_0 = \vec{k}_0 + \varepsilon \vec{k}_0 \vec{n}$$

$q_0, q_h$  - волновые вектора падающей и дифрагированной волн в кристалле,  $k_0$  - волновой вектор падающей волны вне кристалла,  $C$  - поляризационный множитель. Черта над символом узла обратной решетки  $h^-$  означает равенство  $h^- = -h$ . Используя граничные условия для волновых векторов на границе раздела двух сред, уравнение (2.3) примет окончательный вид:

$$(2\gamma_0 \varepsilon - \chi_0)(2\gamma_h \varepsilon - \alpha - \chi_0) - C^2 \chi_h \chi_{h^-} = 0 \quad (2.5)$$

где  $\gamma_0 = \cos(\widehat{\vec{k}_0, \vec{n}})$ ,  $\gamma_h = \cos(\widehat{\vec{k}_0 + \vec{h}, \vec{n}})$  - направляющие косинусы.

### 1.5.4 Брэгговское отражение совершенным кристаллом

$$\varepsilon_{1,2} = \frac{\gamma_0}{4} \left\{ \chi_0(1+b) + \alpha b \pm \frac{1}{\sqrt{(\chi_0(1-b) - \alpha b)^2 + 4bC^2 \chi_h \chi_{h^-}}} \right\}, \quad (2.7)$$

где  $b = \gamma_0 / \gamma_h$  - коэффициент асимметрии брэгговского отражения.

Введем амплитудный коэффициент отражения  $R = E_h / E_0$ ,

$$R_{1,2} = \frac{2\gamma_0\varepsilon_{1,2} - \chi_0}{C\chi_h} \quad (2.8)$$

Наличие двух корней дисперсионного уравнения говорит о том, что в кристалле будут распространяться две проходящие волны и две дифрагированные, тогда амплитудные коэффициенты дифракционного отражения внутри кристалла будут определяться корнем с положительной мнимой частью  $Im\varepsilon_{1,2} > 0$ , т.е. поля  $E_{0,h}$  - экспоненциально затухают вглубь кристалла.

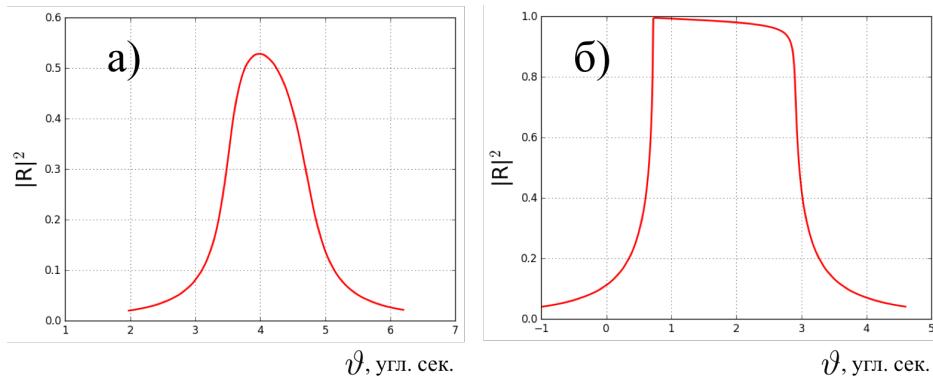


Рисунок. 2.2. Рассчитанные собственные КДО (220), излучения MoKa1, от кристалла  
а) LGT и б) Si.

Но в эксперименте невозможно в чистом виде получить собственную кривую отражения по следующим причинам:

- а) рентгеновская трубка излучает в некотором спектральном диапазоне, а в теории кривая рассчитывается для одной длины волны;
- б) в эксперименте угловая расходимость пучка определяется геометрией схемы;
- в) использование монохроматора вносит свой вклад в итоговую кривую отражения.

### 1.5.5 Дифракция в геометрии Лауэ

### 1.5.6 Ассиметричная схема дифракции

### 1.5.7 Послойный анализ

### 1.5.8 Нарушенный слой

### 1.5.9 Поляризумость кристалла в рентгеновском

[написать из афанасьева]

Рассчитав структурный фактор, введем электрическую поляризумость рентгеновской волны. Кристалл представляет собой среду с периодической структурой, поэтому поляризация может быть разложена в ряд Фурье. Связь Фурье компонент

поляризуемости  $\chi_0$  падающей волны со структурным фактором выглядит следующим образом [4]:

$$\chi_0 = -\frac{r_e N_A \lambda^2 \rho_{str}}{\pi} \cdot \frac{\sum_{j=1}^n k_j \cdot [f'_j(\lambda) + i \cdot f''_j(\lambda)]}{\sum_{j=1}^n k_j M_j}, \quad (2.1)$$

где  $r_e$  - классический радиус электрона;  $N_A$  - постоянная Авогадро;  $\lambda$  - длина волны падающего излучения;  $\rho_{str}$  - массовая плотность соединения;  $k_j$  - параметр заселенности, вероятно обнаружить атом в узле элементарной ячейки;  $M_j$  - молярная масса,  $f', f''$  - дисперсионные поправки структурного фактора, суммирование осуществляется по атомам элементарной ячейки.

Для дифрагированной волны выражение для поляризуемости  $\chi_h$  имеет следующий вид:

$$\chi_h = \frac{r_e \lambda^2}{\pi V} F_T \quad (2.2)$$

$V = abc \sqrt{1 - \cos^2(\alpha) - \cos^2(\beta) + 2\cos(\alpha)\cos(\beta)\cos(\gamma)}$  - объем элементарной ячейки;  $a, b, c, \alpha, \beta, \gamma$  - параметры элементарной ячейки

## 2 Методы и оборудование

В качестве прибора для апробации результатов моделирования дифракционного отражения на основе нашего подхода используется трехкристальный рентгеновский спектрометр (ТРС).

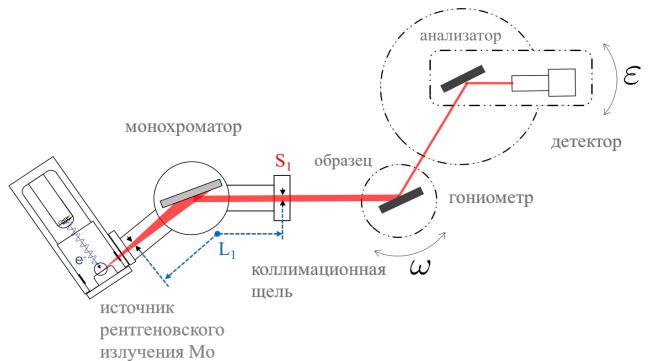


Рисунок. 1. Трехкристальный рентгеновский спектрометр (слева), расположение элементов (справа)

## 2.1 Аппаратная функция

### 2.1.1 Источник

Источником излучения служит рентгеновская трубка с молибденового анодом. Тепловые электроны эмитированные с поверхности катода ускоряются в высоком электрическом поле порядка 60 кВ, бомбардируя анод. Поверхность анода, выполненная из молибдена является источником рентгеновского излучения с характеристическим спектром (рисунок 2).

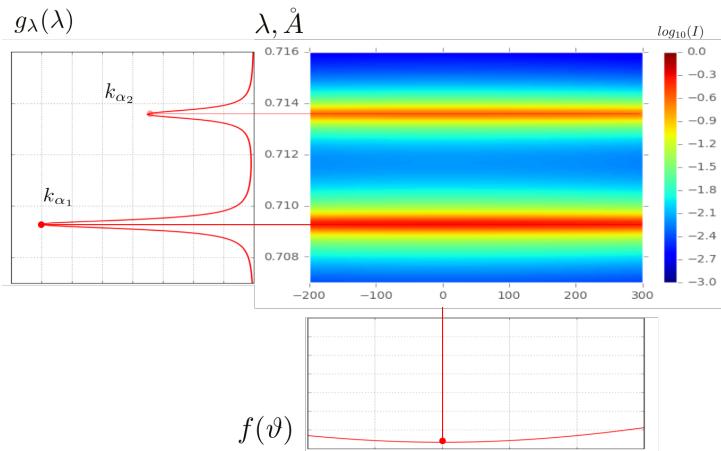


Рисунок. 2. Угловое и спектральное распределение интенсивности излучения рентгеновской трубы с Mo анодом

Характерный спектр лабораторного источника излучения для рентгеновской трубы представляется собой дублет линий характеристического излучения, например, для трубы с молибденовым анодом:  $k_{\alpha_1} = 0.7093 \text{ \AA}$ ,  $k_{\alpha_2} = 0.714 \text{ \AA}$ . Форму спектра можно в приближении описать следующей функцией [5]:

$$g_{\lambda}(\lambda) = \frac{2}{3\pi} \left\{ \frac{\delta\lambda_1}{(\lambda - \lambda_1)^2 + (\delta\lambda_1)^2} + \frac{1}{2} \frac{\delta\lambda_2}{(\lambda - \lambda_1)^2 + (\delta\lambda_1)^2} \right\} \quad (2.10)$$

Угловую расходимость источника представляет собой распределение Гаусса с полушириной пятна  $\sigma = 500$  угл. сек, что соответствует ширине пучка равного 0.5 мм.

$$f(\vartheta) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{\vartheta^2}{2\sigma^2}\right) \quad (2.11)$$

На рис. 2.4. представлено распределение энергии рентгеновской трубы в плоскости дифракции. Видно, что для характерной отстройки пучка от центральной оси дифрактометра (ось x) интенсивность остается практически постоянной.

## 2.1.2 Щелевые коллиматоры

Функция прохождения щели шириной  $S$  на расстоянии  $L$  от источника дается выражением в зависимости от угла отстройки пучка:

$$Slit(\vartheta) = \begin{cases} 1, & \vartheta < \left| \frac{S}{L} \right| \\ 0, & \vartheta \geq \left| \frac{S}{L} \right| \end{cases} \quad (2.12)$$

На рис. 2.6 представлено положение щелей (слева) в пересчете на угловые координаты для  $S_1 = S_2 = 50$  мкм. Коллимационная щель  $S_1$  находится в неподвижном положении, апертурная щель  $S_2$  постепенно осуществляет движение относительно первой.

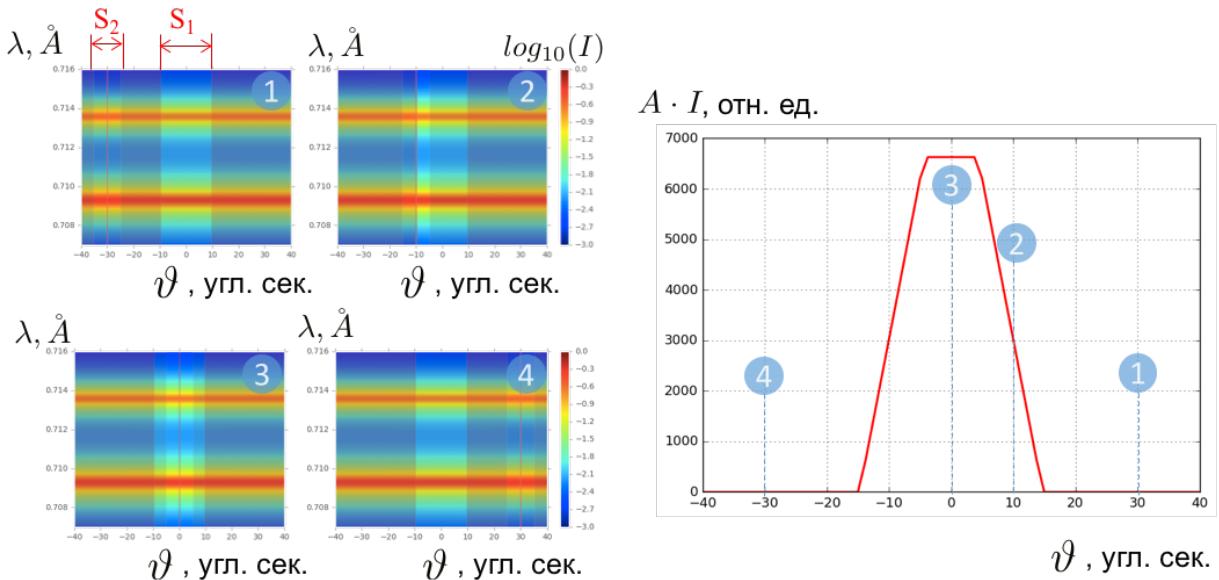


Рисунок. 2.6. 20 сканирование щелью в отсутствии кристаллов для геометрии

$$S_1 = S_2 = 50 \text{ мкм}, L_1 = 0.57 \text{ м}, L_2 + L_3 = 1.005 \text{ м}$$

Отводя щель  $S_2$  достаточно далеко от центрального положения, она выйдет из области пересечения с первой и детектор зафиксирует нулевую интенсивность. Слева на рис. 2.6. изображен результат подобного скана пучка щелью с детектором. Стоит отметить, что в случае одинаковых щелей на угловой шкале, функция свертки будет иметь форму треугольника.

[нужно написать функцию свертки двух щелей от угла, по сути получить формулу Чуева]

Как геометрия влияет на функцию свертки, тета-2тета реализуется всегда в зеркальной геометрии – свертки нет только щель (определяется наиболее узкой щелью), в омега свертка

### 2.1.3 Учет дифракции на щели

Дифракция представляет собой отступление от геометрической оптики и является доказательством волновой природы света. На пути РЛ от источника располагается препятствие в виде щели на которую падает параллельный пучок света (рис. ).

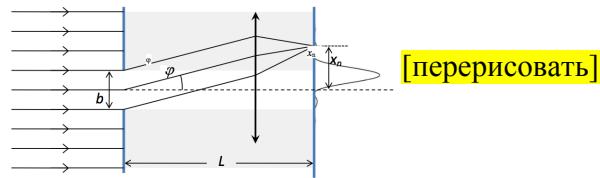


Рисунок. 2

Функция щели записывается следующим образом

$$Slit\_dif(\vartheta, \lambda) = \begin{cases} 1, & \vartheta < \left| \frac{S}{L} \right| \\ \frac{\sin^2\left(\frac{\pi S}{\lambda} \sin \vartheta\right)}{\left(\frac{\pi S}{\lambda} \sin \vartheta\right)^2}, & \vartheta \geq \left| \frac{S}{L} \right| \end{cases}$$

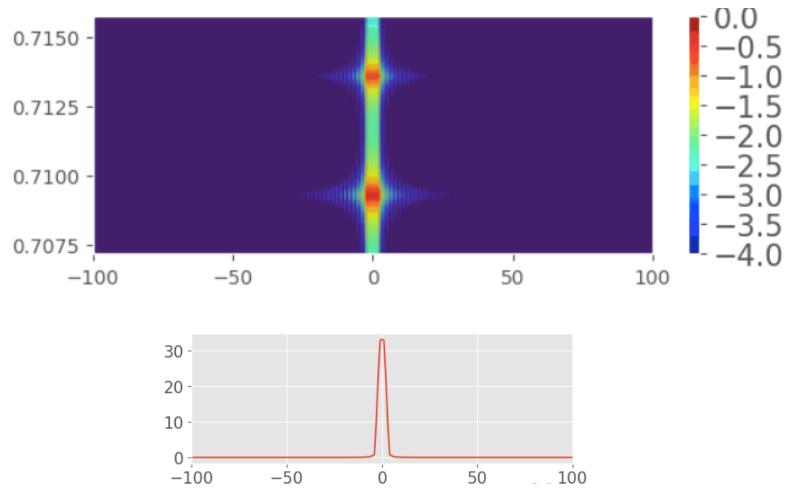


Рисунок. Карта распределения интенсивности в зависимости от угла и длины волны излучения

## 2.2 Однокристальная схема отражения

Рентгеновская трубка имеет достаточно широкий энергетический спектр (рис. 2.4), поэтому для выделения его квазимонохроматической составляющей используется дополнительный рентгенооптический элемент – кристалл-монохроматор. Принцип работы данного кристалла основан на законе Вульфа-Брэгга. Поскольку в соответствии с данным законом для фиксированного межплоскостного расстояния кристалла каждой длине волны соответствует свое значение угла Брэгга, кристалл-монохроматор разделяет пространственно по энергиям полихроматическое излучение, падающее на него из рентгеновской трубы подобно тому, как призма раскладывает белый свет в радужный спектр.

$$I = \frac{I_0}{A} \cdot \int g(\lambda) \cdot f(\vartheta, \theta) \cdot |R_{cr}(\vartheta, \theta, \lambda)|^2 d\lambda d\vartheta$$

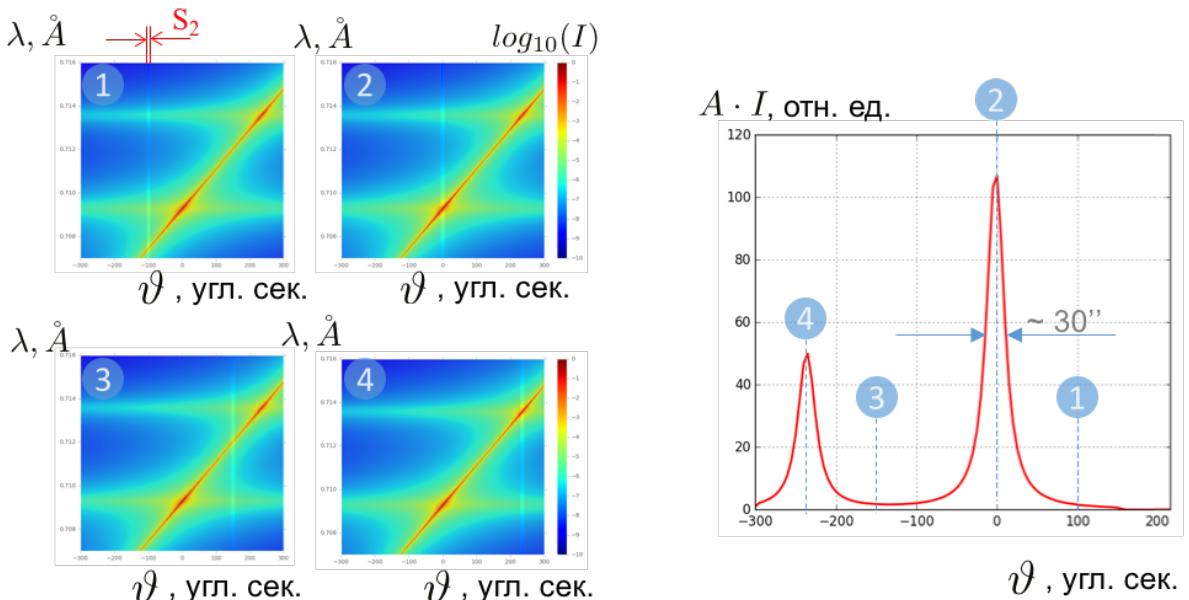


Рисунок. 2.7.  $2\theta$  –сканирование детектором с узкой щелью спектра, дифрагированного неподвижным кристаллом Si(220),  $S_1 = \max$ ,  $S_2 = 50$  мкм

Провести измерение формы спектра, разделенного монохроматором в пространстве, можно несколькими способами. Первый способ заключается в сканировании щелью перед детектором ( $2\theta$ -сканирование) пространственно распределенного неподвижным кристаллом спектра (рис. 2.7, 2.8).

$$I = \frac{I_0}{A} \cdot \int g(\lambda) \cdot f(\vartheta) \cdot |R_{cr}(\vartheta, \theta, \lambda)|^2 d\lambda d\vartheta$$

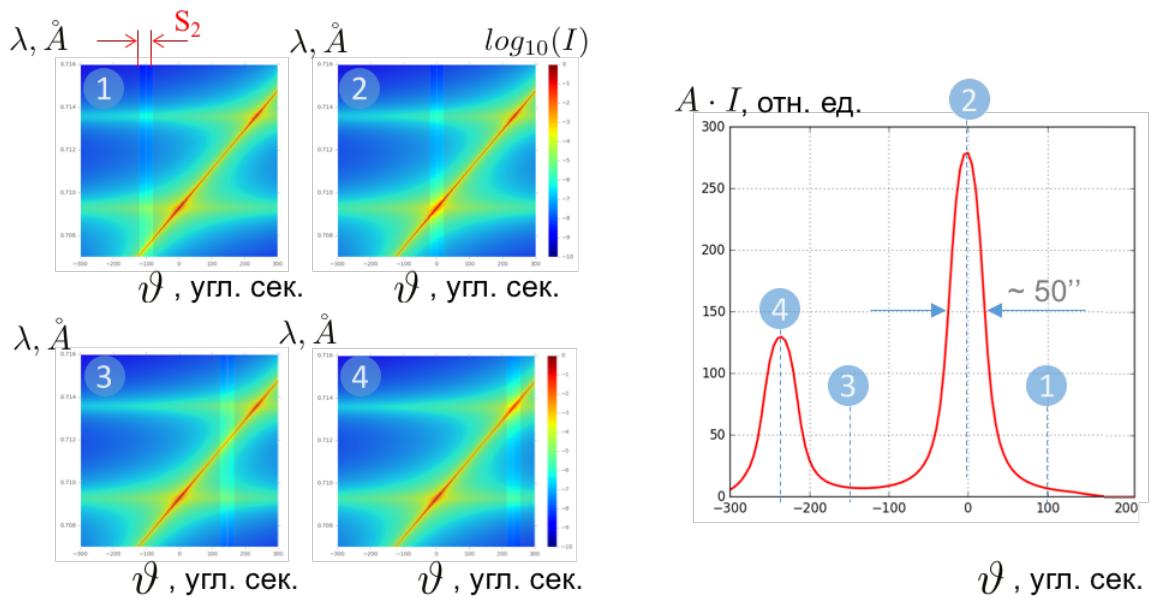


Рисунок. 3.8.  $2\theta$  – сканирование детектором с узкой щелью спектра, дифрагированного неподвижным кристаллом Si(220),  $S_1 = \max$ ,  $S_2 = 200$  мкм

В такой же геометрии эксперимента для записи спектра рентгеновской трубки можно также изменять угол отражения поворотом кристалла-монохроматора. В таком случае при относительно узкой входной щели  $S_1$  вращающийся монохроматор будет играть роль перестраиваемого фильтра, отражая из квазипараллельного полихроматического пучка лишь узкий спектральный диапазон, отвечающий закону Вульфа-Брэгга для конкретного углового положения кристалла. Стоит отметить, что при таком повороте монохроматора отраженный пучок будет также смещаться на эквивалентный угол и чтобы зарегистрировать его, детектор с приемной щелью  $S_2$  необходимо будет поворачивать с удвоенной относительно монохроматора угловой скоростью. Такой вид сканирования называют  $\theta - 2\theta$  сканирование (рис. 2.9).

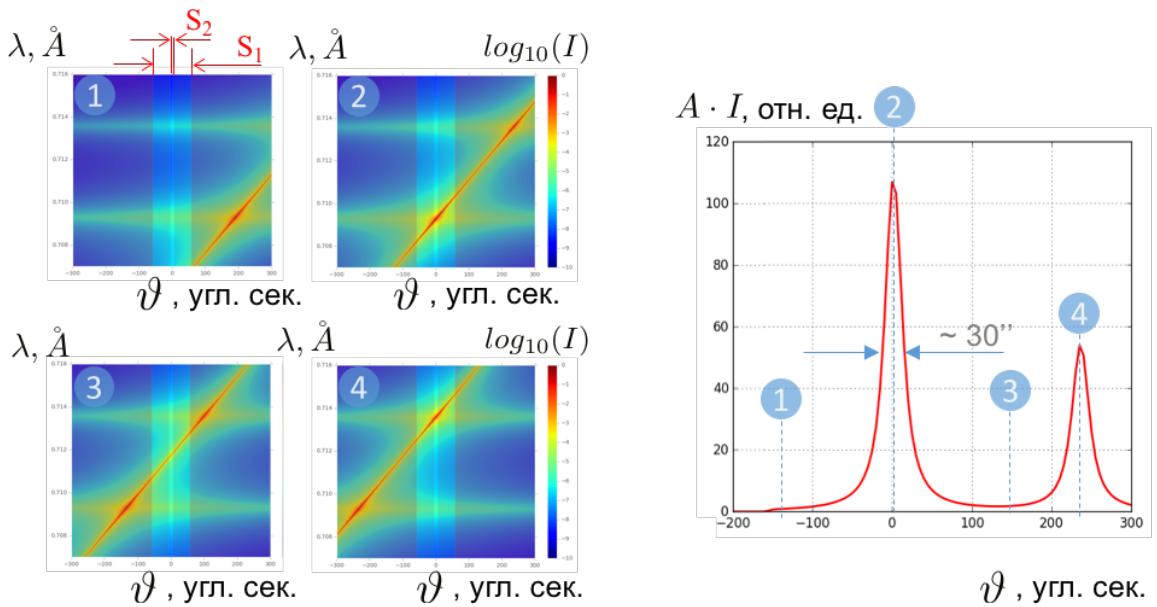


Рисунок. 2.9  $\theta - 2\theta$  сканирование для размеров щелей:  $S_2 = 50$  мкм  $S_1 = 300$  мкм

[Такой эксперимент не делали – сделать, поставив кристалл на место ганиометра, нужно раскрыть  $S_2$ , и закрыть  $S_1$  до размера  $50\text{мкм} \cdot L_1 / (L_2 + L_3)$ ]

В случае  $\theta - 2\theta$  сканирования необходимо отметить, что на карте углового распределения спектра пучка положение обоих щелей будет оставаться неизменным, более широкая щель в таком случае не вносит никакого вклада в итоговую картину, поэтому наличие двух щелей необязательно.

## 2.3 Двухкристальная схема

Измерение кривой дифракционного отражения в двухкристальной схеме представляет собой измерение зависимости отраженного образом рентгеновского излучения при пошаговом повороте исследуемого кристалла относительно падающего на него квазимонохроматического излучения в окрестности точного значения угла Брэгга. Существует несколько схем измерения кривых отражения рентгеновского излучения.

*ω- сканирование*

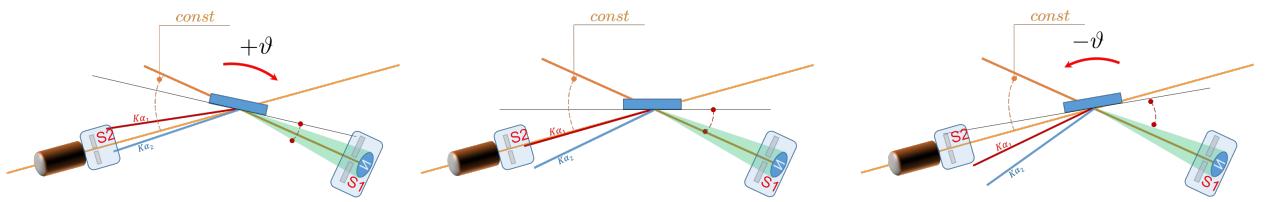


Рисунок. 2.10. Схема реализации  $\omega$  – сканирования

В данном типе сканирования кривая отражения измеряется путем поворота образца относительно падающего пучка в плоскости дифракции. При таком сканировании угол между падающим и дифрагированным пучками (угол рассеяния) остается постоянным (рис. 2.10). Получаемая в результате кривая носит название кривой качания.

На рис. 2.11 представлен расчет результата реализации  $\omega$  - сканирования, максимальная интенсивность на детекторе достигается в случае пересечения кривых отражения монохроматора и образца на карте распределения интенсивности. Необходимо так же обратить внимание, что в данном представлении апертурная щель перед детектором смещается на двойной угол. Несмотря на то, что в реальном пространстве детектор с приемной щелью  $S_2$  стоят на месте во время поворота образца, в данном представлении по оси абсцисс откладывается отсюда от зеркальной геометрии, поэтому при повороте образца детектор и щель  $S_2$  как бы выходят из зеркального положения со скоростью, вдвое превышающей скорость поворота кристалла.

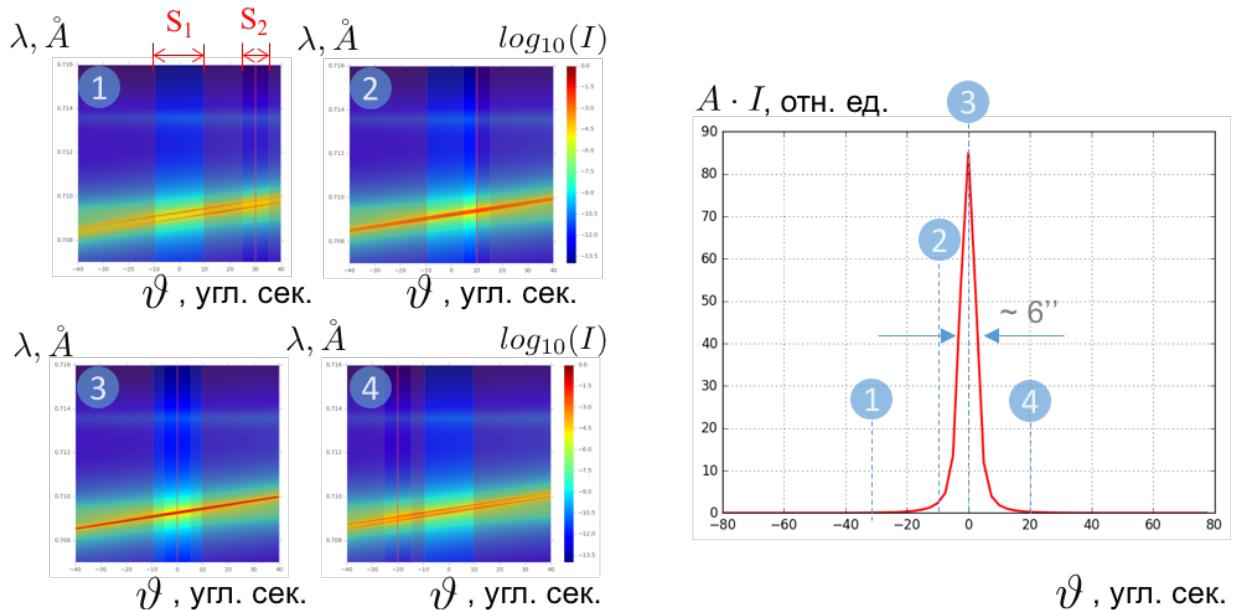


Рисунок. 3.11.  $\omega$  - сканирование для кристаллов образца Si(220) и монохроматора  
Si(220),  $S_1 = S_2 = 50$  мкм

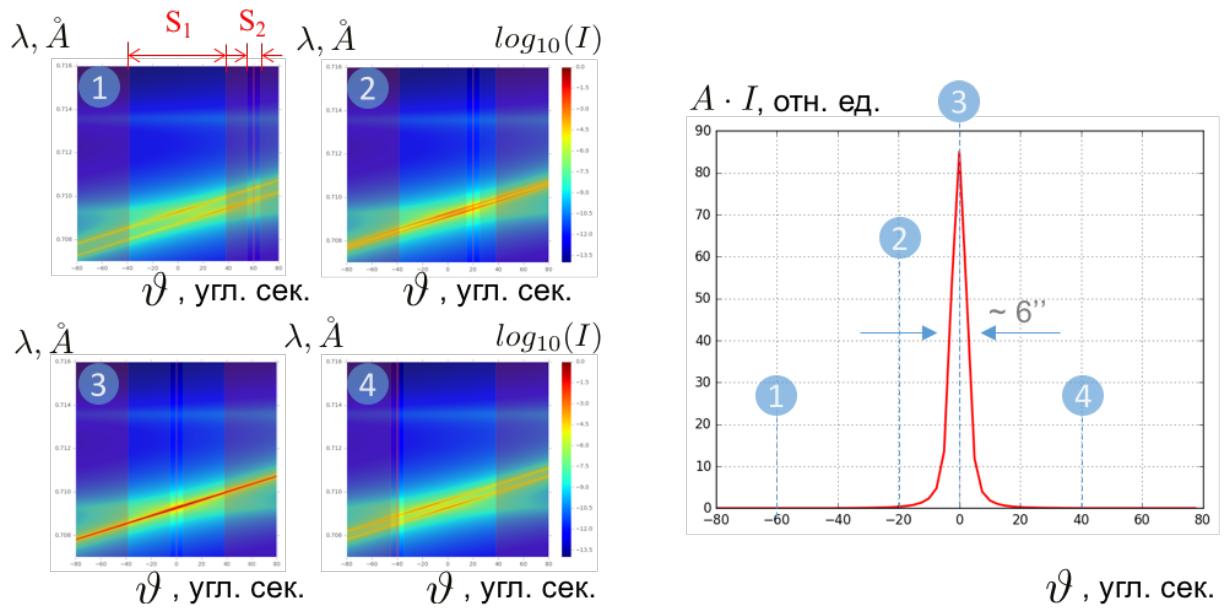


Рисунок. 2.12.  $\omega$  - сканирование для кристаллов образца Si(220) и монохроматора  
Si(220),  $S_1 = 200$  мкм  $S_2 = 50$  мкм

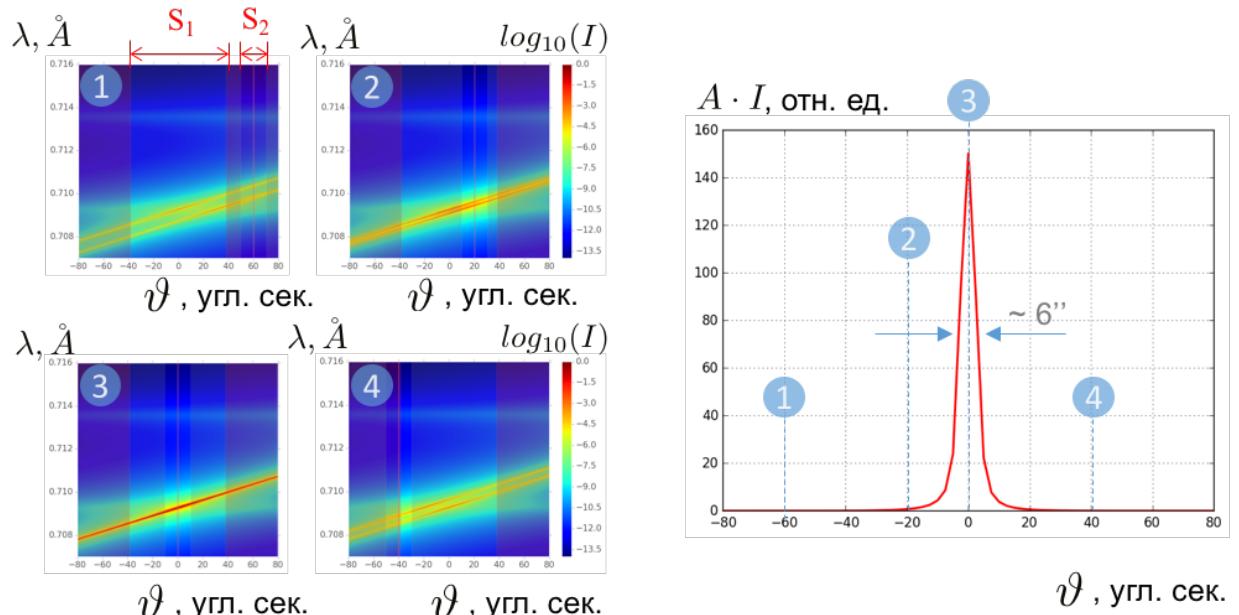


Рисунок. 3.13.  $\omega$  - сканирование для кристаллов образца Si(220) и монохроматора  
Si(220),  $S_1 = 200$  мкм  $S_2 = 100$  мкм

Используемый подход моделирования экспериментальных сканов в представлении пространственного распределения спектра излучения позволяет также адекватно учитывать влияние дисперсии в случае дисперсионной схемы (когда кристаллы образца и монохроматора имеют разные углы Брэгга). Пример реализации такого сканирования приведен на рис. 2.14, из которого наглядно прослеживается эффект дополнительного уширения двухкристальной кривой качания за счет дисперсионности схемы. Кроме того, сравнение рисунков 2.14-2.16 наглядно демонстрирует увеличение вклада угловой

расходимости пучка в общую ширину кривой качания при увеличении коллимирующих щелей.

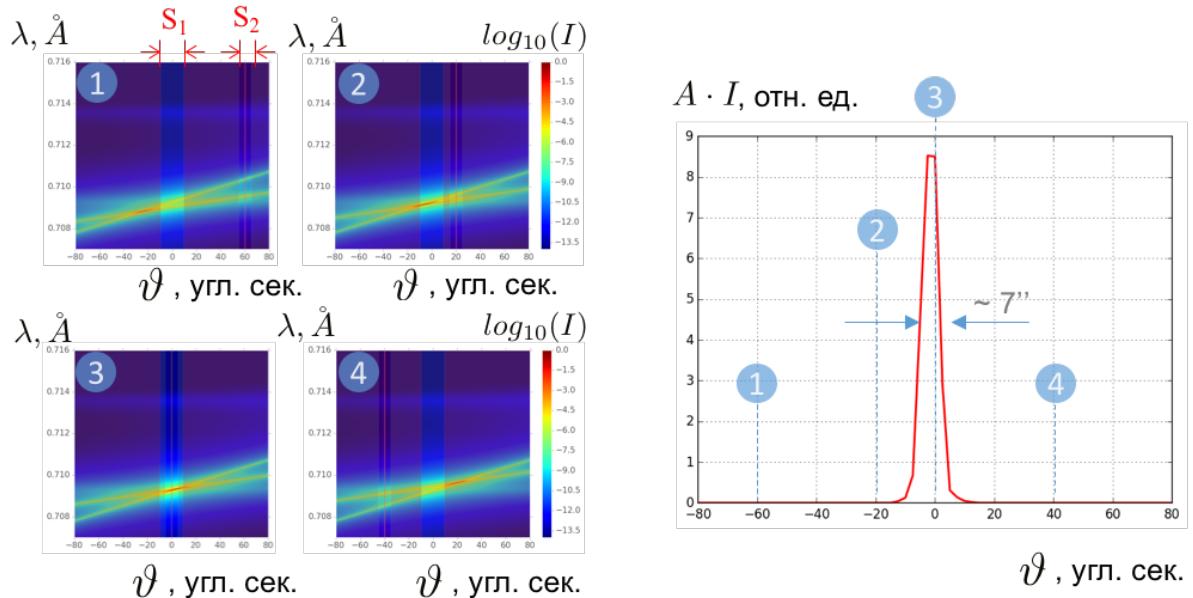


Рисунок. 2.14.  $\omega$  - сканирование для кристаллов образца Si(440) и монохроматора Si(220),  $S_1 = S_2 = 50$  мкм

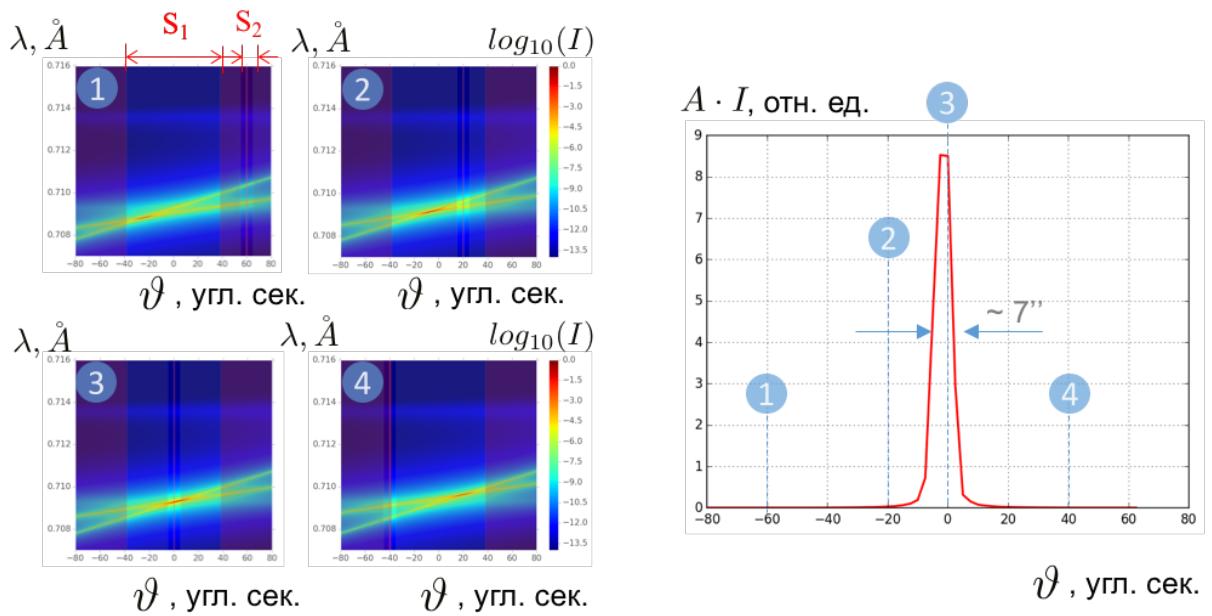


Рисунок. 3.15.  $\omega$  - сканирование для кристаллов образца Si(440) и монохроматора Si(220),  $S_1 = 200$  мкм  $S_2 = 50$  мкм

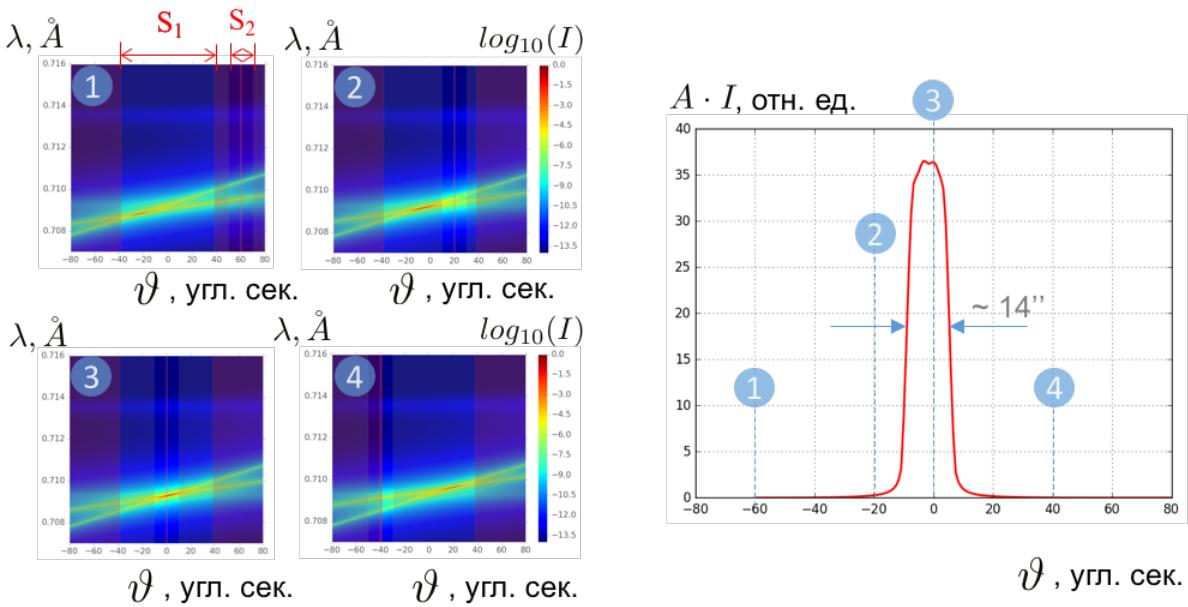


Рисунок. 2.16.  $\omega$  - сканирование для кристаллов образца Si(440) и монохроматора Si(220),  $S_1 = 200$  мкм  $S_2 = 100$  мкм

#### $\theta - 2\theta$ - сканирование

В отличие от предыдущего, данный метод сканирования соответствует изменению модуля вектора рассеяния при неизменном его угловом положении (рис. 2.17) Угловое положение падающего пучка и детектора изменяется синхронно и симметрично относительно используемой системы атомных плоскостей, а установленная перед детектором апертурная щель вырезает только зеркально отраженную часть пучка. Именно поэтому при построении карт пространственного распределения спектра полосы щелей на этих картах остаются неподвижными (т.к. несмотря на движение щели  $S_2$  в процессе  $\theta - 2\theta$  - сканирования ее отстройка от зеркального положения всегда равна 0).

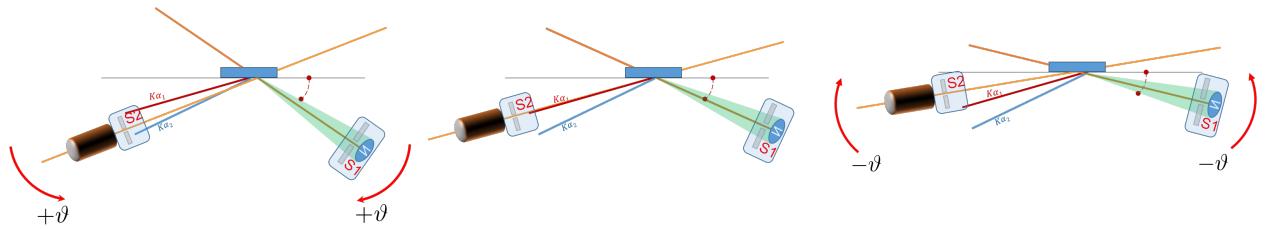


Рисунок. 3.17. Схема реализации  $\theta - 2\theta$  сканирования

Кроме того, используемый подход позволяет наглядно продемонстрировать интересный эффект. Независимо от ширины входной и приемной щелей характеристическая линия спектра трубки  $K_{\alpha 2}$  всегда вносит вклад в КДО, проявляясь в виде дополнительного пика на ее хвосте (рис. 2.21). Данный слабый пик возникает за счет того, что даже при очень малой входной щели  $S_1$  линия  $K_{\alpha 2}$  будет, отражаясь на «хвосте» кривой монохроматора, пролетать через входную щель и, при определенном угле поворота образца,

интенсивно дифрагировать в максимуме его собственной кривой отражения и давать весомый ( $\sim 10^{-6}$ ) вклад в общую интенсивность КДО.

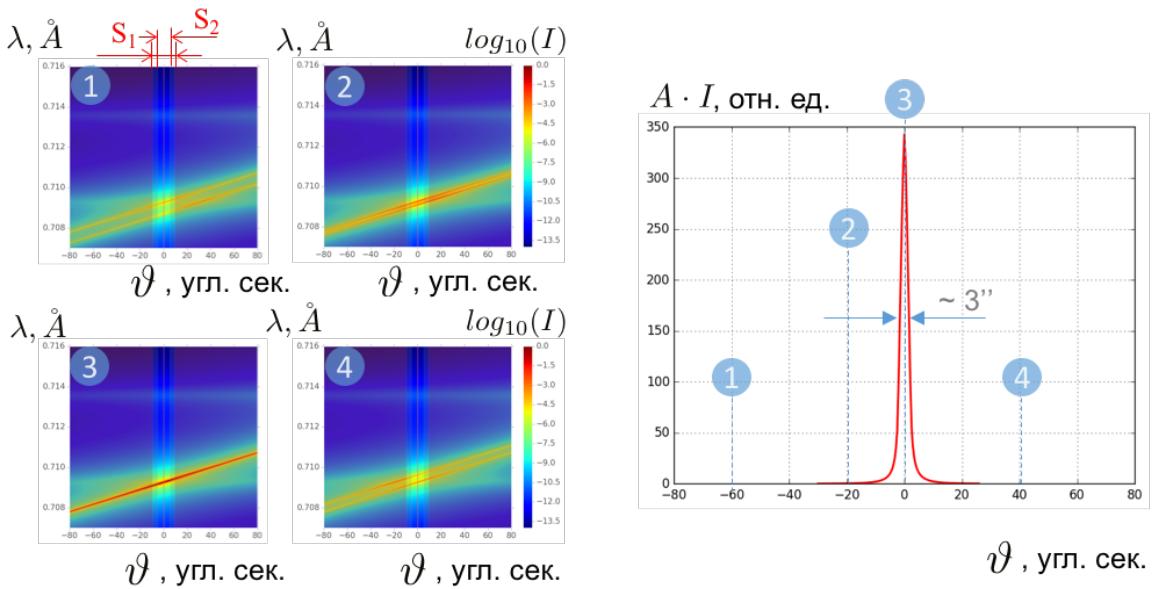


Рисунок. 2.18.  $\theta - 2\theta$  - сканирование для кристаллов образца Si(220) и монохроматора Si(220),  $S_1 = 50 \text{ мкм}$   $S_2 = 50 \text{ мкм}$

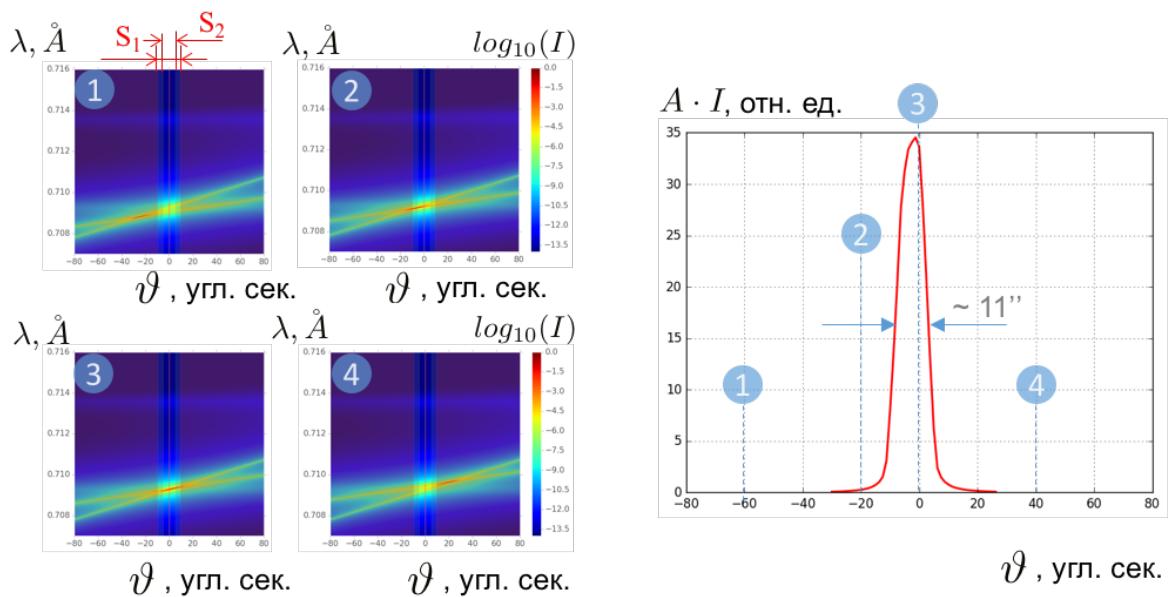


Рисунок. 3.19.  $\theta - 2\theta$  - сканирование для кристаллов образца Si(440) и монохроматора Si(220),  $S_1 = 50 \text{ мкм}$   $S_2 = 50 \text{ мкм}$

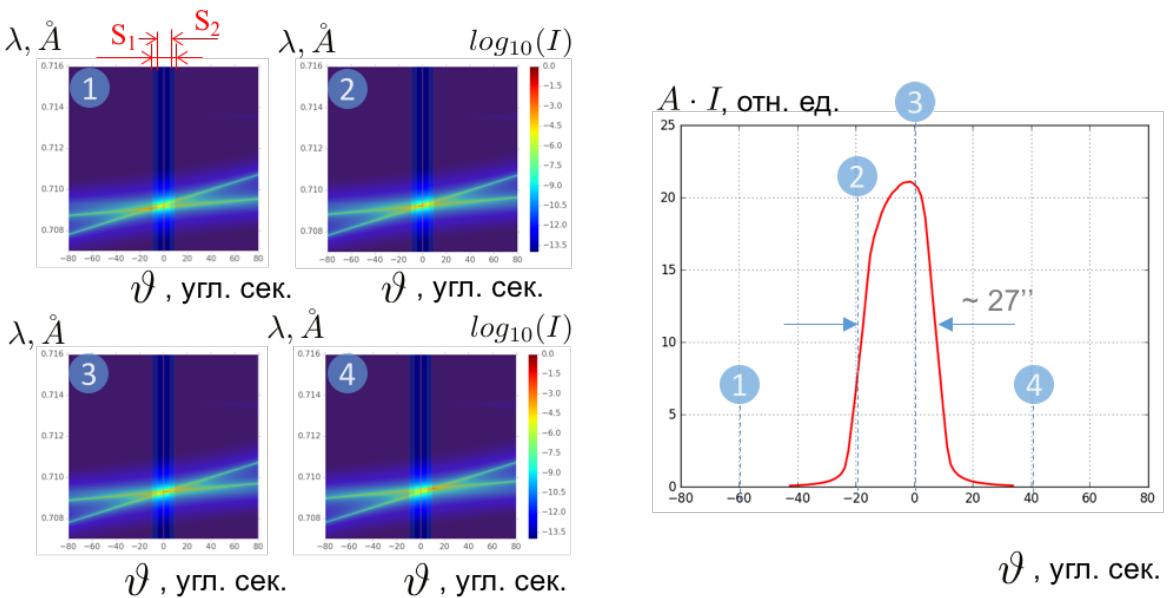


Рисунок. 2.20.  $\theta - 2\theta$  - сканирование для кристаллов образца Si(660) и монохроматора Si(220),  $S_1 = 50$  мкм  $S_2 = 50$  мкм

## 2.4 Трехкристальная схема

Применение третьего кристалла (анализатора), играющего роль очень узкой (угловая апертура  $\sim$  нескольких угловых секунд) щели, существенно уменьшает расходимость попадающего в детектор пучка. Как следствие, метод обладает высокой чувствительностью к малым изменениям степени совершенства кристаллов.

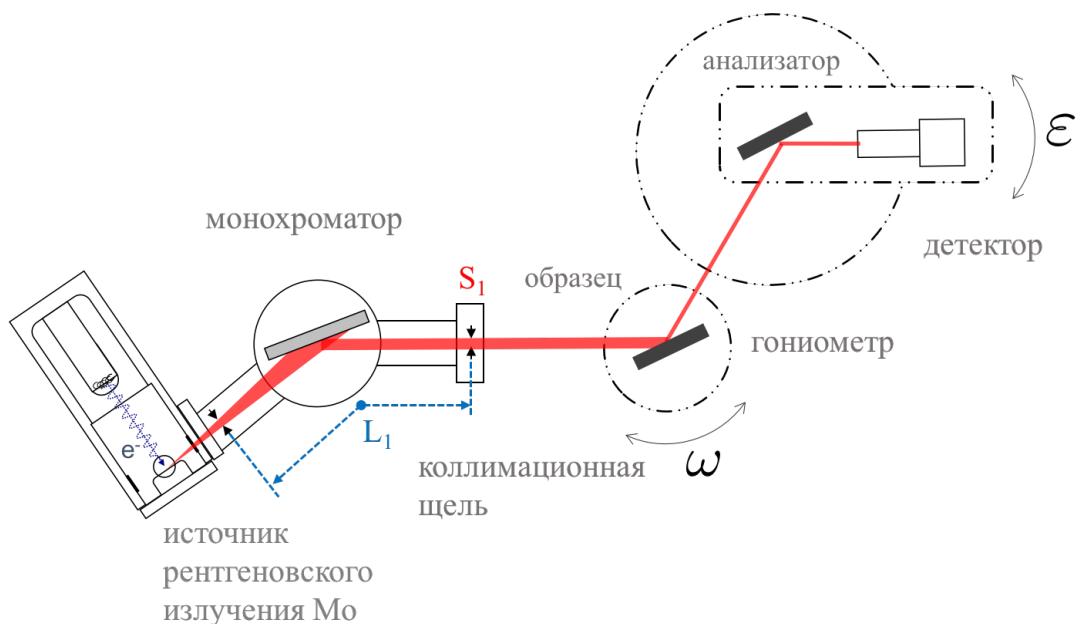


Рисунок. 3.22. Схема реализации трехкристального эксперимента

В результате трехкратного отражения луча, выходящего из источника рентгеновского излучения, на детекторе получается двумерное распределение интенсивности:

$$I(\varepsilon, \omega, \theta, \lambda) = I_0 \iint d\theta d\lambda g_\lambda(\lambda) g_\theta(\theta) R_M \left( \theta - \frac{\lambda - \lambda_1}{\lambda_1} \tan \Theta_B \right) \cdot \\ R_S \left( \omega + \theta - \frac{\lambda - \lambda_1}{\lambda_1} \tan \Theta_B \right) \cdot \\ R_A \left( 2\omega - \varepsilon + \theta - \frac{\lambda - \lambda_1}{\lambda_1} \tan \Theta_B \right) \quad (2.12)$$

где  $\omega$  - угол поворота образца от точного брэгговского угла,  $\varepsilon$  - угол поворота анализатора,  $g_\lambda(\lambda)$  и  $g_\theta(\theta)$  функции спектрального и углового распределения рентгеновского пучка,  $R_M, R_S, R_A$  - коэффициенты отражения от кристаллов монохроматора, образца и анализатора соответственно.

При расчетах в качестве источника излучения рассматривалась рентгеновская трубка с молибденовым анодом. Падающее излучение рентгеновской трубы представляет собой суперпозицию двух характеристических линий,  $k_{\alpha 1}$  и  $k_{\alpha 2}$  (без учета тормозного излучения), а именно:

$$g_\lambda(\lambda) = \frac{2}{3\pi} \left\{ \frac{\delta\lambda_1}{(\lambda - \lambda_1)^2 + (\delta\lambda_1)^2} + \frac{1}{2} \frac{\delta\lambda_2}{(\lambda - \lambda_2)^2 + (\delta\lambda_2)^2} \right\} \quad (2.13)$$

$$\text{где, } \frac{\delta\lambda_1}{\lambda_1} \cong \frac{\delta\lambda_2}{\lambda_2} = 3 \cdot 10^{-4} \text{ и } \frac{\Delta\lambda}{\lambda_1} = 6 \cdot 10^{-3}.$$

Аппаратная функция углового распределения  $g_\theta(\theta)$  интенсивности падающего излучения от рентгеновской трубы с эффективным размером источника  $\sigma_x$ , щелевым коллиматором  $S_1$  и детектором с апертурой  $S_2$ , имеет следующий вид:

$$g_\theta(\theta) = \frac{1}{\int g_\theta(\theta) d\theta} \int_{x_1(\theta)}^{x_2(\theta)} e^{-x^2} dx \quad , \quad (2.14)$$

где пределы интегрирования отличны от нуля в интервале углов  $|\theta| \leq \theta_2$  и равны [6]:

$$x_1(\theta) = -\frac{S_1/2 - |\theta|l_{1x}}{\sqrt{2}\sigma_x} \quad (2.15)$$

$$x_2(\theta) = \begin{cases} \frac{S_1/2 - |\theta|l_{1x}}{\sqrt{2}\sigma_x}, & |\theta| < \theta_1 \\ \frac{S_2/2 - |\theta|l_{2x}}{\sqrt{2}\sigma_x}, & \theta_1 \leq |\theta| \leq \theta_2 \end{cases} \quad (2.16)$$

$\theta_{1,2} = \frac{S_2 \mp S_1}{2l_{12}}$ ,  $l_{12}$ ,  $l_{1x}$ ,  $l_{2x}$  - оптические расстояния между первой коллимационной щелью и детектором, а также между каждым элементом и рентгеновской трубкой соответственно.

Для симметричного случая отражения, когда отражающие плоскости параллельны плоскости образца, отклонения вектора рассеяния выглядят следующим образом:

$$q_x = k_0(2\omega - \varepsilon) \cdot \sin(\theta_B) \quad (2.17)$$

$$q_z = k_0 \cdot \varepsilon \cdot \cos(\theta_B) \quad (2.18)$$

где  $k_0 = 2\pi/\lambda$  - величина вектора падающего излучения,  $\theta_B$  - угол Брэгга.

### 3 Результаты и обсуждения

#### 3.1 Аппаратная функция

Для оценки влияния щелей, присутствующих в схеме, можно провести эксперимент, заключающийся в сканировании детектором с узкой апертурной щелью. На пути от источника, как правило, после монохроматора для выделения необходимой части спектрального диапазона, разнесенного в пространстве, находится так же коллимационная щель (рис. 2.5).

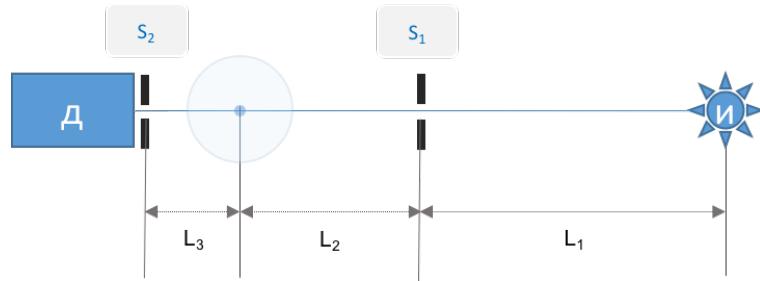


Рисунок. 2.5. . Схема ноль-кристального эксперимента: И – источник рентгеновского излучения (рентгеновская трубка), д – детектор,  $S_1$  и  $S_2$  – коллимационные щели

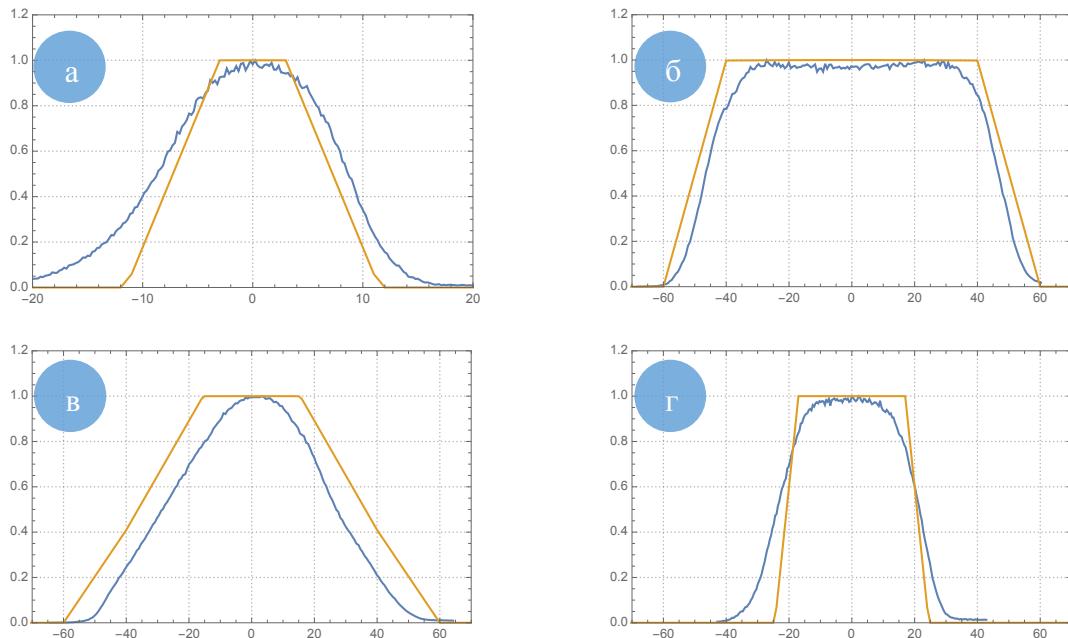
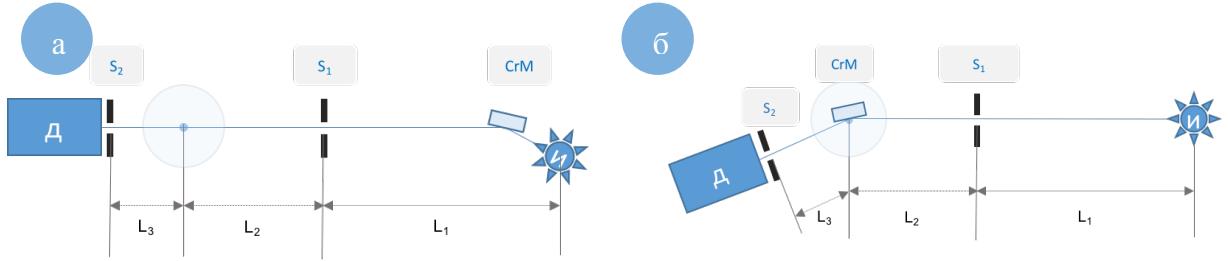


Рисунок. 2.6. Сравнение ноль - кристального эксперимента с расчетом для параметров  $L_1 = 570$  мм,  $L_2 = 220$  мм,  $L_3 = 215$  мм

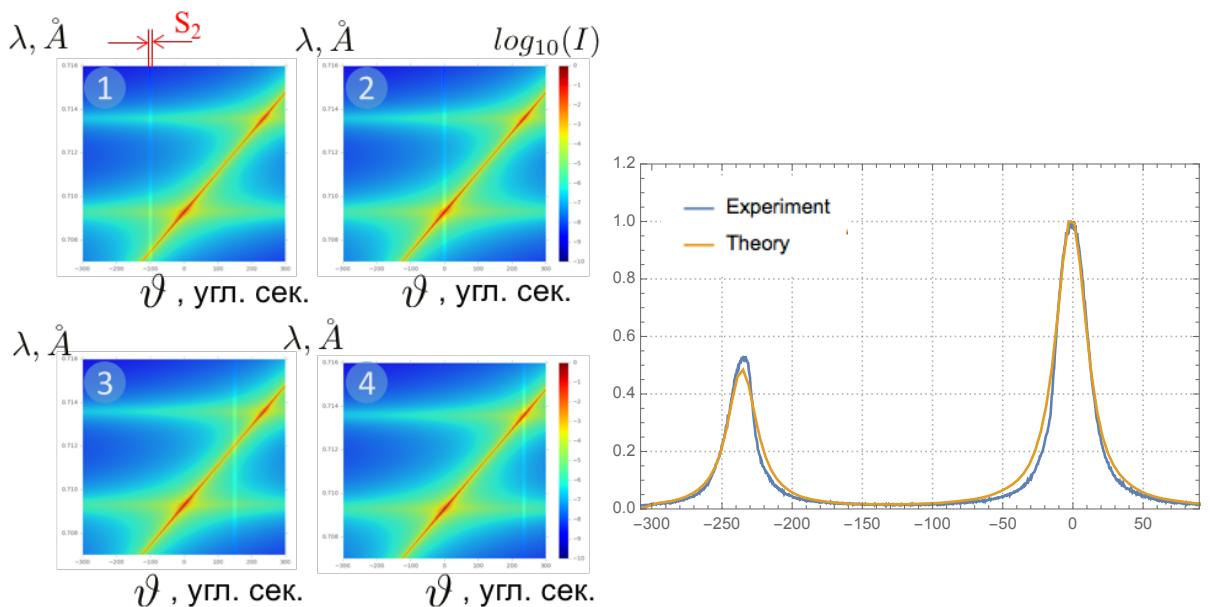
- а)  $S_1 = 0.04$  мм,  $S_2 = 0.04$  мм, б)  $S_1 = 0.04$  мм,  $S_2 = 0.3$  мм,
- в)  $S_1 = 0.2$  мм,  $S_2 = 0.2$  мм, г)  $S_1 = 0.02$  мм,  $S_2 = 0.2$  мм

## 3.2 Однокристальный эксперимент

Схема установки для проведения однокристального эксперимента изображена на рисунке



*Рисунок 7. Схема одно-кристального эксперимента: И – источник рентгеновского излучения (рентгеновская трубка), д – детектор,  $S_1$  и  $S_2$  – коллимационные щели: а) Кристалл – образец статичен, поворот осуществляется детектором вокруг гониометра радиуса  $L_3$ , б) кристалл образец располагается на гониометре, сканирование осуществляется поворотом кристалла*



*Рисунок 2.7.  $2\theta$  –сканирование детектром с узкой щелью спектра, дифрагированного неподвижноюм кристаллом Si(220),  $S_1 = \max$ ,  $S_2 = 50$  мкм*

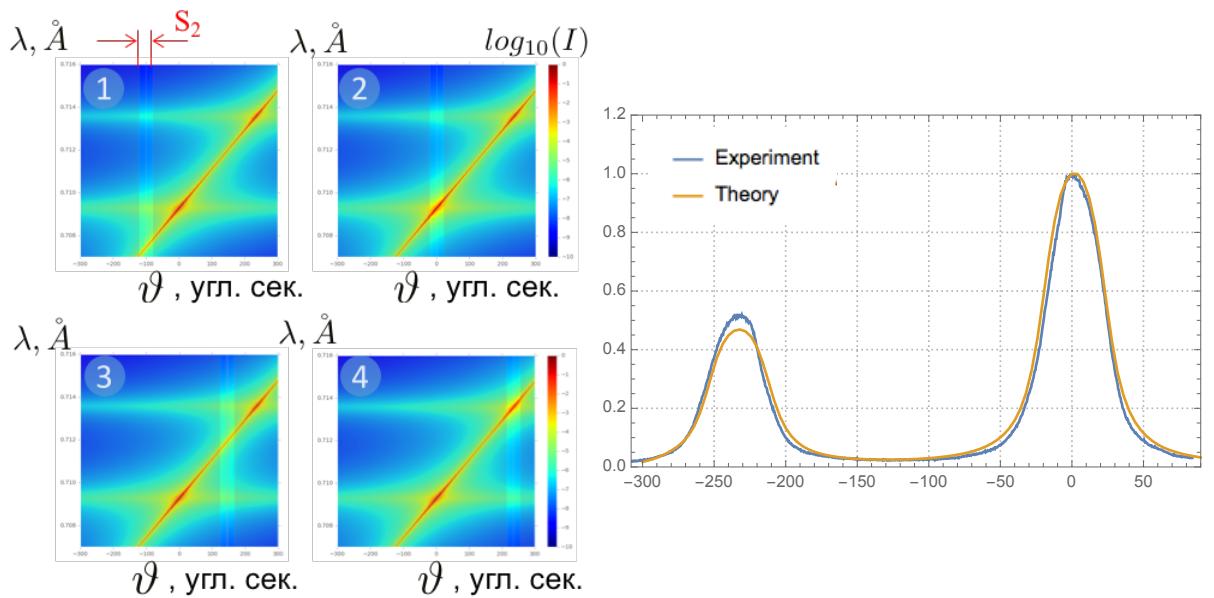


Рисунок. 3.8.  $2\theta$  – сканирование детектором с узкой щелью спектра, дифрагированного неподвижным кристаллом Si(220),  $S_1 = \max$ ,  $S_2 = 200$  мкм

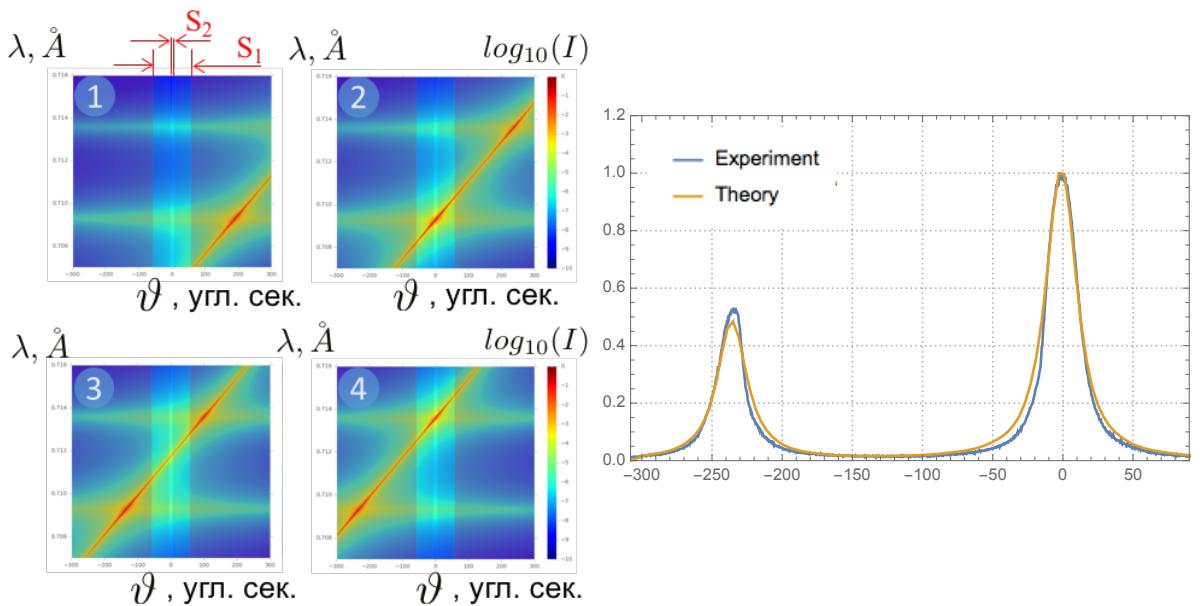


Рисунок. 2.9  $\theta - 2\theta$  сканирование для размеров щелей:  $S_2 = 50$  мкм  $S_1 = 300$  мкм

[Такой эксперимент не делали – сделать, поставив кристалл на место ганиометра, нужно раскрыть S2, и закрыть S1 до размера  $50\text{мкм} \cdot L_1 / (L_2 + L_3)$ ]

### 3.3 Двухкристальный эксперимент

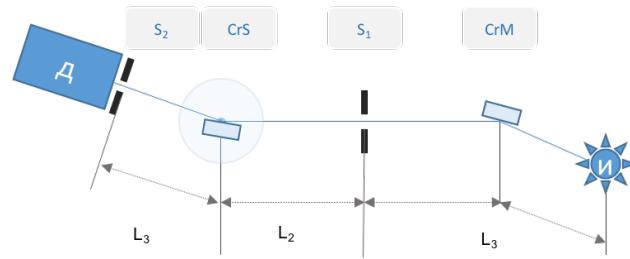


Рисунок. 2.10. Схема установки

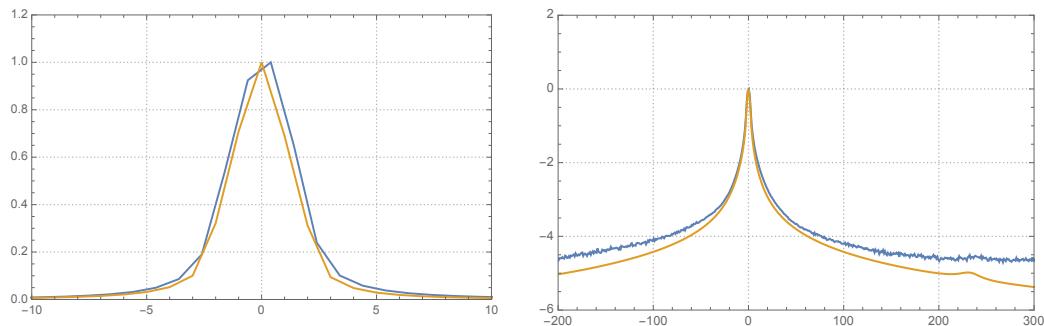


Рисунок. 2.18.  $\theta - 2\theta$  - сканирование для кристаллов образца Si(220) и монохроматора Si(220),  $S1=\infty$ ,  $S2 = 0.04$  мм,  $L1 = 570$  мм,  $L2 = 220$  мм,  $L3 = 215$  мм

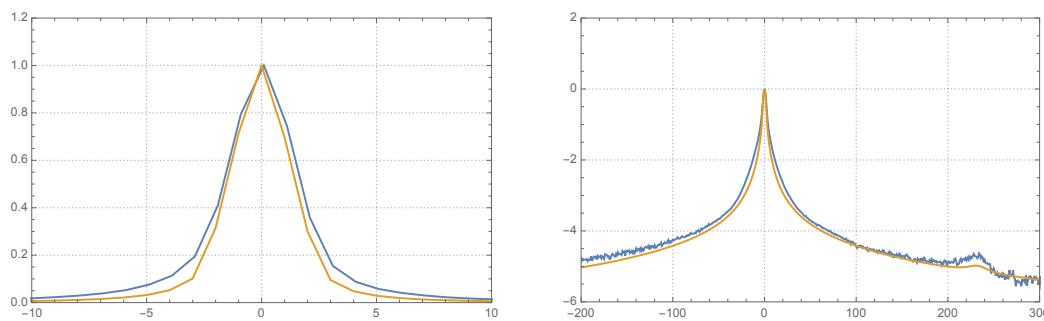


Рисунок. 2.18.  $\theta - 2\theta$  - сканирование для кристаллов образца Si(220) и монохроматора Si(220),  $S1=0.02$ ,  $S2 = 0.04$  мм,  $L1 = 570$  мм,  $L2 = 220$  мм,  $L3 = 215$  мм

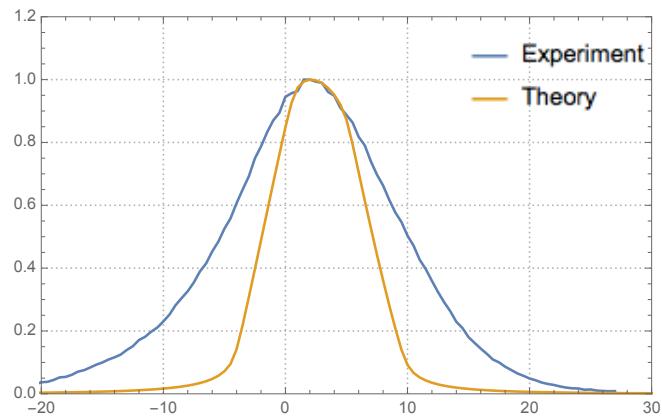


Рисунок. 3.19.  $\theta - 2\theta$  - сканирование для кристаллов образца Si(440) и монохроматора Si(220),  $S_1 = 0.1$  мкм  $S_2 = 0.04$  мм

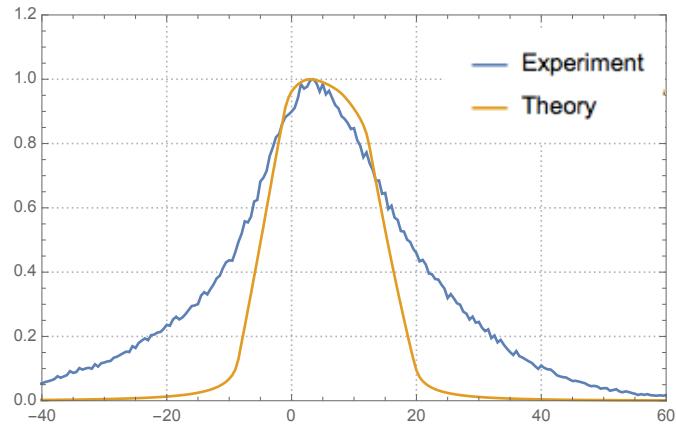


Рисунок. 3.19.  $\theta - 2\theta$  - сканирование для кристаллов образца Si(660) и монохроматора Si(220),  $S_1 = \infty$  мкм  $S_2 = 0.04$  мм

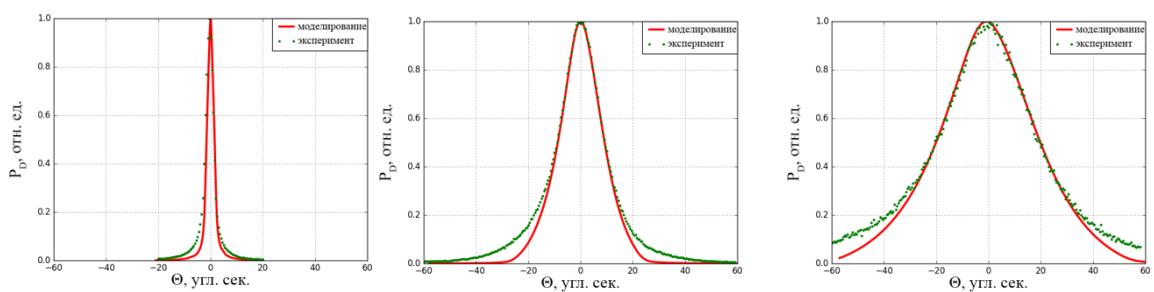


Рисунок. Двухкристальные КДО для различных пар кристаллов монохроматора (Si(220)) и образца: а) Si(220),  $\theta_B = 10.6^\circ$ ; б) Si(440),  $\theta_B = 21.7^\circ$ ; в) Si(660),  $\theta_B = 33.7^\circ$ . Излучение - MoK<sub>α1</sub> ( $\lambda = 0.71 \text{ \AA}$ ).

## 3.4 Влияние внешнего электрического поля

### 3.4.1 Сохранение формы кривой

### 3.4.2 Изменение положения пика

## 3.5 Трехкристальная КДО

Пример расчет карты обратного пространства в окрестности узла обратной решетки (220) кремния для трехкристальной геометрии дифракции, а также сравнение с экспериментом представлены на рис. 2.23. Более подробное внимание расчету карт обратного пространства, измеренных в трехкристальной схеме, будет уделено на следующем этапе проекта.

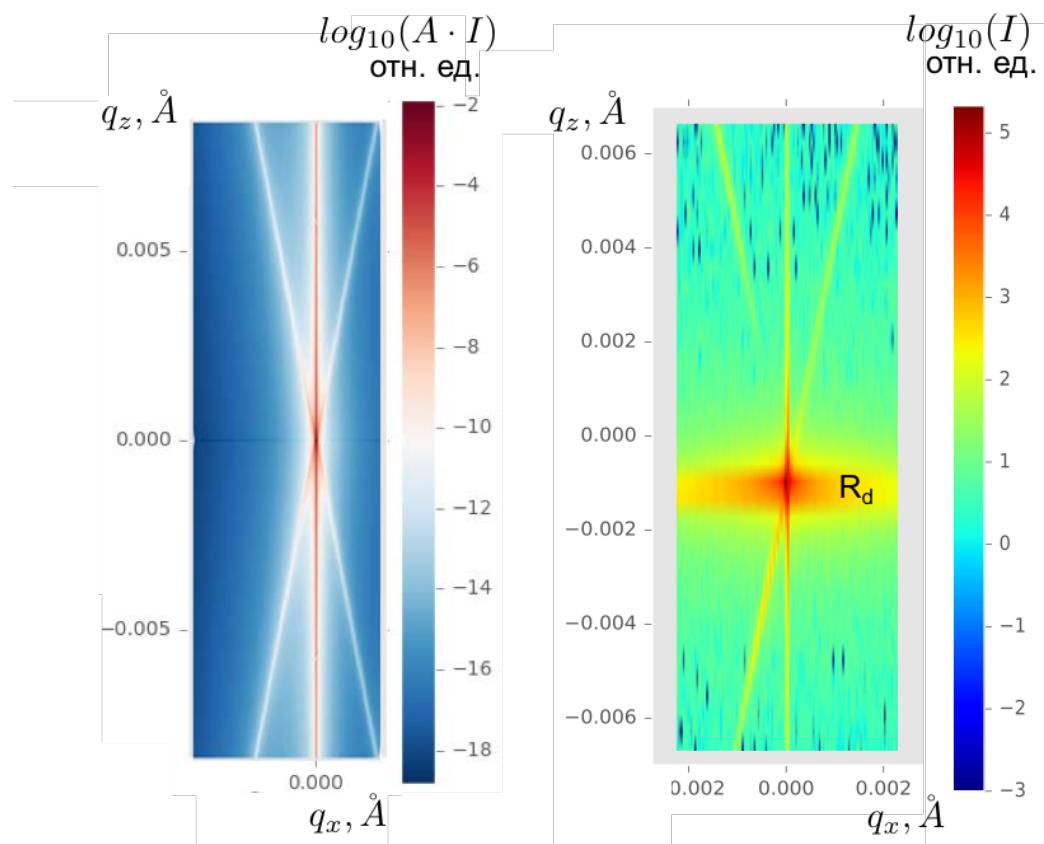


Рисунок. 2.23. Карта распределения интенсивности рассеянного в окрестности узла обратной решетки  $Si(220)$ : слева – расчет, справа – эксперимент.

- 
1. P. J. Brown, A. G. Fox, E. N. Maslen, M. A. O'Keefe and B. T. M. Willis. International Tables for Crystallography (2006). Vol. C, ch. 6.1, pp. 554-595
  2. Coraux J., Favre-Nicolin V., Proietti M.G., et al. // Phys.Rev. B. – 2007. – 75. – 235312
  3. Динамическое рассеяние рентгеновских лучей реальными кристаллами Доценко Молодкин Осиновский
  4. O.M.Lugovskaya and S.A.Stepanov -- Sov. Phys. Crystallogr., vol.36 (1991) p.478-481.
  5. Марченков Н.В., Чуховский Ф.Н., Благов А.Е. // Кристаллография. 2015. Т. 60. № 2. С. 194.
  6. Чуев М.А., Пашаев Э.М., Квадраков В.В., Субботин И.А. // Кристаллография. 2008. Т. 53. № 5. С. 808.