Журнал технической физики, 2012, том 82, вып. 1

01;05

О теории рентгеноакустического резонанса в геометрии Брэгга

© В.И. Пунегов

Коми научный Центр УрО РАН,
167982 Сыктывкар, Россия
e-mail: vpunegov@dm.komisc.ru

(Поступило в Редакцию 22 марта 2011 г.)

Разработана теория рентгеноакустического резонанса в геометрии Брэгга применительно к трехосевой рентгеновской дифрактометрии. В отличие от существующих подходов поперечные ультразвуковые колебания, распространяющиеся в приповерхностной области кристалла, рассматриваются в рамках модели поверхностных волн Рэлея. Проведено численное моделирование карт распределения интенсивности рассеяния вблизи узла обратной решетки, а также их сечений в зависимости от амплитуды ультразвука. Показано влияние многоволнового рассеяния на профили кривых дифракционного отражения разных дифракционных порядков в условиях рентгеноакустического резонанса.

Введение

Из широкого спектра исследований в области рентгеновской акустооптики особое место занимает рентгеноакустический резонанс [1–11]. Явление рентгеноакустического резонанса, впервые упомянутое в работе [1], возникает при условии $\kappa_s \approx \Delta q_0$, где $\kappa_s = 2\pi/\Lambda_s$ — волновое число акустической волны, Λ_s — длина волны ультразвука, Δq_0 — минимальное расщепление двухволновой дисперсионной поверхности. Значительное количество работ как теоретических, так и экспериментальных выполнено для лауэ-дифракции [6]. В этой геометрии рентгеноакустический резонанс вызывает подавление аномального прохождения рентгеновских лучей [1], а также сильно влияет на форму профилей угловых спектров проходящего и дифракционного пучков [4,10]. Что касается геометрии Брэгга, то данной проблеме посвящено незначительное число работ, из которых большинство содержит результаты теоретического рассмотрения [5,7–9,11]. На сегодняшний день имеется только одна экспериментальная работа по рентгеноакустическому резонансу в геометрии Брэгга [5]. Данное обстоятельство прежде всего связано с трудностью самого эксперимента, а также анализом измеряемых результатов. Дело в том, что практически все существующие на сегодняшний день теоретические разработки имеют определенные недостатки и требуют существенной корректировки. Так, в работе [5] получены соотношения, описывающие положение и ширину сателлитов при воздействии ультразвуковых (УЗ) колебаний на совершенный кристалл. На основе уравнений Такаги проведено численное моделирование кривых дифракционного отражения (КДО) с синусоидальным полем атомных смещений малой амплитуды УЗ. В работах [7–9] рентгеноакустический резонанс исследуется с применением аппарата теории возмущений, получены аналитические выражения для рентгеновских полей в случае поперечных и продольных УЗ-колебаний. Наконец, в [11] с использованием четырехволнового приближения получено аналитическое решение динамической дифракции в условиях рентгеноакустического резонанса. На основе этого решения исследована зависимость профилей КДО от амплитуды УЗ-колебаний.

Недостатком всех перечисленных работ является то, что амплитуда поперечных акустических волн в приповерхностной области кристалла, в которой формируется брэгговское отражение, считается величиной постоянной, т. е. не является функцией пространственных координат. Вместе с тем Рэлей еще в 1885 г. [12] показал, что амплитуда акустических волн, распространяющихся вдоль свободной границы твердого вещества, затухает вглубь среды. Вторым существенным упущением теорий является интегральный подход к решению данной проблемы. Дело в том, что при распространении поперечной УЗ-волны вдоль поверхности кристалла дифракционные сателлиты формируются в направлении, перпендикулярном вектору обратной решетки отражающих атомных плоскостей (рис. 1). Следовательно, для двухкристальной дифракционной схе-

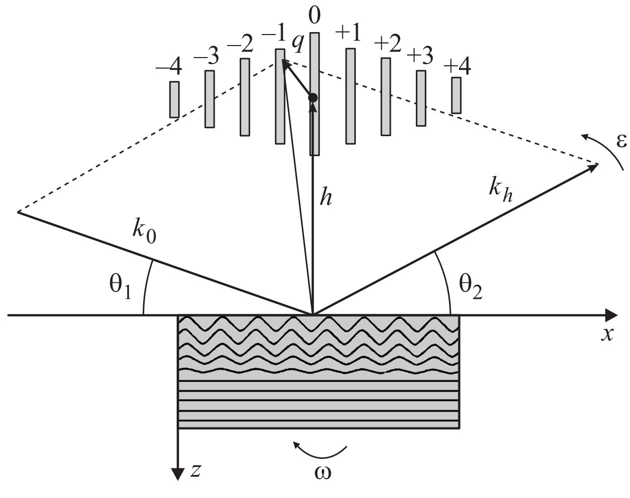

Рис. 1. Схематическое изображение рентгеновской дифракции на кристалле, промодулированном поперечной УЗ волной вдоль поверхности образца.

мы сателлиты будут регистрироваться либо в режиме вращения образца (ω-сканирование), либо в режиме $\theta-2\theta$-сканирования с широкой апертурой детектора при условии, что расстояние между сателлитами в обратном пространстве существенно больше ширины дифракционных пиков [13]. Исходя из этого, решение данной задачи целесообразно искать применительно к дифференциальной или, иными словами, трехкристальной схеме дифракции.

Цель настоящей работы состоит в разработке теоретического подхода, адекватно описывающего рентгеноакустический резонанс в геометрии Брэгга. Существенным моментом разрабатываемой теории является то, что в качестве УЗ-возмущения рассматривается поверхностная волна Рэлея. Кроме того, теория строится применительно к методу высокоразрешающей трехосевой (трехкристальной) дифрактометрии, что позволяет исследовать двумерные карты распределения интенсивности рассеяния вблизи узла обратной решетки [14,15]. Кроме того, такой подход дает возможность проводить количественный анализ влияния акустических полей на дифракцию рентгеновских лучей в несовершенном кристалле, тем самым получать дополнительную информацию, недоступную с использованием других методов.

Модуляция кристаллической решетки акустической волной

Поскольку в геометрии Брэгга дифракция возникает в приповерхностном кристаллическом слое, решетка которого деформирована под действием УЗ-колебаний, сначала рассмотрим решение для периодического поля атомных смещений. Используя граничные условия, решение для поверхностной волны Рэлея может быть описано в виде [14,16]

$$u_z(x,z) = u_z(z)\exp\left[i(\kappa_s x - \omega_s t)\right], \tag{1}$$

где ω_s — частота поверхностной акустической волны (ПАВ). Амплитуды атомных смещений $u_z(z)$ представляют собой сумму двух составляющих

$$u_z(z) = \sum_{j=1}^{2} u_{jz}(z). \tag{2}$$

Стоящие под знаками суммы функции

$$u_{1z}(z) = u_0\exp(-\mu_1 z), \tag{3}$$

$$u_{2z}(z) = -u_0\left(1 - \frac{c_r^2}{2c_\tau^2}\right)\exp(-\mu_2 z) \tag{4}$$

экспоненциально уменьшаются вглубь кристалла с коэффициентами затухания $\mu_1 = \kappa_s\left(1 - (c_r^2/c_\tau^2)\right)^{1/2}$ и $\mu_2 = \kappa_s\left(1 - (c_r^2/c_l^2)\right)^{1/2}$. Заметим, что эти коэффициенты

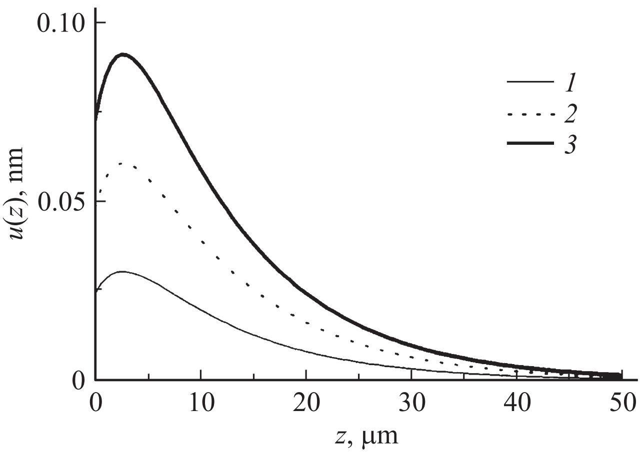

Рис. 2. Профили упругих смещений $u_z(z)$ для 127° Y'-среза кристаллов $LiNbO_3$ при различных значениях амплитуды модуляции u_0, nm: *1* — 0.05, *2* — 0.10, *3* — 0.15. Длина волны ультразвука $\Lambda_s = 12.5\,\mu$m.

зависят от κ_s, т. е. от длины акустической волны. В соотношениях (3) и (4) параметр u_0 — некоторая константа, не зависящая от координат и времени, c_r — скорость волны Рэлея, c_l — продольная и c_τ — поперечная скорости акустических волн в кристалле.

Как видно из решений (2)–(4), амплитуда ПАВ в приповерхностной области кристалла не является величиной постоянной, как это предполагается в теориях [5,7–9,11], а зависит от пространственных координат.

Скорость распространения УЗ-волны вдоль оси x, например, для 127° Y'-среза кристалла $LiNbO_3$ составляет $c_r = 3980$ m/s, продольная скорость $c_l = \sqrt{c_{11}/\rho} = 6622$ m/s и поперечная скорость $c_\tau = \sqrt{c_{44}/\rho} = 4047$ m/s, где величина $\rho = 4629\,\mathrm{kg\,m^{-3}}$ — плотность вещества $LiNbO_3$ [17], $c_{11} = 20.3 \cdot 10^{10}\,\mathrm{Nm^{-2}}$ и $c_{44} = 7.58 \cdot 10^{10}\,\mathrm{Nm^{-2}}$ — упругие константы [18].

Для этих параметров на рис. 2 показаны профили упругих смещений $u_z(z)$ в зависимости от величины амплитуды модуляции u_0.

Отметим, что при учете продольных и поперечных атомных колебаний кристаллической решетки кроме вертикальных смещений (2) возникают также латеральные смещения $u_x(z)$ [16,18], которые по величине заметно меньше $u_z(z)$ и быстро затухают вглубь кристалла. В рентгенодифракционных экспериментах в брэгговской геометрии невозможно обнаружить пульсирующие с частотой ультразвука латеральные деформации. Более того, поскольку скорость света существенно превышает скорости упругих волн в кристалле, то, как правило, при исследовании рентгеноакустического резонанса понимается дифракция на мгновенной поверхностной решетке, а временную зависимость в (1) оставляют за рамками рассмотрения.

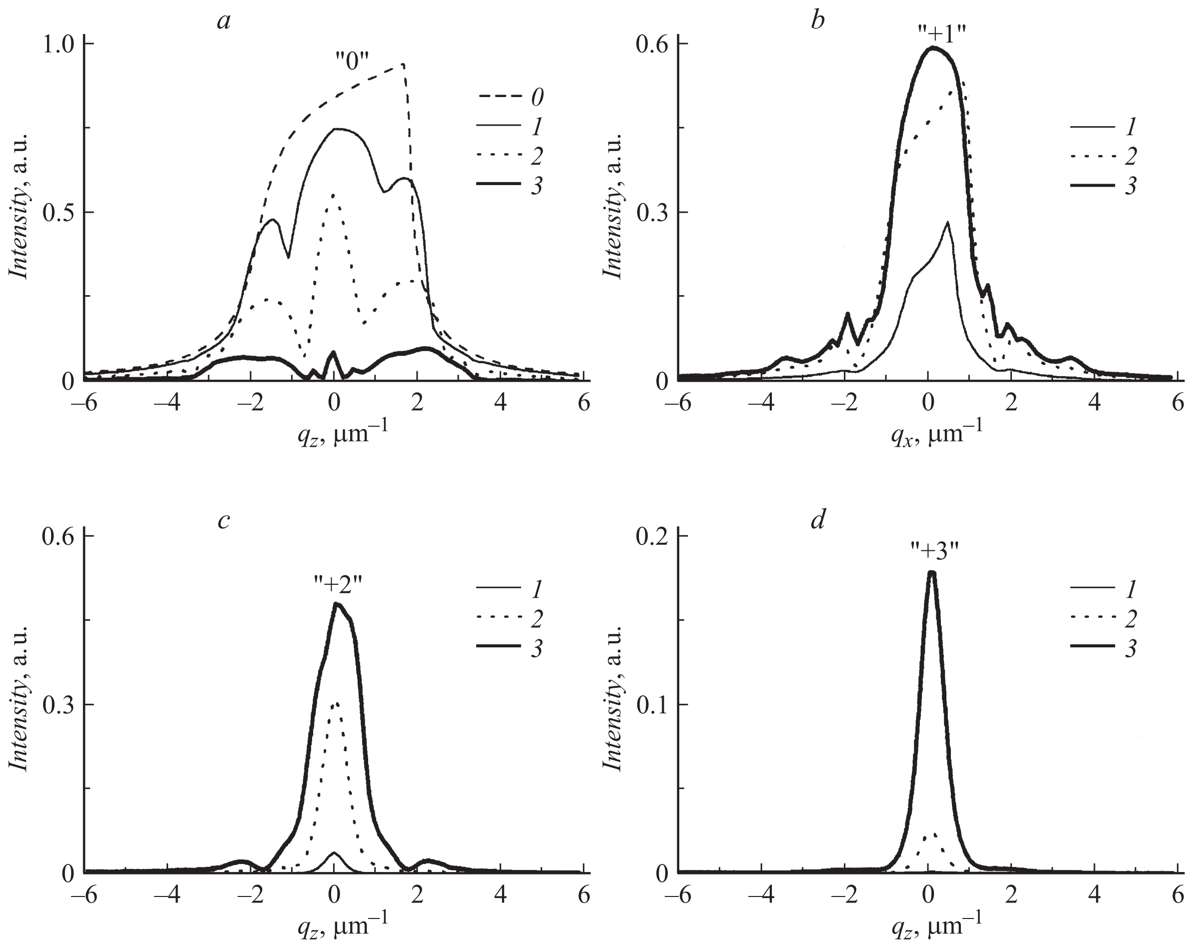

Рис. 3. Расчетные профили КДО дифракционных сателлитов в условиях рентгеноакустического резонанса в геометрии Брэгга. Штриховая линия (*0*-кривая) на рис. *a* — отсутствие УЗ-модуляции. Амплитуда модуляции u_0, nm: *1* — 0.05, *2* — $u_0 = 0.10$, *3* — 0.15. Длина волны ультразвука $\Lambda_s = 12.5\,\mu$m. „+1"–„+3" на рис. *b–d* — дифракционные порядки КДО.

Дифракции рентгеновских лучей на ультразвуковой сверхрешетке

Рентгеноакустический резонанс в геометрии Брэгга представляет собой задачу многоволнового рассеяния рентгеновских лучей [3,5–9,11]. Схематическое изображение дифракционной геометрии в обратном пространстве представлено на рис. 1. Пусть входная поверхность кристалла параллельна оси x, ось z направлена вглубь кристалла. На рис. 1 $\boldsymbol{k}_{h,0}$ — волновые векторы дифрагированной и проходящей волны соответственно, $\mathbf{h}$ — вектор обратной решетки отражающих атомных плоскостей, $\mathbf{q} = \boldsymbol{k}_h - \boldsymbol{k}_0 - \mathbf{h}$ — вектор, определяющий отклонение $\boldsymbol{k}_h - \boldsymbol{k}_0$ от узла обратной решетки. Для простоты рассмотрение проведем применительно к симметричной геометрии Брэгга. В этом случае углы $\theta_{1,2}$, определяющие направления падающей и дифрагированной волн относительно входной поверхности кристалла (рис. 1), равны углу Брэгга θ_B. В трехкристальной рентгеновской дифрактометрии проекции вектора $\mathbf{q}$ в плоскости дифракции выражаются через угловые параметры вращения образца ω и анализатора ε как

$$q_x = (2\pi/\lambda)(2\omega - \varepsilon)\sin\theta_B,$$

$$q_z = -(2\pi/\lambda)\varepsilon\cos\theta_B,$$

где λ — длина волны рентгеновского излучения в вакууме.

Процедура получения уравнений, описывающих рентгеновскую дифракцию на латерально модулированном кристалле применительно к трехкристальной дифрактометрии, подробно изложена в [14]. Показано, что в случае падения на кристалл плоской рентгеновской волны отличную от нуля амплитуду дифрагированный пучок должен иметь при значениях q_x, кратных волновому числу латеральной модуляции κ_s, т.е. при значениях $q_x^n = n\kappa$, где $n = 0, \pm1, \pm2\dots$ — номера дифракционных порядков. Многоволновая дифракция в симметричной геометрии Брэгга на кристалле, промодулированном ПАВ для произвольного, например, n-го дифракционного порядка может быть описана системой уравнений вида

$$\begin{cases} \dfrac{\partial E_{0,n}}{\partial z} = ia_0 E_{0,n} + ia_{-h} f \sum\limits_{m=-\infty}^{\infty} J_m(hu_z) E_{h,n+m}, \\ -\dfrac{\partial E_{h,n}}{\partial z} = i(a_0 - q_z) E_{h,n} + ia_h f \sum\limits_{m=-\infty}^{\infty} J_m(hu_z) E_{0,n+m}, \end{cases} \tag{5}$$

где $a_0 = \pi\chi_0/(\lambda \sin\theta_B)$ и $a_{h,\bar{h}} = C\pi\chi_{h,\bar{h}}(\lambda \sin\theta_B)$ — динамические коэффициенты, C — поляризационный фактор, $\chi_{0,h} = -r_0\lambda^2 F_{0,h}/(\pi V_c)$ — фурье-компоненты рентгеновской поляризуемости, V_c — объем элементарной ячейки, $r_0 = e^2/(mc^2)$ — классический радиус электрона, e,m — заряд и масса электрона, $F_{0,h}$ — структурные факторы в направлении прохождения и дифракции рентгеновской волны, f — статический фактор Дебая–Валлера, $J_m(hu_z)$ — функции Бесселя m-го порядка.

Система уравнений (5) при условии $q_x^n - n\kappa_s = 0$ зависит только от углового параметра q_z. Это означает сканирование в $\theta - 2\theta$-режиме вдоль вертикальной оси, при этом $I_{h,n}(q_z) = |E_{h,n}(q_z; z = 0)|^2$ прописывает профиль КДО сателлита с номером n или при $n = 0$ основного (нулевого) пика УЗ-сверхрешетки. Наличие суммы в правой части уравнений (5) указывает на то, что для углового положения основного максимума или определенного сателлита, например, с номером n, имеет место не только динамическое взаимодействие проходящей и отраженной волн данного дифракционного порядка, но и взаимодействие с волнами других сателлитов.

В случае широкого фронта падающей на кристалл рентгеновской волны КДО для каждого сателлита представляют собой узкие полосы (crystal truncation rod (CTR)) в вертикальном направлении обратного пространства. Однако в реальном эксперименте падающий рентгеновский пучок пространственно ограничен и в отличие от идеальной плоской волны имеет угловую расходимость. Кроме того, необходимо учитывать аппаратурные искажения, возникающие при отражении рентгеновских лучей от монохроматора и анализатора. Ширина CTR в обратном пространстве определяется вышеуказанными факторами и описывается некоторой функцией $\Phi(q_x)$, которая может иметь, например, войтовский или псевдо-войтовский профиль [19].

Карты распределения интенсивности рассеяния в обратном пространстве от УЗ-сверхрешетки в геометрии Брэгга вычисляются с помощью выражения

$$I_h(q_x, q_z) = \sum_n I_{h,n}(q_z)\Phi(q_x). \tag{6}$$

Численное моделирование

На основе уравнений (5) и (6) проведено численное моделирование КДО (q_z-сечений), q_x-сечений и карт распределения интенсивности рассеяния с учетом

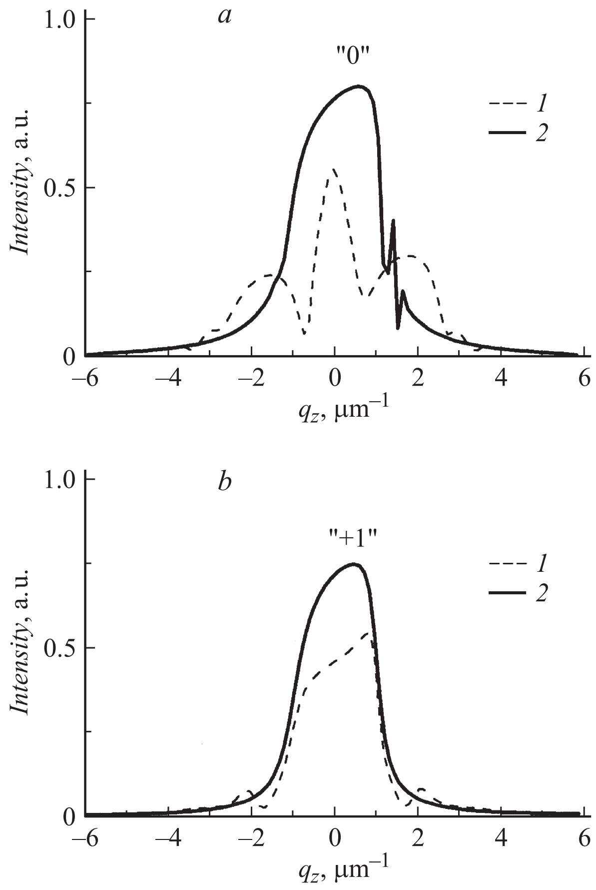

Рис. 4. Расчетные профили КДО нулевого (a) и первого (b) порядков с учетом (1) и без учета (2) многоволнового рассеяния. Амплитуда модуляции $u_0 = 0.10$ nm, длина волны ультразвука $\Lambda_s = 12.5\,\mu$m.

нулевого, первого, второго и третьего дифракционных порядков (сателлитов) от 127° Y'-среза кристалла $LiNbO_3$ в условиях рентгеноакустического резонанса в зависимости от амплитуды УЗ. Все вычисления выполнены для (104) отражения σ-поляризованного $CuK_{\alpha 1}$-излучения. Угол Брэгга для выбранного отражения составляет 16, 350 угл. град., межплоскостное расстояние $d_{104} = 2.7363$ Å, фурье-компоненты рентгеновской поляризуемости $\chi_0 = (-2.7104 + i0.1055) \cdot 10^{-5}$, $\chi_h = (-1.237 + i0.0997) \cdot 10^{-5}$ [17].

В численном моделировании толщина кристалла составляла 100 μm, при этом расчетная КДО от невозмущенного УЗ-волной образца не отличалась от дарвиновской кривой полубесконечного кристалла (рис. 3, a). Минимальное расщепление двухволновой дисперсионной поверхности $\Delta q_0 = 2\pi C|\chi_h|/(\lambda \cos\theta_B)$ [5] для рассматриваемого случая составляет $0.527\,\mu\text{m}^{-1}$, что в условиях рентгеноакустического резонанса соответствует длине волны ультразвука $\Lambda_s = 11.9\,\mu$m. Расчеты выполнены для $\Lambda_s = 12.5\,\mu$m ($\kappa_s = 0.5\,\mu\text{m}^{-1} < q_0$, условие резонанса выполняется, ветви дисперсионных гипербол частично пересекаются) и профилей упругих смещений $u_z(z)$, представленных на рис. 2. В данном

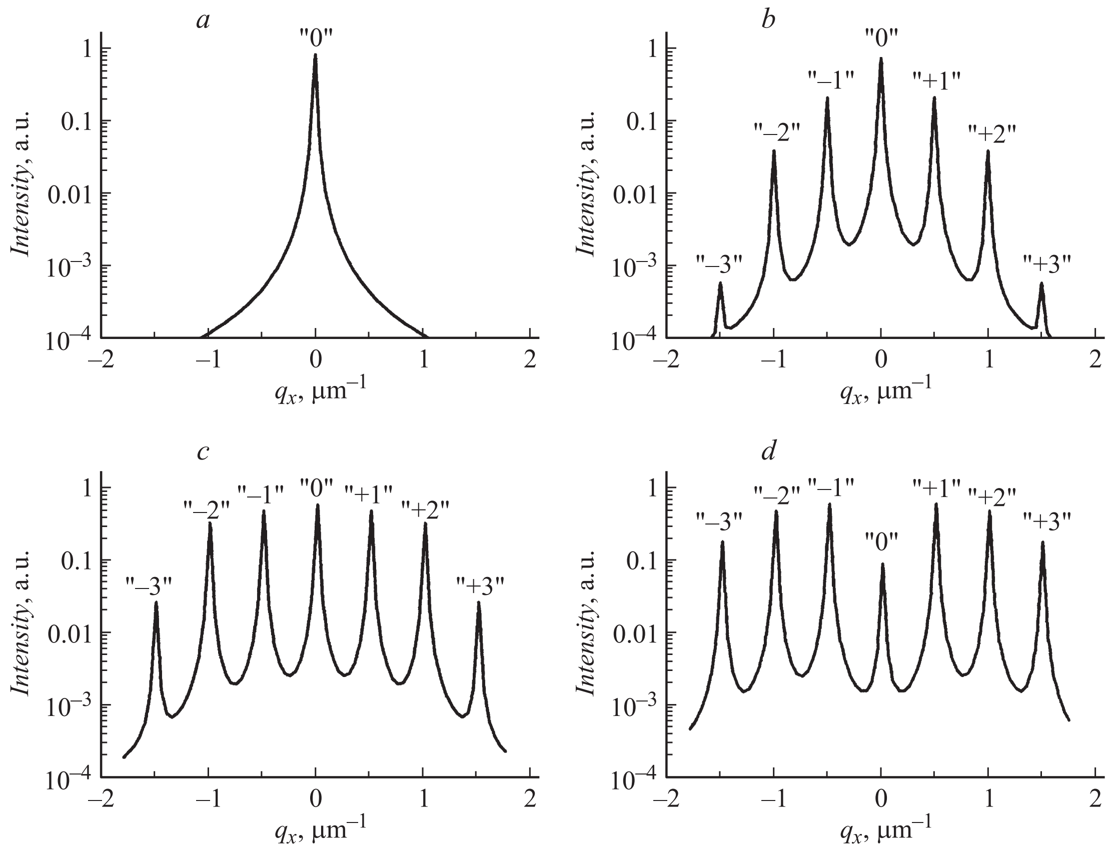

Рис. 5. Дифракционные кривые в режиме ω-сканирования (q_x — сечения). Амплитуда модуляции u_0, nm: a — 0, b — 0.05, c — 0.10, d — 0.15. Длина волны ультразвука $\Lambda_s = 12.5\,\mu$m.

случае функция $\Phi(q_x)$ имеет псевдо-войтовский профиль с одинаковыми весами зависимостей Лоренца–Гаусса.

На рис. 3 показаны профили КДО нулевого порядка и трех ближайших сателлитов для разных значений амплитуды модуляции u_0. Наложение УЗ-возмущения относительно малой амплитуды ($u_0 = 0.05$ nm) приводит к искажению дарвиновской кривой в угловой области нулевого порядка (кривые *0* и *1* на рис. 3, a). Одновременно возникает сателлит первого порядка с профилем КДО, напоминающим дарвиновскую кривую, и сателлит второго порядка малой интенсивности (рис. 3, b,c). Последовательное увеличение амплитуды УЗ-волны подавляет интенсивность нулевого порядка и приводит к возрастанию пиков дифракционных сателлитов. Появление двух боковых „горбов“ на КДО нулевого максимума при наличии УЗ-возмущения связано с процессами многоволнового рассеяния, т.е. с динамическим взаимодействием рентгеновских волн разных дифракционных порядков. Для подтверждения этого вывода на рис. 4 показаны расчетные КДО нулевого и первого порядка с учетом и без учета процессов многоволнового рассеяния. В последнем случае система уравнений (5) рассматривается в двухволновом приближении, стоящая в правой части уравнений сумма заменяется соответствующими выражениями данного сателлита. Нетрудно видеть, что пренебрежение взаимодействием рентгеновских волн разных дифракционных порядков даже при относительно большой амплитуде модуляции оставляет профили КДО в виде дарвиновских кривых. Учет многоволнового рассеяния существенно изменяет профили КДО, особенно это ярко проявляется для нулевого дифракционного порядка (рис. 4, a).

Известно, что полуширина КДО идеального кристалла определяется фурье-компонентой рентгеновской поляризуемости χ_h. При наличии в кристалле УЗ-колебаний постоянной амплитуды u_0 степень взаимодействия рентгеновских лучей с кристаллом, например для сателлита с номером n, находится в соответствии с численным значением произведения $\chi_h J_n(hu_0)$ [5], где $J_n(hu_0)$ — функция Бесселя порядка n. Именно это значение характеризует ширину дифрационных сателлитов: чем меньше значение соответствующей функции Бесселя, тем более узкими становятся дифракционные порядки. Хотя, как следует из рис. 3, ширины сателлитов с ростом n уменьшаются, в рассматриваемом случае оценить эти ширины по значениям функций Бесселя достаточно сложно. Дело в том, что в системе уравнений (5) аргументы функции Бесселя зависят от координаты z, в результате эти функции на разной глубине кристалла имеют разные значения. Все это усложняет не толь-

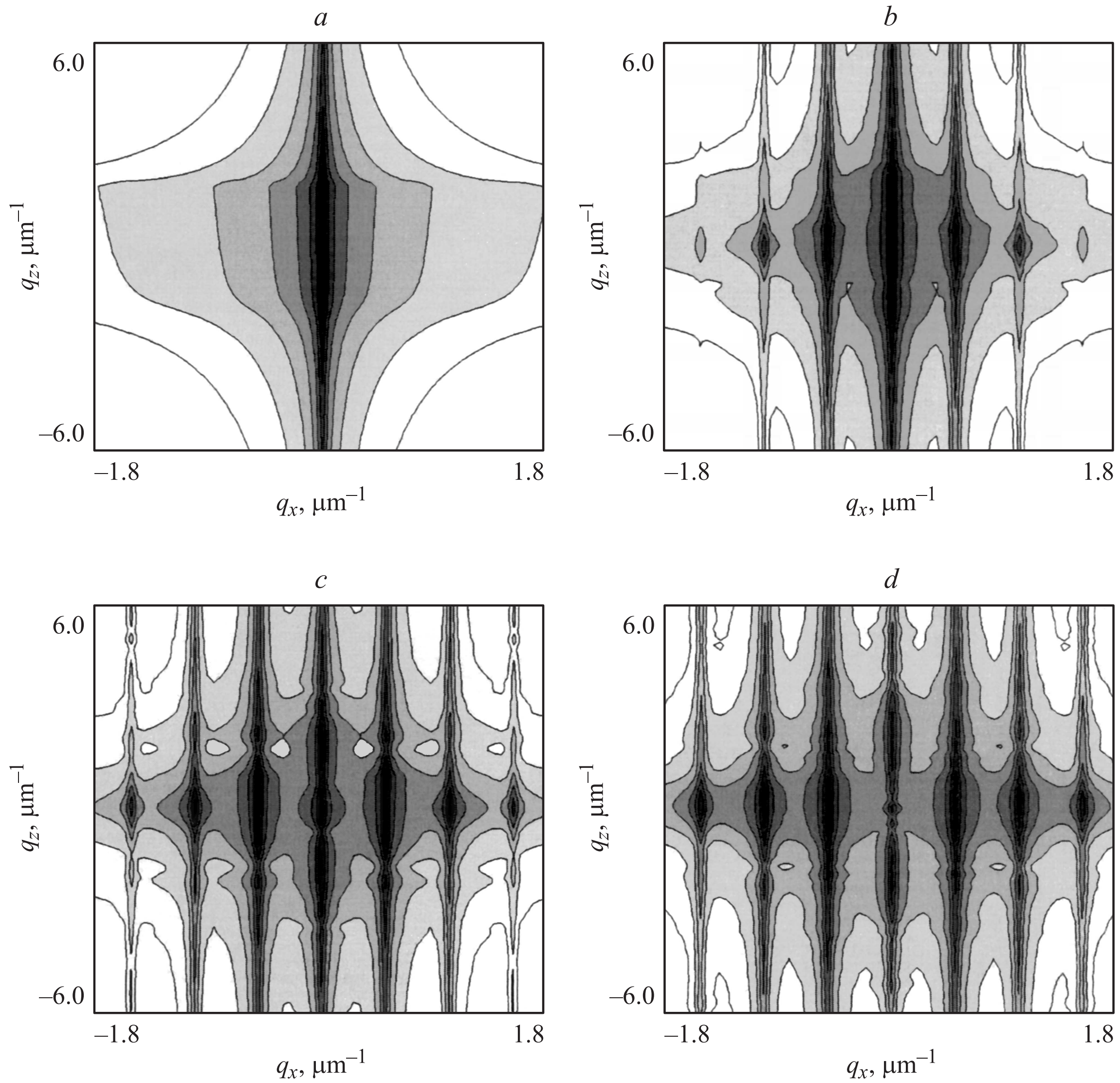

Рис. 6. Карты распределения интенсивности рассеяния вблизи узла обратной решетки (104) $LiNbO_3$. Амплитуда модуляции u_0, nm: a — 0, b — 0.05, c — 0.10, d — 0.15. Длина волны ультразвука $\Lambda_s = 12.5\,\mu$m.

ко интерпретацию результатов при больших значениях амплитуды УЗ [13], но и накладывает трудности на численное решение системы дифференциальных уравнений (5).

На рис. 5 представлены q_x-сечения в отсутствие (рис. 5, a) и при наличии в кристалле УЗ-волн разной амплитуды (рис. 5, b–d). Профили приведенных сечений находятся в полном соответствии со значениями интенсивностей КДО при $q_z = 0$ (рис. 3). Акустическая волна относительно большой амплитуды ($u_0 = 0.15$ nm) подавляет нулевой порядок (центральный пик на рис. 5, d), профиль которого показан кривой *3* на рис. 3, a.

Карты распределения интенсивности рассеяния вблизи узла обратной решетки (104) $LiNbO_3$ изображены на рис. 6. Контуры равной интенсивности приведены в логарифмическом масштабе, отношение интенсивностей между соседними линиями равно 0.273. В отсутствие акустической модуляции дифракционная картина симметрично отображает поведение дарвиновской кривой (рис. 6, a). Наличие УЗ-модуляции вызывает появление дифракционных CTR, форма которых зависит от амплитуды акустической волны.

Таким образом, в настоящей работе вопреки утверждению о том, что сателлиты в геометрии Брэгга возникают лишь при условии $\kappa_s > \Delta q_0$ [5], показано, что дифракционные порядки могут регистрироваться и при $\kappa_s < \Delta q_0$. Все определяется дифракционной системой и угловым разрешением регистрируемого излучения.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проект № 10-02-00445-а) и Программы развития вычислительных, телекоммуникационных и информационных ресурсов УрО РАН — РЦП-2011 (проект П1).

Список литературы

[1] *Энтин И.Р.* // Письма в ЖЭТФ. 1977. Т. 26. Вып. 5. С. 392–395.
[2] *Entin I.P.* // Phys. Stat. Sol. (B). 1978. Vol. 90. № 2. P. 575-584.
[3] *Энтин И.Р.* // ЖЭТФ. 1979. Т. 77. Вып. 1. С. 214–222.
[4] *Entin I.R., Assur K.P.* // Acta Cryst. 1981. Vol. A37. P. 769–774.
[5] *Ассур К.П., Энтин И.Р.* // ФТТ. 1982. Т. 24. Вып. 7. С. 2122–2129.
[6] *Энтин И.Р.* Динамические эффекты в акустооптике рентгеновских лучей и тепловых нейтронов. Автореф. докт. дис. Черноголовка. Институт физики твердого тела, 1986. 285 с.
[7] *Polikarpov I.V., Skadorov V.V.* // Phys. Stat. Sol. (B). 1987. Vol. 143. № 1. P. 11–17.
[8] *Поликарпов И.В., Скадоров В.В.* // Весцi АН БССР. Сер. фiз-мат. наук, 1987. № 6. С. 95–101.
[9] *Поликарпов И.В., Скадоров В.В.* // Весцi АН БССР. Сер. фiз-мат. наук, 1988. № 3. С. 83–89.
[10] *Пунегов В.И., Павлов К.М.* // ЖТФ. 1994. Т. 64. Вып. 11. С. 189–192.
[11] *Прудников И.Р.* // Вестн. Моск. ун-та. Сер. 3. Физ. Астрон. 1996. № 3. С. 56–61.
[12] *Rayleigh L.* Proc. London Math. Soc. 1885. Vol. 7. P. 4–11.
[13] *Пунегов В.И.* // Письма в ЖТФ. 2003. Т. 29. Вып. 19. С. 52–59.
[14] *Punegov V.L., Nesterets Ys.I., Roshchupkin D.V.* // J. Appl. Cryst. 2010. Vol. 43. № 3. P.520–530.
[15] *Пунегов В.И., Казаков Д.В., Иржак Д.В., Пунегов Д.В., Рощупкин Д.В., Нестерец Я.И.* // Письма в ЖТФ. 2007. Т. 33. Вып. 6. С. 33–40.
[16] *Feenstra P.J.* Modeling and Control of Surface Acoustic Wave Motors. Enschede.Netherlands: PrintPartners Ipskamp 2005. 171 p.
[17] *Stepanov S.A.* // http://sergey.gmca.aps.anl.gov
[18] *Kannan T.* Finite Element Analysis of Surface Acoustic Wave Resonators. Master Thesis. University of Saskatchewan 2006. 115 p.
[19] *Ida T., Ando M., Toraya H.* // J. Appl. Cryst. 2000. V. 33. P. 1311–1316.