

Аномальное рассеяние и каналирование рентгеновского излучения внутри полых микрокапиллярных структур

М. И. Мазурицкий¹⁾, П. В. Махно

Южный федеральный университет, 344090 Ростов-на-Дону, Россия

Поступила в редакцию 14 июля 2008 г.

Исследованы рентгеновские Si $L_{2,3}$ – спектры XANES и спектры отражения, полученные при скользящем падении излучения на стеки каналов микроканальных пластин. В длинноволновой рентгеновской области при аномальном рассеянии в окрестности L -краев поглощения кремния обнаружено каналирование вторичного излучения, спектральный состав которого не изменяется на выходе микроканалов. Поверхностно связанное распространение рентгеновской флуоресценции, возбуждаемой внутри микроканалов, возникает при углах падения, меньших $\theta \approx \theta_c/2$.

PACS: 42.50.+h, 61.85.+p, 78.70.Ck, 78.70.Dm, 78.70.En

Исследование особенностей трансмиссии рентгеновского излучения через микрокапиллярные структуры с целью создания новых фокусирующих устройств, в том числе в длинноволновом рентгеновском диапазоне, – одна из приоритетных задач физики, решение которой сулит появление востребованных методов, инструментов и эффективных технологий для физики, материаловедения, биологии, медицины.

Большой научный и практический интерес представляют методики скользящего падения рентгеновских лучей, основанные на исследовании вторичного отклика твердого тела на поглощение атомами падающего излучения. При углах скольжения, меньших критического, наряду с упругим рассеянием возникает флуоресцентное рентгеновское излучение, если падающие фотоны способны возбуждать соответствующие атомные уровни. Отражение и выход флуоресценции происходит с малых глубин, спектрально характеризуя электронные и оптические свойства приповерхностных слоев вещества. В работах [1, 2] показано, что при определенных условиях рентгеновское флуоресцентное излучение, возникающее внутри микро- и наноканалов в результате возбуждения внутриатомных уровней, может изменять пространственное распределение интенсивности. Режим транспортировки излучения может быть модовым, связанным, в том числе с поверхностным каналированием фотонов внутри микрокапиллярных структур [3].

В данной работе получены рентгеновские Si $L_{2,3}$ – спектры XANES (рис.1) на выходе поликапиллярных структур при скользящих углах падения излуче-

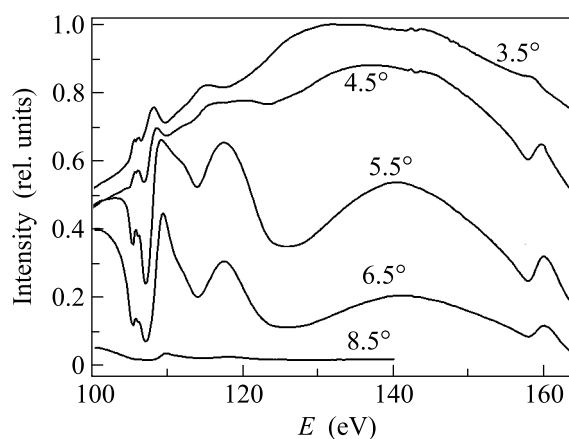


Рис.1. Спектры микроканальных пластин в окрестности L -края поглощения кремния, полученные при различных углах падения излучения на стенки каналов

ния на стенки каналов. Образцы представляли собой тонкие (≈ 0.5 мм) “дырчатые” (диаметр каналов порядка 8 мкм) пластины, состоящие преимущественно из силикатного стекла. Получены также спектры (рис.2) микроканальных пластин (МКП), подвергнутых предварительно специальной технологической обработке – прогреву в атмосфере водорода. Термоводородное восстановление меняет электрофизические свойства стекла, модифицирует структуру поверхности микроканалов, в том числе за счет изменения окисного состояния кремния.

Тонкая структура представленных рентгеновских спектров получена с разрешением 0.1 эВ на рентгеновском спектрометре MUSTANG, RGBL-PGM в синхротронном центре BESSY (Германия). Спектры возбуждались монохроматическим излучением, сканируя по энергии в окрестности соответствующих

¹⁾e-mail: mazurmik@aaanet.ru

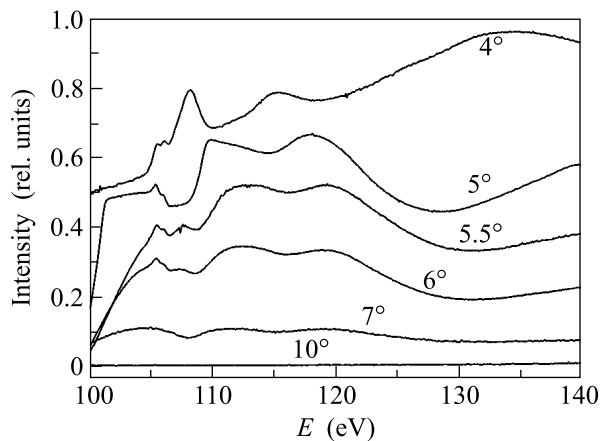


Рис.2. Спектры микроканальных пластин, подвергнутых термоводородному восстановлению, полученные при различных углах падения излучения на стенки каналов

краев поглощения. Регистрировалась интегральная интенсивность рентгеновского излучения, прошедшего через микроканалы образца. При закреплении образцов обеспечивалась их электроизоляция от металлической поверхности держателя. На рис.3 схематично изображены лучи (1), направленные почти перпендикулярно к поверхности пластины, что соответствует скользящим углам падения на стенки микроканалов. Излучение (3), прошедшее через МКП (2), поглощалось пластиной (4) и регистрировалось в токовом режиме. Изменение угла падения достигалось поворотом образца вокруг осей x , y .

На рис.1 показаны экспериментальные спектры XANES, полученные при различных скользящих углах падения излучения. Тонкая структура появлялась при углах, меньших 8° , то есть в условиях полного внешнего отражения. Значение критического угла соответствует экспериментальным данным [4, 5] для стекла в окрестности $L_{2,3}$ -края поглощения Si. Максимумы в интервале 100–140 эВ отражают тонкую структуру спектра в окрестности $L_{2,3}$ -края поглощения Si, в области энергии 160 эВ находится L_1 -край поглощения Si. Структура спектра 2 на рис.1 соответствует той, что получена в работах [5–7] для плоской поверхности SiO_2 . Однако в наших образцах излучение попадало внутрь длинных и узких микроканалов, что не позволяло отраженным лучам напрямую выходить наружу. При поперечной длине волны $\lambda_\perp = \lambda/\theta$, намного превосходящей длину волны падающего излучения, осуществляется поверхностно-связанное каналирование [3]. Подчеркнем, что на выходе из каналов тонкая структура полученных спектров остается такой же, как в спектрах отражения.

При уменьшении скользящего угла интенсивность возрастает, особенно в высокоэнергетической части спектра. При достижении угла порядка 4° (см. спектр 5), тонкая структура однозначно определяет спектр выхода флуоресценции – FY (см. [8–11]). Как известно, пространственное распределение флуоресценции практически изотропно. Возрастание интенсивности может происходить при транспортировке флуоресцентного излучения внутри каналов. В работе [2] показано, что для МКП L-спектры флуоресценции Si, зарегистрированные в обратном направлении, могут иметь “инверсную” тонкую структуру. Это также указывает на захват возбужденной флуоресценции и направленное ее распространение вдоль микроканалов. Аналогично отраженному излучению, испущенная L-флуоресценция Si захватывается и транспортируется микрокапиллярами.

На рис.4 изображены $L_{2,3}$ -спектры МКП Si, полученные при различных режимах съемки: 1, 2 – распространение излучения внутри микроканалов (см. рис.3), 3 – поглощение в стекле падающего излучения, когда образец находился в контакте с металлическим держателем. Для всех спектров выполнена аппроксимация фона полиномом с опорой на значения интенсивности на гладких участках до и после тонкой структуры вблизи края поглощения. Здесь первый раздвоенный максимум а ассоциируется с переходом на свободные s -состояния у дна зоны проводимости, пики **b**, **c**, **d** – переходы на свободные электронные состояния d -симметрии [12]. Основная структура всех спектров одинаковая, что свидетельствует о том, что флуоресцентное излучение, возбужденное внутри каналов, транспортируется так, что его спектральный состав не претерпевает заметных изменений.

На рис.2 изображены спектры, полученные от МКП, предварительно подвергнутых термоводородному восстановлению. Тонкая структура спектров 2–4 отличается от той, что приведена на рис.1. Спектр 2 отчасти повторяет структуру спектров отражения системы SiO_x [5]. В данном случае это может означать, что модифицированная поверхность стекла имеет окисное состояние кремния SiO_x , где $1 < x < 2$. Так же, как в исходном стекле (рис.1), тонкая структура спектров отражения переходит в соответствующую структуру спектра выхода флуоресценции. Из рис.4 видно, что спектр 2, полученный после вычитания фона, хорошо воспроизводит тонкую структуру спектра поглощения 3.

Идеально падающий пучок разделяется на два: зеркально отраженный и преломленный, который может избирательно поглощаться атомами. Отраже-

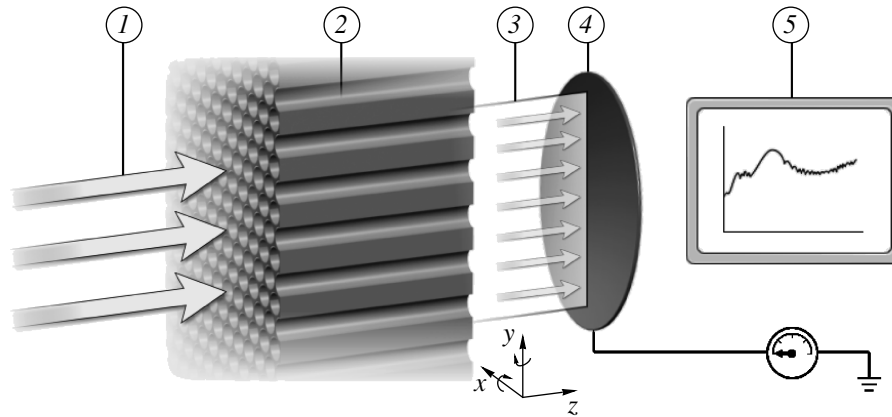


Рис.3. Схема эксперимента: 1 – падающее на стенки каналов монохроматическое излучение; 2 – микроканальная пластина; 3 – выходящее рентгеновское излучение; 4 – металлический держатель образца (коллектор); 5 – система регистрации спектров

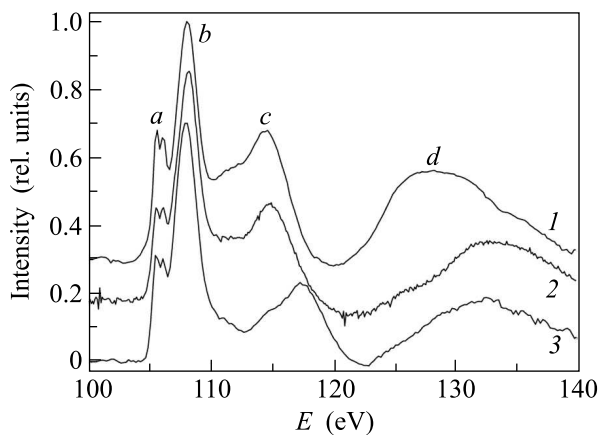


Рис.4. Спектры микроканальных пластин в окрестности $L_{2,3}$ – края поглощения Si: 1, 2 – транспортировка фотонов через микроканалы, 3 – поглощение излучения силикатным стеклом

ние рентгеновских лучей происходит на протяженном участке поверхности, то есть в макрополе, которое характеризуется диэлектрической проницаемостью. Излучение свободно распространяется внутри каналов при скользких углах падения, меньших критического угла полного внешнего отражения θ_c , когда коэффициент отражения приближается к единице. Абсолютно гладких зеркальных поверхностей не бывает. В процессе взаимодействия рентгеновского излучения с приповерхностным слоем необходимо учитывать изменение по глубине диэлектрической проницаемости [13]. Шероховатости создают переходный слой, в верхней части которого расположены, в том числе, отдельные микрообласти, частички стекла. В работе [14] показано, что при поверхностно связанном каналировании угловое распределе-

ние на выходе капилляра имеет максимум при углах, меньших угла падения излучения в канал. В нашем случае часть излучения рассеивается в углы, меньшие 3.5° – 4° и поглощается переходным слоем стекла. Флуоресцентное L-излучение Si избирательно захватывается микроканалами, распространяется внутри полых силикатных капиллярных систем. Как следствие – спектры отражения переходят в спектры выхода флуоресценции, возникающей при поглощении каналирующего излучения. Данные [15] по сечению поглощения в SiO_2 для энергии выше L-края поглощения Si дают возможность оценить длину свободного пробега возбуждающего фотона, которая составляет величину порядка 500 \AA . В данном случае при скользких углах флуоресценция возбуждается с глубины порядка 30 \AA , что может служить оценкой размеров шероховатостей.

Схематично возбуждение L-флуоресценции Si может быть представлено следующим образом. На начальном этапе происходит поглощение фотона, сопровождающееся образованием дырки на внутриатомном уровне. При этом образуется бесфотонное промежуточное состояние, содержащее дырку на внутреннем уровне и виртуальный фотоэлектрон с энергией, больше энергии Ферми. Это возбужденное электрон-дырочное состояние существует конечное время, за которое фотоэлектронная волна рассеивается на окружении, а затем, после рекомбинации электрон-дырочной пары, излучается фотон, то есть электронная система возвращается в исходное состояние. Процессы возбуждения (поглощения) и испускания фотона обычно полагают чисто атомными, происходящими независимо внутри эквивалентных атомов. Однако в работах [16–19] было показано, что для L-спектров Si возможна интерферен-

ция между фотонами, испущенными разными атомами одного сорта. Рассмотрены условия, при которых возможна интерференция флуоресцентного L_3 -излучения Si. В данном случае взаимодействие возбужденных состояний кремния происходит вследствие поверхностно-связанного каналирования возбуждающего излучения. Электромагнитная волна действует на электроны и поляризует атомы кремния, что приводит к появлению переменного во времени дипольного момента. Возникает индуцированный макроскопический момент перехода вследствие фазировки излучателей, которыми являются возбужденные атомы кремния, распределенные вдоль стенок микроканалов. Наведенная корреляция между моментами перехода пространственно разделенных излучателей, взаимодействующих друг с другом через поле излучения, лежит в основе направленного коллективного излучения. В результате эти атомы, находящиеся в макроскопическом объеме, способны излучать когерентно. Одним из условий интерференции флуоресцентного излучения, испущенного пространственно разделенными атомами, является условие, чтобы длина когерентности была больше длины свободного пробега возбуждающего фотона.

Оценим длину когерентности для флуоресцентного излучения, возникающего в результате возбуждения L_3 -края поглощения кремния. Известно, что образовавшееся при поглощении фотона электрон-дырочное возбуждение не является стационарным состоянием электронной подсистемы, а имеет конечное время жизни, превращаясь в более сложные возбужденные состояния этой подсистемы. В частности, дырка может распадаться за счет оже-эффекта [20], а фотоэлектрон может терять энергию, порождая дополнительные электрон-дырочные пары с малой энергией возбуждения. Приближенно учесть конечное время жизни электрон-дырочного возбуждения можно, приняв, что это возбуждение имеет конечную энергетическую ширину Γ , которая обуславливает его конечное время жизни $\tau \sim \hbar/\Gamma$. Для атомов кремния ширина возбужденного L_3 -уровня составляет, согласно [21, 22], 0.014 эВ, а время жизни, соответственно, $\tau = 0.5 \cdot 10^{-13}$ с. Полагаем скорость распространения рентгеновского излучения приближенно равной скорости распространения в вакууме. Максимальный размер области когерентности, в пределах которой может осуществляться фазировка излучателей, можно оценить следующим образом: $l_c \approx \tau \cdot c = 0.14$ мм. Это значительно превышает длину свободного пробега возбуждающего фотона – 500 Å. При возбуждении среды и фазировке излучателей непосредственно каналирующим излучением мо-

жет реализоваться особый режим усиления (сверхизлучение), когда упорядочение достигается за счет узости линий атомных переходов. Длинноволновое излучение, распространяющееся вдоль оси микроканалов, обеспечивает дискриминацию мод поля по направлению вылета рентгеновских квантов.

Распространение излучения в капиллярных системах зависит от взаимодействия излучения с внутренними стенками каналов и определяется значением диэлектрической проницаемости. Спектроскопия ближней тонкой структуры рентгеновского поглощения и спектры отражения ультрамягкого излучения несут информацию о субвалентных, неглубоких электронных состояниях (энергия связи-десятки – сотни эВ). Резонансные явления в рентгеновской спектроскопии наблюдаются вблизи краев поглощения атомов, когда энергии фотонов падающего излучения близки к величине, необходимой для перехода электрона с внутренней электронной оболочки в незанятые состояния внешних оболочек или в непрерывный спектр. Атомная амплитуда резонансного (аномального) рассеяния рентгеновского излучения во многом определяется локальным окружением рассеивающего атома [23]. Для корректных расчетов капиллярных систем в этой области необходимо на основе экспериментальных спектров отражения (поглощения) получить надежные значения действительной и мнимой частей диэлектрической проницаемости. Одним из практически важных приложений является использование изогнутых МКП для получения высокой плотности микрофокусных источников когерентного флуоресцентного рентгеновского излучения.

Работа выполнена при частичной поддержке Russian-German Laboratory at BESSY (проект # 2008_1_70987).

1. А. В. Окотруб, С. Б. Дабагов, А. Г. Кудашов и др., Письма в ЖЭТФ **81**, 37 (2005) [A. V. Okotrub, S. B. Dabagov, A. G. Kudashov et al., JETP Letters **81**, 34 (2005)].
2. М. И. Мазурицкий, Письма в ЖЭТФ **84**, 455 (2006) [M. I. Mazuritskiy, JETP Letters **84**, 381 (2006)].
3. С. Б. Дабагов, УФН **173**, 1083 (2003) [S. B. Dabagov, Physics Uspekhi **46**, 1053 (2003)].
4. P. Tripathi, G. S. Lodha, M. H. Modi et al., Optics Comm. **211**, 215 (2002).
5. E. Filatova, A. Stepanov, C. Blessing et al., J. Phys. Cond. Matter **7**, 2731 (1995).
6. Е. О. Филатова, А. С. Шулаков, В. А. Лукьянов, ФТТ **40**, 1360 (1998).
7. А. С. Виноградов, Е. О. Филатова, Т. М. Зимкина, ФТТ **25**, 1120 (1983).

8. И. А. Брытов, Ю. Н. Ромашенко, ФТТ **20**, 664 (1978).
9. D. Li, G. M. Bancroft, M. Kasrai et al., American Mineralogist **79**, 785 (1994).
10. G. M. Bancroft, M. Kasrai, M. E. Fleet et al., American Mineralogist **79**, 622 (1994).
11. B. Gilbert, B. H. Frazer, F. Naab et al., American Mineralogist **88**, 763 (2003).
12. Laur. A. J. Garvie, P. Rez, J. R. Alvarez et al., American Mineralogist **85**, 732 (2000).
13. R. M. Fechtchenko, A. V. Popov, A. V. Vinogradov, J. of Russ. Laser Res. **21**, 62 (2000).
14. S. B. Dabagov, A. Marcelli, G. Cappuccio et al., Nucl. Instr. and Meth. B **187**, 169 (2002).
15. NIST Scientific and Technical Databases, <http://www.nist.gov/srd/online.htm>
16. Y. Ma, K. E. Miyano, P. L. Cowan et al., Phys. Rev. Lett. **74**, 478 (1995).
17. K. E. Miyano, D. L. Ederer, T. A. Callcott et al., Phys. Rev. B **48**, 1918 (1993).
18. J. A. Carlisle, E. I. Shirley, L. J. Terminello et al., Phys. Rev. B **59**, 7433 (1999).
19. L. Braicovich, A. Tagliaferri, E. Annese et al., Phys. Rev. B **75**, 073104 (2007).
20. Л. Н. Мазалов, *Рентгеновские спектры*, ИХ СО РАН, Новосибирск, 2002.
21. *Unoccupied Electronic States*, Eds. J. C. Fuggle and J. E. Inglesfield, Springer, Berlin, 1992.
22. M. Ohno and G. A. van Riessen, Journ. of Electr. Spectr. and Rel. Phen. **128**, 1 (2003).
23. R. V. Vedrinskii, V. L. Kraizman, A. A. Novakovich, et al., J. Phys.: Condens. Matter. **4**, 6155 (1992).