

Непосредственное наблюдение аномальных линий Косселя

М. А. Чуев¹⁾, М. В. Ковальчук*, В. В. Квардаков*, П. Г. Медведев, Э. М. Пашаев*, И. А. Субботин*, С. С. Якунин*

Физико-технологический институт РАН, 117218 Москва, Россия

*Российский научный центр “Курчатовский институт”, 123182 Москва, Россия

Поступила в редакцию 15 января 2010 г.

Аномальные линии Косселя, соответствующие выходу рентгеновского излучения из кристалла германия в условиях резко асимметричной дифракции, наблюдаются в рамках простейшей экспериментальной схемы с использованием характеристического MoK_{α} излучения и кристалла-анализатора германия. В соответствии с результатами ранее проведенного теоретического анализа такие линии представляют собой узко коллимированный пучок излучения в виде хребта в узком угловом диапазоне в окрестности заданного направления с превышением интенсивности излучения над фоном в несколько десятков раз и расходимостью в плоскости дифракции порядка нескольких угловых секунд, а вдоль линии Косселя – порядка десяти угловых минут. Обсуждаются возможные приложения этого эффекта, в частности, для решения проблем рентгеновской голографии.

Стандартные линии Косселя, то есть специфическое (обусловленное дифракцией) угловое распределение интенсивности характеристической рентгеновской флуоресценции атомов в кристалле, возбужденных электронами, рентгеновским излучением или фотонами, были наблюдаемы еще в 30-х годах прошлого века [1]. Такие линии выглядят как соседние темные и белые полосы на фотопластинке, соответствующие направлениям выхода излучения, которые удовлетворяют условию Брэгга для заданного набора кристаллографических плоскостей и формируют так называемый конус Косселя с центральной осью, параллельной соответствующему вектору обратной решетки \mathbf{H} , и углом раствора $(\pi - 2\theta_B)$, где θ_B – угол Брэгга (рис.1). Характерная форма углового распределения выхода флуоресцентного излучения в дифракционной плоскости (рис.1b) была качественно объяснена в рамках теории динамической дифракции рентгеновских лучей в кристаллах и принципа оптической взаимности [2]. Позднее внутренняя взаимосвязь между методами линий Косселя и стоячих рентгеновских волн была экспериментально продемонстрирована на источнике синхротронного излучения [3]. Метод линий Косселя оказался весьма информативным для определения фаз амплитуд рассеяния рентгеновского излучения и широко используется в рентгеноструктурном анализе [4, 5]. В последнем десятилетии интерес к исследованиям специфики выхода рентгеновского излучения из кристаллов резко возрос в связи с интенсивными исследованиями возможностей метода рентгеновской голографии с атомарным разрешением [6–13], в котором линии

Косселя и стоячие рентгеновские волны являются неизбежными, хотя и нежелательными составляющими экспериментальных голограмм [14].

Все упомянутые выше экспериментальные и теоретические результаты были получены для случая стандартной экспериментальной схемы симметричной дифракции (рис.1), однако ранее была также предсказана аномальная, качественно отличная от стандартной, форма линий Косселя, соответствующих предельно асимметричной схеме дифракции (рис.2) [15, 16]. В такой дифракционной схеме (которая всегда реализуется для набора кристаллографических плоскостей, удовлетворяющих условию $\psi < \pi/2 - \theta_B$) в кристалле на некоторой глубине порядка нескольких десятков нанометров формируется сильно сжатый рентгеновский пучок (рис.2с), распространяющийся практически параллельно поверхности кристалла, а степень сжатия может достигать нескольких сотен раз [17]. Этот эффект нашел свое экспериментальное подтверждение при использовании метода стоячих рентгеновских волн с регистрацией выхода фотоэлектронов в условиях предельно асимметричной схемы дифракции в кристалле кремния [18, 19] с помощью специально разработанного газового пропорционального счетчика [20].

В такой ситуации было естественно ожидать, что сильное сжатие рентгеновского пучка в кристалле должно сказаться и на распределении интенсивности флуоресцентного излучения в окрестности соответствующих предельно асимметричной дифракции направлений вдоль линии Косселя. И действительно, детальный теоретический анализ процесса динамического рассеяния рентгеновских лучей кристаллом и выхода флуоресцентного рентгеновского излучения

¹⁾ e-mail: chuev@ftian.ru

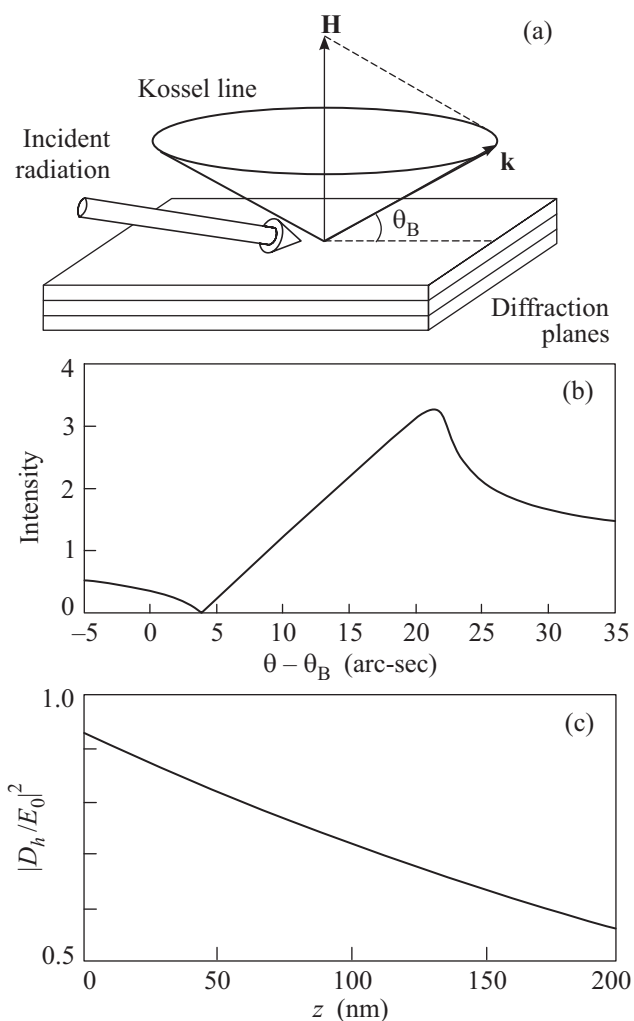


Рис.1. (а) Линия Косселя, соответствующая симметричной дифракции Брэгга. Распределения интенсивности флуоресцентного излучения в поперечном сечении линии Косселя (b) и интенсивности дифрагированной волны по глубине кристалла (c)

в этом случае [16] показал, что распределение интенсивности излучения в окрестности линии Косселя вокруг так называемой “точки вырождения” приобретает форму ярко выраженного пика (рис.2b), более чем на два порядка превышающего фоновую интенсивность [21]. Как видно на рис.2а, положение двух точек вырождения на линии Косселя для заданного набора дифракционных плоскостей (заданного вектора обратной решетки \mathbf{H}) соответствует переходу от геометрии Лауэ к геометрии Брэгга и приблизительно определяется двумя углами:

$$\varphi_{BL} = \sin^{-1}(2 \sin \psi \sin \theta_B), \quad (1)$$

$$\phi_{BL} = \pm \cos^{-1}(\sin \theta_B / \cos \psi). \quad (2)$$

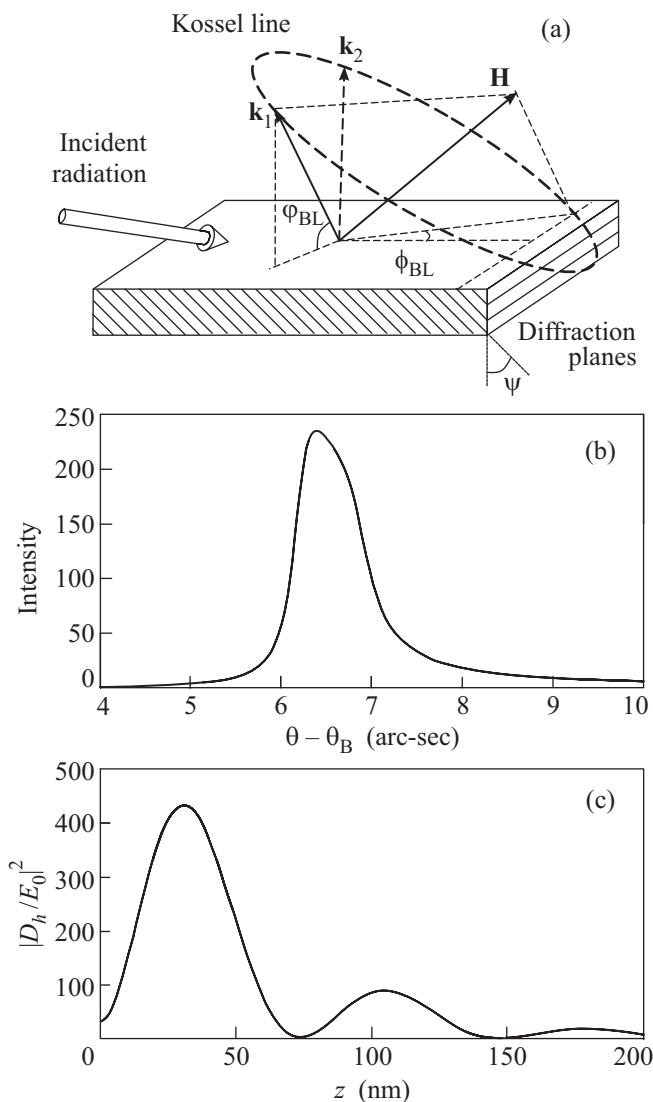


Рис.2. (а) Линия Косселя, соответствующая предельно асимметричной дифракции Брэгга-Лауэ. Распределения интенсивности флуоресцентного излучения в поперечном сечении линии Косселя в точке вырождения (b) и интенсивности дифрагированной волны по глубине кристалла (c)

Точное положение точек вырождения можно найти путем решения дисперсионного уравнения для трехволновой динамической дифракции (с учетом падающей, отраженной и зеркально отраженной волн), которое трехкратно вырождено в этих точках [16, 17, 22]. Форма линии Косселя в окрестности этих точек представляет собой хребет в узком угловом диапазоне с расходимостью в поперечном сечении линии Косселя (в плоскости дифракции) порядка нескольких угловых секунд, а вдоль линии Косселя – порядка 10 угл. мин [16]. Была предложена также схема установки для экспериментального

наблюдения этого эффекта [16], которая ждала своей реализации вплоть до настоящего времени.

На самом деле anomальные линии Коссея уже наблюдались косвенно в многочисленных экспериментах по рентгеновской голографии, но они так и не были идентифицированы. Действительно, для получения чисто голографической информации из угловой зависимости интенсивности флуоресцентного излучения, реально измеренной в таких экспериментах, необходимо применить некоторую последовательность предварительной обработки экспериментальных данных [9]. В частности, после нормировки, а также коррекции “сырых” данных на размер образца и паразитную модуляцию флуоресцентного излучения, обусловленную особенностями экспериментальной схемы, получается остаточная карта углового распределения интенсивности излучения с резкими линиями (см., например, рис.2с и 3а в ссылке [9]), которые вполне резонно приписывают линиям Коссея или стоячим рентгеновским волнам в зависимости от способа измерений (“нормальная” или “обратная” голография, соответственно [8]). Однако наряду с “нормальными” резкими линиями Коссея (проекциями конусов Коссея на поверхность полусферы) на таких картах отчетливо видны также даже более яркие пятна искривленной формы, расположенные в ближайшей окрестности “нормальных” линий Коссея. Более того, форма этих пятен практически не меняется даже после применения “высокочастотного фильтра”, который является необходимой процедурой для извлечения голографической информации из этих данных [14]. Само наличие таких пятен, не говоря об их физической природе, ранее не обсуждалось ни в одной из опубликованных работ. Тем не менее, грубые оценки показывают, что положение этих пятен на “голограммах” соответствует “точкам вырождения” для различных линий Коссея, что приводит к вполне естественному заключению, что физической причиной появления этих пятен является anomальный эффект Коссея [16, 21].

В этой работе мы представляем результаты первого эксперимента, сфокусированного на прямом наблюдении anomальных линий Коссея в рамках простейшей экспериментальной схемы (рис.3) в соответствии с ранее предложенными рекомендациями [16]. Атомы совершенного монокристалла Ge(001) возбуждались рентгеновским излучением стандартной трубки с молибденовым анодом и мощностью 1.5 кВт. Излучение падало на кристалл под скользящим углом $\theta_x \approx 0.5^\circ$ (то есть близким к критическому углу полного внешнего отражения) с целью возбуждения атомов германия лишь в тонком приповерхностном слое

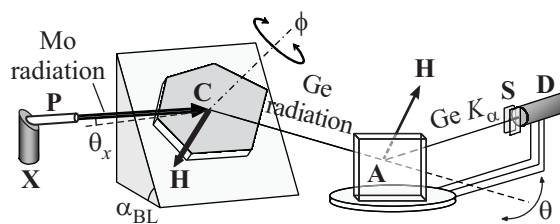


Рис.3. Схема экспериментальной установки для наблюдения anomального эффекта Коссея: рентгеновская трубка с молибденовым анодом (X), дырочный коллиматор (P), кристалл-образец Ge(001) (C), кристалл-анализатор Ge(011) (A), щели (S) и детектор (D)

кристалла, что эффективно усиливает anomальный эффект Коссея [16]. Простейшим способом регистрации линий Коссея, включая anomальные, с достаточным угловым разрешением является использование совершенного кристалла-анализатора [3]. Для того чтобы минимизировать влияние дисперсии флуоресцентного излучения, кристалл-анализатор должен быть изготовлен из того же материала, что и исследуемый образец, и ориентирован таким образом, чтобы векторы обратной решетки **H** исследуемого образца и кристалла-анализатора были параллельны и лежали в плоскости отражения (рис.3).

В нашем эксперименте мы использовали плоский кристалл-анализатор Ge(011) и симметричное отражение от его кристаллографических плоскостей (022) для характеристического излучения Ge $K_{\alpha 1}$. Кристалл-образец был фиксирован на держателе в виде призмы с треугольным основанием, поверхность которого была наклонена под углом

$$\alpha_{BL} = \sin^{-1}(\sin \psi / \cos \theta_B) \quad (3)$$

к плоскости отражения (рис.3), что соответствовало ориентации вектора **H** в плоскости отражения излучения Ge $K_{\alpha 1}$ для заданной “точки вырождения” на конусе Коссея, соответствующего кристаллографическим плоскостям (022) образца. Сцинтилляционный детектор, настроенный на симметричное отражение (022) кристалла-анализатора, и сам анализатор крепились на одной платформе, которая могла вращаться вокруг вертикальной оси. Мы также провели контрольные измерения с использованием энергодисперсионного детектора, разрешение которого позволило нам убедиться, что в такой схеме регистрируется действительно флуоресцентное характеристическое излучение Ge K_{α} (с энергией $E \approx 9.9$ кэВ), а не возбуждающее излучение Mo K_{α} ($E \approx 17.5$ кэВ), рассеянное кристаллом-образцом германия.

Такая экспериментальная установка позволяет проводить измерения угловой зависимости выхода

флуоресцентного излучения (поперечного сечения заданной линии Косселя) в окрестности соответствующей точки вырождения, заданной условиями (1) и (2), в бездисперсионной схеме посредством одновременного вращения кристалла-анализатора и детектора вокруг вертикальной оси, проходящей через геометрический центр кристалла образца. При этом интенсивность флуоресцентного излучения, регистрируемая детектором, естественно определяется сверткой интенсивности излучения образца в пределах линии Косселя и кривой отражения от кристалла-анализатора, а также вертикальной угловой расходимостью (в нашем случае порядка 0.5°), которая определяется размером щелей в оптической схеме и размерами обоих кристаллов. В связи с этим наблюдаемая ширина линии Косселя должна быть существенно больше, чем ширина “идеального” профиля аномальной линии Косселя, показанной на рис.2b. Более того, сканирование интенсивности флуоресцентного излучения вдоль линии Косселя в нашем эксперименте проводилось путем вращения кристалла-образца вокруг нормали к его поверхности на угол $\Delta\phi = \phi - \phi_{VL}$ (рис.3), что приводит к постепенному “выходу” вектора обратной решетки из плоскости отражения, и следовательно, к появлению небольшой дисперсии регистрируемого излучения в пределах характеристических линий $Ge K_{\alpha 1}$ и $K_{\alpha 2}$. (Для достижения лучшего разрешения необходимо осуществлять вращение образца вокруг направления вектора \mathbf{H} .)

На рис.4 показана измеренная интенсивность выхода флуоресцентного излучения $Ge K_{\alpha}$, нормированная на фоновую интенсивность 100 имп./с, в зависимости от углов $\Delta\theta = \theta - \theta_B$ и $\Delta\phi$ в окрестности точки вырождения, соответствующей предельно асимметричной дифракции рентгеновских лучей на кристаллографических плоскостях (022) кристалла $Ge(001)$ ($\theta_B \approx 18.26^\circ$, $\psi = 45^\circ$, $\varphi_{VL} \approx 26.3^\circ$, $\phi_{VL} \approx 63.8^\circ$ и $\alpha_{VL} \approx 48.10^\circ$). Отчетливо видно, что распределение интенсивности флуоресцентного излучения в этом угловом диапазоне представляет собой узкий и слабо расщепленный хребет с угловой расходимостью в плоскости дифракции (в поперечном сечении линии Косселя) порядка 10 угл.с, а вдоль линии Косселя – порядка 10 угл.мин в соответствии с ранними теоретическими предсказаниями [16]. Единственным качественным отличием является наличие двух слабо разрешенных пиков в эксперименте по сравнению с одним – в теории. Этот факт, очевидно, связан с наличием слабой дисперсии регистрируемого излучения для больших абсолютных значений $\Delta\phi$ в нашей экспериментальной схеме, что приводит к одновременной регистрации флуоресцентного излучения

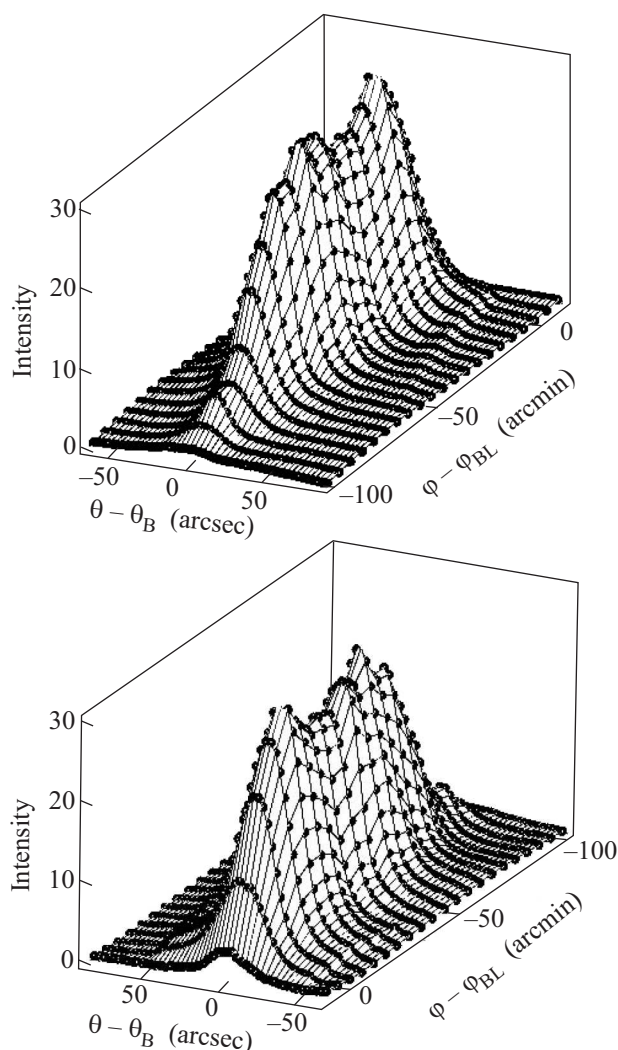


Рис.4. Угловое распределение нормированной интенсивности (точки) выхода флуоресцентного излучения $Ge K_{\alpha}$ в окрестности точки вырождения, соответствующей предельно асимметричной схеме дифракции на плоскостях (022) кристалла $Ge(001)$. Вид с двух противоположных точек зрения

в окрестности дополнительной, близко лежащей точки вырождения, соответствующей характеристическому излучению $Ge K_{\alpha 2}$ ($\theta_B \approx 18.32^\circ$, $\varphi_{VL} \approx 26.4^\circ$, $\phi_{VL} \approx 63.6^\circ$ и $\alpha_{VL} \approx 48.15^\circ$).

Поскольку кривая отражения от кристалла-анализатора существенно шире ($FWHM(\theta) \approx 18$ угл.с), чем угловое распределение интенсивности флуоресцентного излучения образца в поперечном сечении “идеальной” линии Косселя (рис.2b), и угловая расходимость регистрируемого детектором излучения не достаточно жестко ограничена в нашей схеме, экспериментально наблюдаемое угловое распределение флуоресцентного излучения (рис.4)

оказывается сильно размытым ($\text{FWHM}(\theta) \approx 30$ угл.с и $\text{FWHM}(\theta) \approx 75$ угл.мин) по сравнению с “идеальным” профилем распределения ($\text{FWHM}(\theta) \approx 1$ угл.с и $\text{FWHM}(\theta) \approx 14$ угл.мин [16]). Тем не менее, аномальный эффект Косселя остается достаточно сильным, и интенсивность флуоресцентного сигнала в максимумах распределения превосходит фоновую интенсивность более чем в 30 раз. С увеличением абсолютного значения угла отклонения $\Delta\phi$ от точки вырождения профиль углового распределения экспериментальной интенсивности флуоресцентного излучения плавно переходит к стандартной форме “нормальной” линии Косселя, соответствующей симметричной схеме дифракции, с относительно небольшим изменением интенсивности излучения, когда максимум углового распределения превосходит фоновую интенсивность всего на несколько десятых вследствие, прежде всего, дисперсионных эффектов.

Таким образом, можно констатировать, что аномальный эффект Косселя, теоретически предсказанный около десяти лет назад, надежно регистрируется в простейшей экспериментальной схеме с использованием возбуждающего рентгеновского излучения стандартной рентгеновской трубки и кристалла-анализатора. Угловое разрешение для наблюдения аномальных линий Косселя можно в значительной степени повысить путем более жесткой коллимации регистрируемого флуоресцентного излучения при использовании более узких оптических щелей и более сложной системы кристаллов-анализаторов, обычно применяемых на синхротронных источниках излучения. В этом случае с учетом: 1) чрезвычайно высокой чувствительности формы аномальных линий Косселя к наличию тонких (нанометрового размера) кристаллических и/или даже аморфных слоев на кристаллической подложке [17, 22], 2) возможности проводить измерения сразу нескольких линий Косселя, соответствующих разным кристаллографическим плоскостям [6–13], и 3) возможности регистрировать селективно характеристическое флуоресцентное излучение разных атомов в многослойных гетероструктурах аномальный эффект Косселя сам по себе может стать основой нового дополнительного метода для структурных исследований.

Что касается рентгеновской голографии, наличие аномальных линий Косселя в приведенных картах углового распределения интенсивности флуоресцентного излучения с резкими линиями (и пятнами) и в результирующих голограммах после высокочастотной фильтрации ставит под сомнение пра-

вомерность самой базисной процедуры фильтрации, то есть свертку экспериментальной интенсивности флуоресцентного излучения с двумерной гауссовой функцией [14]. Более того, эта процедура была предложена на основе слишком упрощенного анализа пространственно-частотного распределения интенсивности рассеяния в терминах высокочастотных компонент от атомов-рассеивателей, расположенных далеко от атома-источника, и низкочастотных компонент от атомов, близких к атому-источнику, в кинематическом приближении [14]. В таком приближении не учитываются динамические эффекты, которые как раз и определяют характерную форму как “нормальных”, так и аномальных линий Косселя (рис.1b и 2b), так что корректность применения процедуры высокочастотной фильтрации для эффективного “удаления” даже нормальных линий Косселя из приведенных карт углового распределения интенсивности излучения с резкими линиями остается под вопросом. Это обстоятельство неизбежно приводит к необходимости существенной коррекции этой процедуры фильтрации, а значит, к необходимости пересмотра всех изображений атомной структуры, реконструированных в рамках существующего метода рентгеновской голографии и опубликованных к настоящему времени. Однако уже сейчас существуют по крайней мере два альтернативных подхода для извлечения голографической информации из экспериментальных карт углового распределения интенсивности флуоресцентного излучения: 1) прямое моделирование углового распределения интенсивности флуоресцентного излучения, которое используется в итерационной процедуре для решения обратной задачи [13], и 2) измерения и/или анализ экспериментальных данных только в тех угловых диапазонах, для которых справедливо кинематическое приближение, то есть где вообще отсутствуют линии Косселя [23].

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проекты # 08-02-00388 и # 09-02-12164).

1. W. Kossel, V. Loeck, and H. Voges, *Z. Phys.* **94**, 139 (1935).
2. M. v. Laue, *Röntgenstrahl-interferenzen*, Academische Verlagsgesellschaft, Frankfurt, Germany, 1960.
3. T. Gog, D. Bahr, and G. Materlik, *Phys. Rev. B* **51**, 6761 (1995).
4. J. M. Cowley, *Acta Crystallogr.* **17**, 33 (1964).
5. J. T. Hutton, G. T. Trammell, and J. P. Hannon, *Phys. Rev. B* **31**, 743 (1985).
6. G. Faigel and M. Tegze, *Nature (London)* **380**, 49 (1996).

7. T. Gog, P. M. Len, G. Materlik et al., *Phys. Rev. Lett.* **76**, 3132 (1996).
8. G. Faigel and M. Tegze, *Rep. Prog. Phys.* **62**, 355 (1999).
9. M. Tegze, G. Faigel, S. Marchesini et al., *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4847 (1999).
10. S. Marchesini, F. Schmithüsen, M. Tegze et al., *Phys. Rev. Lett.* **85**, 4723 (2000).
11. Y. Takahashi, E. Matsubara, Y. Kawazoe, and K. Takanashi, *Appl. Phys. Lett. A* **87**, 234104 (2005).
12. G. Faigel, G. Bortel, C.S. Fadley, et al., *X-ray Spectrom.* **36**, 3 (2007).
13. T. Matsushita, F. Z. Guo, M. Suzuki et al., *Phys. Rev. B* **78**, 144111 (2008).
14. G. Faigel and M. Tegze, *Europhys. Lett.* **16**, 41 (1991).
15. А. М. Афанасьев, М. В. Ковальчук, М. А. Чуев, Письма в *ЖЭТФ* **73**, 309 (2001).
16. А. М. Афанасьев, М. В. Ковальчук, М. А. Чуев, П. Г. Медведев, *ЖЭТФ* **122**, 549 (2002).
17. А. М. Afanas'ev and A. V. Esayan, *Phys. Stat. Sol. A* **126**, 303 (1991).
18. А. М. Афанасьев, Р. М. Имамов, Э. Х. Мухамеджанов и др., *ФТТ* **32**, 106 (1990).
19. А. М. Афанасьев, Р. М. Имамов, Э. Х. Мухамеджанов, *Кристаллография* **40**, 446 (1995).
20. N. Hertel, M. V. Kovalchuk, A. M. Afanas'ev, and R. M. Imamov, *Phys. Lett. A* **75**, 501 (1980).
21. М. А. Чуев, А. М. Афанасьев, М. В. Ковальчук, П. Г. Медведев, *Поверхность* **7**, 76 (2002).
22. П. Г. Медведев, А. М. Афанасьев, М. А. Чуев, *Микроэлектроника* **35**, 420 (2006).
23. M. Tolkiehn, D. V. Novikov, and S. S. Fanchenko, *Phys. Rev. B* **71**, 165404 (2005).