

НАЦИОНАЛЬНЫЙ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ЦЕНТР
«КУРЧАТОВСКИЙ ИНСТИТУТ»

На правах рукописи

Благов Александр Евгеньевич

**РАЗВИТИЕ МЕТОДОВ РЕНТГЕНОВСКОЙ
ДИФРАКЦИОННОЙ ДИАГНОСТИКИ
КОНДЕНСИРОВАННЫХ СРЕД В УСЛОВИЯХ
ДИНАМИЧЕСКИХ ВОЗДЕЙСТВИЙ**

Специальность 01.04.07 – «Физика конденсированного состояния»

ДИССЕРТАЦИЯ
на соискание ученой степени
доктора физико-математических наук

Научный консультант:
доктор физико-математических наук,
профессор, член-корреспондент РАН
Ковальчук Михаил Валентинович

Москва 2016

Оглавление

Основные положения	9
Введение	20
Глава 1. Экспериментальные исследования с применением рентгеновской дифрактометрии при воздействиях на криystalлическую решетку ультразвуком и электрическим полем. Многоволновая дифракция и ее применение для исследования дефектной структуры кристаллов.....	24
 1.1. Исследования рентгеноакустических взаимодействий.....	24
Теоретические исследования рентгеноакустических взаимодействий.....	29
Эффект усиления и переброски. Управление интенсивностью.	31
Рентгеноакустические исследования в области высоких частот ультразвука.....	36
Визуализация акустических деформаций. Стробоскопическая топография.....	43
Рентгеноакустический резонанс	45
1.2. Исследование дефектной структуры и пьезоэлектрических характеристик кристаллов в условиях внешних электрических полей с применением рентгенодифракционных методов.....	50
1.3. Методы исследования дефектной структуры кристаллов в условиях больших ультразвуковых амплитуд.....	56
1.4. Особенности рассеяния рентгеновских лучей в условиях многоволновой дифракции	62
Теоретические исследования динамической многоволновой дифракции	62
Экспериментальное наблюдение и применение многоволновой дифракции	64
1.5. Выводы к главе 1.....	73

Глава 2. Развитие аппаратурно-методических подходов для исследования конденсированных сред в условиях динамических воздействий методами рентгеновской дифрактометрии	76
 2.1. Используемые в работе рентгеновские дифрактометры.....	76
Рентгеновский дифрактометр ТРС	77
Рентгеновский дифрактометр SmartLab	79
 2.2. Особенности 2x-кристальных рентгенооптических схем.	
<i>Следствия динамической теории. Расчет кривых дифракционного отражения.....</i>	<i>83</i>
<i>Расчеты 2-х кристальной кривой дифракционного отражения с учетом аппаратной функции</i>	<i>83</i>
<i>Расчет кривых дифракционного отражения при вибрационных механических нагрузках (однородная деформация)</i>	<i>90</i>
<i>Геометрическая оптика Лауэ-дифракции. Теоретический анализ и моделирования экспериментов в случае неоднородной Лауэ дифракции на примере кристалла Si.....</i>	<i>95</i>
 2.3. Особенности рентгеноакустических взаимодействий в разных диапазонах частот акустических волн. Выбор диапазона частот ультразвука с точки зрения классических подходов дифракции - от коротких волн, формирующих сверхрешетки, до длинноволнового ультразвука - динамического аналога статической рентгеновской оптики	108
 2.4. Модернизация спектрометра ТРС для изучения внешних воздействий (ультразвуковые волны в кристаллах, электрическое поле): кристаллодержатели для подачи электрического сигнала на образцы, система возбуждения ультразвука	112
 2.5. Особенности распространения ультразвука в анизотропных средах	119
<i>Распространение ультразвука в кристаллах</i>	<i>121</i>

<i>Расчеты характеристик распространения и выбор материалов для электроакустических преобразователей и рентгенооптических элементов составных рентгеноакустических резонаторов</i>	128
2.6. Резонаторы: изгибный резонатор, продольный резонатор, составной и монолитный резонаторы	133
<i>Возбуждение длинноволновых колебаний в кристаллах.....</i>	133
<i>Основы поиска оптимальных параметров рентгеноакустического резонатора.....</i>	145
<i>Выбор рабочих параметров пьезоэлектрического кристалла-преобразователя и составного рентгеноакустического кристалла....</i>	147
2.7. Электромеханические и рентгеновские исследования резонаторов. Распределение деформации, сопоставление расчетов и дифракционных экспериментов, дифракция, топография	150
<i>Электроакустический метод измерения</i>	150
<i>Измерения АЧХ пьезоэлектрических преобразователей, колеблющихся без нагрузки и в системе составного резонатора: пьезоэлектрический резонатор - рентгенооптический кристалл.....</i>	153
<i>Рентгенодифракционный метод исследования резонаторов.....</i>	158
<i>Численное моделирование рентгеноакустических резонаторов</i>	167
2.8. Выводы к главе 1.....	170
Глава 3. Немеханическое отклонение рентгеновского пучка.	
Разработка рентгеноакустического дифрактометра для изучения динамики дефектной структуры кристаллических материалов.	
Исследование поведения различных кристаллов при высоких деформационных нагрузках.....	173
3.1. Дифракционные эффекты в условиях воздействия длинноволнового ультразвука. Интегральное уширение КДО.	
Мгновенное смещение КДО в условиях однородной ультразвуковой деформации. Изменение формы КДО в условиях неоднородной деформации.....	173

3.2. Угловое – пространственное сканирование рентгеновского пучка. Схема анализатор – монохроматор (Лауэ и Брэгг). Измерение КДО – описание метода. Калибровка рентгенооптических кристаллов монохроматоров.	
Экспериментальные результаты по измерению КДО. Сравнение механической и ультразвуковой угловой перестройки.....	185
Рентгеноакустический анализатор	186
Рентгеноакустический монохроматор.....	188
Измерения кривых дифракционного отражения	190
Методика пересчета фазовых координат в угловые секунды	203
Проведение сравнительных испытаний и полученные результаты.....	205
Измерение кривых дифракционного отражения с разрешением по времени	213
3.3. Изучения динамики дефектной структуры в кристаллах Si, TeO₂ и LiF с помощью рентгеноакустического метода	216
Воздействие ультразвука на кристаллическую и дефектную структуру.....	216
Исследование кристаллов кремния в условиях ультразвукового воздействия	220
Исследование кристалла кварца в условиях ультразвукового воздействия	222
Исследование кристалла фторида лития в условиях ультразвукового воздействия.....	223
Исследование кристалла парамеллурита в условиях ультразвукового воздействия.....	225
3.4. Выводы к главе 3.....	228
Глава 4. Ультразвуковая перестройка длины волны рентгеновского пучка – перестраиваемая монохроматизация рентгеновского пучка. Динамическое управление угловой расходимостью рентгеновского	

пучка, фокусировка, коллимация и дефокусировка, перестройка	
фокусного расстояния	232
4.1. Управление длиной волны на основе рентгеноакустических	
взаимодействий	232
<i>Механическая запись спектра рентгеновской трубы.....</i>	233
<i>Схема управления длиной волны с применением двухкристальной</i>	
<i>схемы</i>	236
<i>Схема управления длиной волны на основе однокристального</i>	
<i>коллиматора.....</i>	242
<i>Оценки по перестройки схемы. Зависимости диапазона</i>	
<i>перестройки от длины волны</i>	248
4.2. Динамическая фокусировка рентгеновского излучения.....	251
<i>Амплитудное управление градиентом деформации</i>	
<i>кристаллической решетки.....</i>	256
<i>Частотное управление градиентом деформации кристаллической</i>	
<i>решетки.</i>	258
4.3. Выводы к главе 4.....	262
Глава 5. Методы изучения вещества с применением	
высокочувствительных и фазочувствительных методов на основе	
двух-трехкристальной, двухлучевой и многолучевой дифракции, в том	
числе в условиях возбуждения ультразвука.....	264
5.1. Особенности многоволновой дифракции и ее использование	
для изучения дефектной структуры. Сравнение	
чувствительности многоволновой и двухволновой дифракции	264
<i>Поиск пар для многоволновой дифракции</i>	266
<i>Особенности многоволновой дифракции в кристалле TeO₂</i>	271
<i>Теория и компьютерное моделирование</i>	281
<i>Сравнение экспериментальных результатов с теорией.....</i>	287
<i>Исследование дефектной структуры кристалла парамеллурита</i>	289

5.2. Квазимноговолновая дифракция. Особенности реализации и настройки схемы. Относительные и абсолютные измерения распределения параметра кристаллической решетки.....	295
Результаты расчета многоволновых отражений	297
Экспериментальная реализация многоволновой дифракции.....	298
Проведение измерений вариации и абсолютных значений параметра кристаллической решетки в тригональных кристаллах семейства лангасита в зависимости от особенностей условий роста кристаллов	305
Экспериментальные результаты	306
Измерения температурных зависимостей параметра кристаллической решетки лангатата.....	314
Проведение измерений вариации параметра кристаллической решетки в тетрагональных кристаллах парателлурита	315
Определение предельного пространственного разрешения методики измерения параметра кристаллической решетки на основе квазимноговолновой рентгеновской дифракции	318
5.3. Трехкристальная рентгеновская дифрактометрия для измерения абсолютного значения и относительного изменения параметра кристаллической решетки	322
Метод с использованием кристалла-анализатора	322
Измерение относительной вариации параметра решетки в кристалле парателлурита с использованием анализатора.....	324
Дополнения на основе двухкристальной дифрактометрии	327
5.4. Воздействие ультразвука на многоволновую дифракцию	330
Методики эксперимента	330
Экспериментальные результаты	332
5.5. Выводы к 5 главе.....	338
Глава 6. Воздействие электрического поля на кристаллическую и дефектную структуру	341

6.1. Исследуемые кристаллы.....	341
<i>Структура и свойства кристаллов семейства лантан-галлиевых силикатов.....</i>	<i>341</i>
<i>Исследуемый образец ЛГТ.....</i>	<i>344</i>
<i>Структура и свойства кристаллов парателлурита</i>	<i>345</i>
<i>Исследуемый образец TeO_2</i>	<i>348</i>
6.2. Квазимноговолновая и трехкристальная дифракция в условиях Воздействия на кристаллическую структуру ЛГТ электрического поля	349
<i>Подготовка экспериментальной схемы для проведения измерений с применением квазимноговолновой дифракции.....</i>	<i>350</i>
<i>Проведение измерений с применением трехкристальной дифрактометрии.....</i>	<i>355</i>
<i>Результаты измерения пьезомодуля кристалла лангатата квазимноговолновым и трехкристальным методами</i>	<i>356</i>
6.3. Исследование влияния внешнего электрического поля на кристаллы TeO_2	362
<i>Поведение кристалла TeO_2 при воздействии электрическим полем....</i>	<i>362</i>
<i>Определение типа разориентации в кристалле парателлурита, возникающей под действием электрического поля</i>	<i>370</i>
6.4. Заключение к главе 6.....	380
Основные результаты и выводы	383
Список литературы	386

Основные положения

Актуальность

Уникальные свойства рентгеновского излучения – его высокая разрешающая и большая проникающая способности, возможность неразрушающего контроля определяют широкий круг исследовательских и диагностических задач, решаемых с применением рентгеновских лучей в различных областях науки и техники. Рентгеновские методы анализа повсеместно вошли в практику современной жизни и стали инструментальным фундаментом важнейших научных исследований в материаловедении, нанотехнологии, кристаллографии, электронике, биохимии, медицине, биологии, астрономии и т.д.

Имеется богатый арсенал эффективных рентгеновских средств и методов исследований твердых тел, прежде всего, рентгеноструктурный и рентгенофазовый анализ, топография и томография, рентгеновская дифрактометрия, спектроскопия – методов, обеспечивающих определение структуры и состава вещества, выявление дефектов в изделиях, визуализацию скрытых предметов и т.д.

В тоже время, потенциал рентгеновского излучения используется далеко не полностью в значительной степени из-за ограниченных возможностей оперативного управления такими параметрами рентгеновского пучка как длина волны, угловое и пространственное положение, фокусировка, сходимость, вызванных «медлительностью» механических систем, применяемых для перестройки рентгенооптической схемы.

В настоящее время управление рентгеновским экспериментом сводится к определенной «поступательной» перестройке рентгенооптической схемы, в результате которой изменяется один из параметров рентгеновского пучка, какой, как: положение или угол падения пучка на образец, длина волны, интенсивность, фокусировка. Такие изменения осуществляются с помощью устройств и механизмов, позволяющих с высокой точностью (<1'') поворачивать и устанавливать кристалл относительно падающего на него

рентгеновского пучка. Механическое управление ограничивает возможности использования рентгеновского излучения и связано это, в первую очередь, с низкой скоростью перестройки рентгенооптической схемы. Обеспечение высокого разрешения используемых оптических схем требует точности установки рентгенооптических элементов, что приводит к использованию сложнейших механических изделий. В связи с этим, разработка методов немеханического управления представляется крайне актуальной для развития и совершенствования рентгенодифракционной диагностики объектов находящихся в условиях внешних воздействий.

Немеханическое быстрое управление рентгеновским пучком, может быть реализовано на основе изменения параметра кристаллической решетки, приводящее, как и в случае поворота кристалла к изменениям условий дифракции, которые определяются брэгговским соотношением между длиной волны углом дифракции и параметром кристаллической решетки. Основываясь на законе Брэгга и меняя параметр кристаллической решетки, можно быстро перестраивать длину волны, управлять угловым и пространственным положением, а также фокусом рентгеновского пучка. К методам наиболее эффективного воздействия на кристаллическую решетку относятся методы, основанные на применении ультразвуковых или электромагнитных волн (температурное воздействие не рассматривается ввиду его инертности). При этом ультразвук воздействует напрямую на кристаллическую решетку, электромагнитное излучение – опосредованно с использованием физических свойств среды распространения рентгеновской волны, таких, как пьезоэффект, или электрострикция.

Возможность относительно простого возбуждения в кристаллах ультразвуковых колебаний и изменения в широких переделах их параметров, создает условия контролируемого управления пространственно-временной структурой дифрагированного рентгеновского пучка на основе модуляции параметра кристаллической решетки. Ультразвуковое управление позволяет с высокой скоростью и прецизионностью, на несколько порядков

превышающая скорость механических систем перестраивать рентгенооптическую схему.

Электрическое поле – еще один способ контролируемого воздействия на кристаллическую структуру, который позволяет создавать условия объемной статической и динамической деформации кристаллической решетки с высокой степенью однородности по кристаллу. Такую деформацию кристаллической решетки, можно эффективно использовать для управления рентгеновской дифракцией в кристаллах. Возбуждение ультразвука в кристаллах также напрямую связано с приложением электрического поля. Таким образом, исследование воздействия динамического и статического электрического поля на элементарную ячейку, на микро и макроструктуру представляет, с одной стороны, крайне важную задачу для развития методов управления рентгеновскими пучками, а с другой стороны, – самостоятельную область с массой фундаментальных и прикладных структурных задач.

Внешние воздействия (такие как ультразвук или электрическое поле) могут приводить и к необратимым изменениям кристаллической структуры, к появлению или размножению дефектов, образованию доменов и т.д., что может существенно изменить свойства самого материала используемого в качестве рабочего элемента того или иного технического устройства. В связи с этим крайне востребованными становятся методы прецизионного рентгеновского контроля изменений в дефектной структуре кристаллических материалов как самих материалов, находящихся в нормальных условиях, так и в результате различных внешних воздействий. Применение фазочувствительных методов, таких как многоволновая дифракция или методов, чувствительных к изменениям параметра кристаллической решетки, таких как квазимноговолновая рентгеновская дифракция дает существенный выигрыш в информативности, чувствительности и простоте экспериментальной схемы.

Таким образом, развитие методов рентгеновской дифракционной диагностики конденсированных сред в условиях динамических воздействий

позволит реализовать немеханическое управление пространственными и спектральными параметрами рентгеновского излучения, т.е. вывести рентгеновскую диагностику на совершенной новый уровень исследований. Вместе с тем, этот подход даст возможность изучения поведения кристаллической структуры в условия статических и динамических нагрузок разной природы и возможность получения информации об упругих и неупругих свойствах различных технически важных кристаллических материалов при внешних воздействиях, вызывающих структурные изменения обратимого и необратимого характера.

Цели работы

Всестороннее изучение области рентгеноакустических взаимодействий с длинноволновым ультразвуком. Развитие рентгеновских методов исследования конденсированных сред с разрешением по времени, достаточным для наблюдения за структурными изменениями, вызванными внешними воздействиями, изучение динамики структуры непосредственно в процессе её перестройки, например, в условиях акустических нагрузок. Развитие комплексных исследований дефектной структуры кристаллических объектов, в том числе в условиях внешних воздействий, с применением фазочувствительных рентгеновских методов и методов рентгеновской дифрактометрии высокого разрешения. Изучение поведения дефектной структуры кристаллических материалов в условиях воздействия электрическим полем.

Для достижения поставленной цели необходимо решить следующие задачи:

1. Изучить особенности взаимодействия рентгеновских и упругих волн, распространяющихся в кристалле в различных диапазонах частот ультразвука. Исследовать специфику взаимодействия рентгеновских и упругих волн в геометрии Лауэ и Брэгга в условиях резонансного возбуждения длинноволнового ультразвука, в частности, в условиях однородной и градиентной деформации кристаллической решетки;

2. Изучить условия возбуждения длинноволнового ультразвука в кристаллах, решить задачу формирования однородных и градиентных упругих деформаций в области дифракции рентгеновского пучка в рентгеноакустических резонаторах. Разработать рентгеноакустические резонаторы, позволяющие модулировать параметры кристаллической решетки (для управления рентгеновской дифракцией) в широком диапазоне вплоть до перехода в область пластических деформаций и разрушения кристалла.

3. Разработать рентгенооптические схемы и элементы рентгеновской акустооптики, позволяющие управлять основными параметрами рентгеновского пучка в эксперименте:

- направлением распространения (углом) и длиной волны рентгеновского пучка в условия сохранения геометрических размеров, угловой и спектральной расходимости;
- угловой расходимостью рентгеновского пучка, позволяющей выполнять его фокусировку, коллимацию и дефокусировку.

4. Разработать аппаратно-методический комплекс по исследованию рентгеноакустических взаимодействий, моделированию экспериментальных кривых, ультразвуковых деформационных полей и смещений в кристаллах и изучению дефектной структуры, в том числе, в условиях внешних воздействий.

5. Создать лабораторный образец рентгеновского дифрактометра, основанного на рентгеновской акустооптике, обеспечивающего быструю перестройку рентгенооптической схемы и измерение кривой дифракционного отражения (КДО) с разрешением по времени.

6. Исследовать поведение (деформационные характеристики, динамику дефектной структуры, разрушение) различных кристаллических материалов, в условиях акустических вибрационных нагрузок при различных амплитудах колебаний и временах воздействия. На основе полученных результатов

проводить поиск подходящих кристаллических материалов для создания элементов рентгеновской акустооптики.

7. Развить комплексный подход разномасштабной структурной диагностики кристаллов с применением двух-трехкристальной, двухволновой и многоволновой дифракции, в том числе в условиях возбуждения ультразвука и воздействия электрического поля

8. Изучить влияние электрического поля на двухволновую, трехволновую и квазимноговолновую рентгеновскую дифракцию в кристаллах, обладающих пьезоэлектрическим эффектом.

Научная новизна

1. Всесторонне изучена область рентгеноакустических взаимодействий с длинноволновым ультразвуком: изучены акустические аспекты, связанные с созданием упругих деформации в кристаллах, а также особенности рентгеновской дифракции в условиях медленно меняющейся по пространственной координате, быстро и периодически во времени деформации кристаллической решетки, в том числе:

– Экспериментально обнаружено и теоретически интерпретировано существование сильной пространственной модуляции упругих деформаций, накладывающейся на классическое полуволновое распределение. На основании проведенного моделирования и экспериментальных данных в резонаторах продольных колебаний показана возможность создания поперечных деформаций по эффективности сопоставимых с основной продольной модой.

– Применена техника фазового управления рентгеновским пучком в условиях рентгеноакустических взаимодействий. В отличие от наиболее распространенного подхода, когда ультразвуковое воздействие на рентгеновскую дифракцию полагается стационарным при постоянной амплитуде ультразвука, в настоящей работе показано, что интегральная

картина рентгеновской дифракции является суперпозицией составляющих, соответствующих различным фазам колебания кристалла.

– Реализована быстрая ультразвуковая перестройка угла рентгеновского пучка. На этой основе разработаны методы исследования кристаллических материалов с микросекундным временным разрешением с применением рентгеновской дифрактометрии.

– Реализована быстрая ультразвуковая перестройка длины волны рентгеновского излучения. На этой основе разработаны методы проведения исследований с микросекундным временным разрешением с применением рентгеновской спектроскопии и резонансной дифрактометрии.

– Реализовано управление сходимостью рентгеновского пучка с помощью длинноволновых ультразвуковых колебаний. Разработаны методы коллимации и фокусировки рентгеновского пучка с перестройкой фокусного расстояния.

2. Проведены рентгенодифракционные исследования дефектной структуры кристаллов Si, Ge, SiO₂, LGT, TeO₂ и LiF в условиях вибрационных нагрузок с применением быстрой акустической развертки рентгеновского пучка.

3. Реализована ультразвуковая подстройка схемы квазимноговолновой дифракции и сканирование условий многоволновой дифракции в схеме высокого разрешения для лабораторного источника, основанные на перестройке взаимного положения рентгеновских рефлексов.

4. Экспериментально зарегистрировано влияние дефектной структуры на дисперсионную зависимость при трехволновом взаимодействии. Экспериментально показано, что многоволновая дифракция сохраняет чувствительность к дефектам кристаллической структуры в условиях, когда обнаружение дефектов на основе двухволновой дифракции затруднено.

5. Обнаружено образование доменов неферроэлектрического типа при воздействии на пьезоэлектрический кристалл парателлурита (TeO_2) тетрагональной симметрии электрическим полем.

Практическая значимость

1. Разработан комплексный подход по моделированию и созданию рентгеноакустической оптики, составляющих её элементов и кристаллов. Разработаны методы расчета и визуализации объемного поля смещений, возникающих в условиях возбуждения ультразвуковых колебаний.

2. Разработанные схемы проведения экспериментов по рентгеновской спектроскопии с временным разрешением могут быть использованы для методов EXAFS, XANES, резонансной дифракции, а также для реализации модуляционной рентгеновской спектроскопии и создания нового поколения рентгеноспектральных приборов, использующих ультразвуковую подстройку и модуляцию длины волны рентгеновского излучения.

3. Разработанные схемы проведения экспериментов по рентгеновской дифрактометрии с временным разрешением могут быть использованы для реализации принципиально новых экспериментальных подходов по измерению КДО и анализу угловой расходимости отраженного кристаллом рентгеновского излучения. Получены патенты на рентгеноакустические методы управления угловым положением и анализа углового распределения рентгеновского пучка.

4. Разработанный образец рентгеноакустического дифрактометра для измерения КДО с разрешением по времени является представителем нового класса дифракционных приборов и может быть использован для исследования кинетики быстропротекающих процессов, связанных со структурными изменениями в кристаллах. Разработанная концепция модернизации рентгеновских приборов позволит усовершенствовать большое количество дифрактометров низкого разрешения на основе комплектации их компактными рентгеноакустическими модулями.

5. Методы многоволновой дифракции в комбинации с методами высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии, позволяют повысить информативность и чувствительность при исследовании дефектной структуры кристаллических образцов. Результаты комплементарного применения многоволновой и трехкристальной диагностики создают основу новых методов изучения дефектов кристаллической решетки, обладающих большей чувствительностью и информативностью по сравнению с используемыми в настоящее время.

6. Результаты экспериментов и методы изучения поведения дефектной структуры кристаллов непосредственно в условиях динамической ультразвуковой нагрузки могут стать основой для контроля качества разнообразных устройств или составляющих их элементов, эксплуатируемых в условиях вибронагрузок и других деформационных воздействий.

Положения, выносимые на защиту

1. Комплексный подход по созданию рентгеноакустической оптики, включающий: расчеты анизотропии упругих свойств и параметров кристаллических элементов; алгоритмы визуализации объемного поля смещений в условиях возбуждения ультразвуковых колебаний, методику изготовления и тестирования рентгеноакустооптических резонаторов.

2. Фазовое управление рентгеновским пучком, основанное на зависимости дифракции от фазы колебаний рентгеноакустического кристалла.

3. Рентгеноакустическая дифрактометрия с разрешением по времени для измерения КДО на основе ультразвукового сканирования условий дифракции в трех различных режимах: ультразвукового образца, анализатора и монохроматора. Рентгеноакустический метод исследования дефектной структуры статически и динамически нагруженных кристаллов.

4. Рентгеноакустическая спектроскопия с разрешением по времени, перспективная для рентгеноспектрального анализа, резонансной дифрактометрии и модуляционной рентгеновской спектроскопии.

5. Методы по изучению дефектной структуры с применением многоволновой дифракции, обладающие большей чувствительностью к дефектам по сравнению со стандартной двухволновой дифрактометрией. Перестройка условий многоволновой дифракции с помощью ультразвука.

6. Обнаружение и исследование эффекта образования доменов неферроэлектрического типа при воздействии на пьезоэлектрический кристалл TeO_2 тетрагональной симметрии электрическим полем.

Апробация

Основные результаты работы изложены в 85 (в том числе 10 приглашенных) докладах на всероссийских и международных конференциях.

Публикации

Основные результаты исследований изложены в 105 публикациях (в том числе в 18-х статьях в рецензируемых журналах, входящих в перечень ВАК и индексируемых WoS).

Личный вклад автора

Все проведенные экспериментальные работы проводились лично автором или под руководством автора совместно с П.А. Просековым, А.В. Таргонским, Н.В. Марченковым. Постановка работ и результаты экспериментов обсуждались с М.В. Ковальчуком и Ю.В. Писаревским, в соавторстве с В.Г. Коном проведены расчеты многоволновых взаимодействий в парателлуриде и рентгеноакустических взаимодействий в германии. В соавторстве с А.Н. Даринским проведены расчеты пространственного распределения упругих деформаций в колеблющихся элементах.

Структура и объем диссертации

Диссертация состоит из введения, шести глав, заключения и списка литературы, изложенных на 417 страницах, включает 232 рисунков, 11 таблиц и список литературы из 389 наименований. Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институте кристаллографии им. А.В. Шубникова Российской академии наук в соответствии с планом научных работ лаборатории Рентгеновских методов анализа и синхротронного излучения.

Благодарности

Автор благодарен своим учителям член-корреспонденту РАН профессору М.В. Ковальчуку и д.ф.-м.н. Ю.В. Писаревскому. Д.ф.-м.н. В.Г. Кону и д.ф.-м.н. А.Н. Даринскому за ценные консультации и помошь в расчетах, к.ф.-м.н. П.А. Просекову, к.ф.-м.н. А.В. Таргонскому, к.ф.-м.н. Н.А. Марченкову, совместно с которыми проводились значительная часть экспериментов. Автор признателен н.с. О.Ю. Сильвестровой и н.с. Н.А. Моисеевой за полезные советы и помошь в расчетах анизотропии упругих свойств кристаллических материалов, а также д.ф.-м.н. Л.А. Фейгину, к.ф.-м.н. В.В. Лидеру, д.ф.-м.н. Ф.Н. Чуховскому и д.ф.-м.н. В.М. Каневскому за полезные советы при обсуждении экспериментальных результатов и их интерпретации.

Введение

Дифракция на кристаллической решетке, предсказанная и открытая Максом Теодором Феликс фон Лауэ совместно с молодыми сотрудниками Мюнхенского университета доктором В. Фридрихом и аспирантом В. Рентгена П. Книпингом в 1912г., позволила окончательно убедиться, не только в электромагнитной природе рентгеновского излучения, но и стала экспериментальным доказательством упорядоченной структуры строения кристаллов. Эксперимент, предложенный М. Лауз, был назван А. Эйнштейном «одним из наиболее славных открытий в физике», а сам Макс Фон Лауз был удостоен в 1914 году Нобелевской премии с формулировкой «За открытие дифракции рентгеновских лучей на кристаллах».

Впоследствии рентгеновская дифракция стала экспериментальной основой кристаллографии и современных наук о материалах. В настоящее время методы, основанные на дифракции рентгеновских лучей, являются во многом уникальным, широко используемым и высоко востребованным исследовательским инструментом, и вместе с другими рентгеновскими методами представляет собой важнейшие методы в материаловедении и нанодиагностике.

Распространение в кристаллах электромагнитной волны рентгеновского диапазона (диапазона в котором длина волны соизмерима с межатомным расстоянием в твердом теле) ввиду наличия упорядоченности атомной структуры – кристаллической решетки, приводит к появлению дифракционных отражений, возникающих в строго определенных направлениях в результате конструктивных интерференционных взаимодействий (сложений совпадающих по фазе волн, рассеянных соседними атомами кристаллической решетки).

Дифракционная картина в целом зависит от структуры кристалла, при этом интенсивность и форма отдельных пиков может существенно меняться по причине наличия многообразных внутренних дефектов структуры (точечных дефектов, дислокаций, двойников, включений, влияния ансамбля

тепловых фононов). Именно интерференционные взаимодействия при такой малой длине волн элекромагнитного излучения приводят к тому, что дифракция оказывается весьма чувствительной к незначительным изменениям в кристаллической решетке или же, наоборот, даже незначительные изменения, происходящие в кристаллической структуре можно «запечатать» по изменению дифракционной картины.

Таким образом, параметры всей дифракционной картины или отдельно взятого дифракционного пика (интенсивность, положение дифракционного максимума, его форма и т.д.) должны также сильно меняться при наличии внешних воздействий различного типа, вызывающих как упругие деформации, так и пластические деформации, приводящие обратимым и необратимым изменениям кристаллической структуры твердого тела, например, рост дефектов, фазовые переходы, перестройка дефектной структуры, образование доменов, разрушение материала. Экспериментально внешние воздействия можно создать различными способами: механические напряжения, давление, воздействие электрических, магнитных и тепловых полей, воздействие лазерного излучения, и т.п.

Исследования внешних воздействий на структуру и свойства кристаллических объектов представляет огромный интерес в первую очередь с точки зрения изучения физики происходящих при этом процессов и понимания наблюдаемых эффектов. Но при этом не менее важным аспектом проводимых исследований является изучение возможности управления как физическими свойствами материала, основанного на внешних воздействиях, так и параметрами самого рентгеновского излучения посредством изменений в среде распространения его, которой является рассматриваемый материал.

Наибольшее воздействие оказывают деформации ультразвуковых колебаний и волн различных частот, т.к. только они способны напрямую и в широких пределах изменять межплоскостные расстояния кристаллической решетки, определяющие условия дифракции рентгеновских лучей, что позволяет изменять не только свойства материала, но и управлять на этой

основе пространственно-временными характеристиками дифракционной картины.

В настоящей работе исследовано два вида внешних воздействий – ультразвуковые колебания и электрическое поле. Указанные виды внешних воздействий наиболее удобны для практической реализации и позволяют контролируемым способом воздействовать на кристаллическую решетку путём её деформации. Например, электрическое поле особо удобно для внешнего управления в случае кристаллов пьезоэлектриков. Так, в случае переменного электрического поля появляется возможность возбуждать ультразвуковые колебания и волны в пьезоэлектрических кристаллах, которое упругим способом можно эффективно передавать другим объектам используя резонансные механические явления в твердых телах. При этом электрические поля, постоянные или переменные достаточно просто создаются в образце посредством приложения электрического сигнала.

Особое внимание в работе удалено разработке физических основ акустического управления дифрагированным пучком, созданию методов и элементов рентгеновской акустооптики, а также вспомогательной аппаратуры для осуществления быстрой перестройки основных экспериментальных параметров рентгеновского пучка (длина волны, фокусировка, угол падения на объект, пространственное положение). На этой основе была решена отдельная задача по созданию аппаратурно-методической базы, включающей в себя развитие методологии проведения рентгенодифракционных структурочувствительных исследований с применением принципиально новых подходов по быстрой ультразвуковой перестройки рентгенооптической схемы.

Как было отмечено ранее, внешние воздействия могут не только модулировать параметры кристаллической решетки, но и существенно менять дефектную структуру кристалла, в связи с чем, требуется исследование структурных особенностей используемых в работе кристаллов. Поэтому отдельное внимание в работе удалено применению

рентгенодифракционных методов, основанных на двухволновой и многоволновой рентгеновской дифракции, для изучения реальной структуры кристаллов – изучению дефектной структуры и её изменений на различных участках исследуемых образцов. Это позволило параллельно решить две важные задачи - создание методов, позволяющих прецизионно измерять основные параметры кристаллической структуры и проведение на этой основе исследований структурных особенностей применяемых в работе образцов.

Глава 1. Экспериментальные исследования с применением рентгеновской дифрактометрии при воздействиях на кристаллическую решетку ультразвуком и электрическим полем. Многоволновая дифракция и ее применение для исследования дефектной структуры кристаллов

1.1. Исследования рентгеноакустических взаимодействий

Первые эксперименты по изучению рентгеновской дифракции в условиях распространений ультразвуковых волн были выполнены в низкочастотной области ультразвука. Для генерации ультразвуковых колебаний в работах в основном использовались кварцевые пьезорезонаторы. Ультразвуковые колебания возбуждались на первой гармонике продольных по толщине или сдвиговых мод колебаний. Диапазон резонансных частот колебался от сотен килогерц до нескольких мегагерц, длины упругих волн при этом составляли сотни микрон. Большинство ранних работ [1] посвящено исследованию изменению интегральной интенсивности дифрагированного рентгеновского пучка в условиях ультразвуковых колебаний в различных резонаторах (преимущественно кварцевых) различных конфигураций.

В одной из первых работ по рентгеноакустическим взаимодействиям [2] были применены колебания в кварцевых пластинах, которые возбуждались пьезоэлектрическим способом. Авторы впервые наблюдали увеличение интенсивности в условиях рентгеноакустического взаимодействия. При подаче на электроды, нанесенные на поверхности кристаллической пластины переменного электрического сигнала для возбуждения колебаний, происходило изменение интенсивности рассеяния рентгеновских лучей. Яркость лаузских пятен возрастала при частотах близких к частотам пьезорезонанса. При увеличении амплитуды колебаний эффект усиливался. Полученные результаты стимулировали интерес к наблюдаемому явлению и были экспериментально подтверждены в дальнейших работах [3- 15].

Метод дифракционной рентгеновской топографии, впервые предложенный Лангом [16], позволяет фактически визуализировать колебания кристаллической решетки, как на поверхности, так и в объеме кристаллов. В целом методы рентгеновской топографии можно разделить на две основных группы, основанные на: методе Ланга и методе Берга-Баррета. Другие подходы менее универсальны методы требуют специального оборудования и или существенно ограничены с точки зрения пространственного разрешения.

Основа схемы Берга-Баррета - дифракция на отражение (по Брэггу), в связи с этим рентгеновские топограммы, полученные методом Берга-Баррета, позволяют изучать деформации, возникшие в приповерхностном слое, глубина которого не превышает нескольких десятков микрон. Следовательно, метод Берга - Баррета при исследовании акустически возбужденных кристаллов применим к тем типам колебаний, главные смещения которых перпендикулярны поверхности кристалла (например, изгибные колебания и поверхностные волны).

Метод Ланга – метода секционной топографии основан на дифракции на прохождение (дифракция по Лауэ), и такой подход позволяет изучать объем кристалла - проводить измерения искажений кристаллической решетки или дефектов упаковки в объеме монокристаллов. В методе Ланга рентгеновские лучи, отраженные колеблющейся кристаллической пластиной, несут

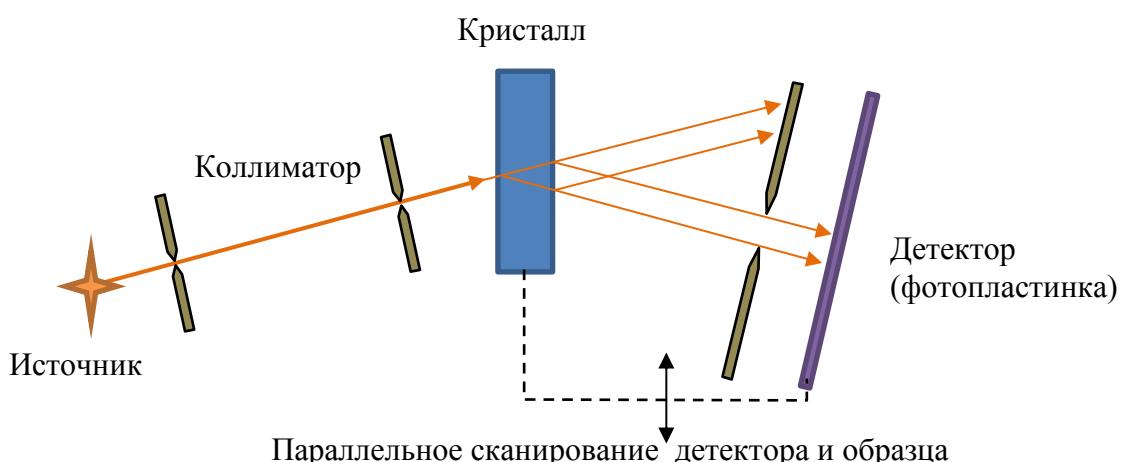


Рис 1.1. Рентгенооптическая схема метода Ланга.

информацию о смещениях не только в поверхностном слое, но и в объеме колеблющегося кристалла.

В работе [17] с применением метода Ланга была развита трансмиссионная топография колеблющихся кварцевых пластин. Обзор результатов, полученных методом Ланга представлен в работе [18], на основе динамической теории представлена теоретическая интерпретация рассеяния рентгеновских лучей.

В этом направлении успешно работали несколько групп советских ученых [19]. Современное состояние методов секционной топографии хорошо представлено в работах Э.В. Суворова и И.А. Смирновой [20 - 33].

В дальнейшем рентгенодифракционные методы - в первую очередь секционная рентгеновская топография были применены к исследованиям резонансных колебаний в монокристаллах. Высокая чувствительность дифракции рентгеновского излучения к малым деформациям кристаллической решетки позволяет наблюдать рентгеноакустическое взаимодействие даже при низких амплитудах ультразвуковых волн.

Работа [34] подставляет собой тщательный и широкий обзор результатов, полученных по наблюдению и исследованию ультразвуковых колебаний до середины 50х годов. Представлены первые объяснения обнаруженных эффектов, связанных с изменением интенсивности дифракции. В дальнейших работах показано, что изменение интенсивности дифрагированного рентгеновского излучения при воздействии ультразвуком на кристаллическую решетку объясняется динамическими явлениями. Одни из первых изображения ультразвуковых деформаций (карта колебательных мод) пьезорезонаторов получены в работе [35] в геометрии Брэгга. В работе впервые показано что области пучности стоячей волны смещений обладают наибольшей отражающей способностью, и эффект связан с образовавшимися градиентами деформации.

Картина колебательных смещений для произвольной кристаллической пластинки чрезвычайно сложна, и в общем случае присутствует бесконечный

набор мод. Но картина колебаний упрощается при определенных ориентациях пластиинки. И при этом можно создать условия, когда существенными будут только одна - две моды. Обеспечение чистоты колебаний является очень важным при проведении экспериментальных исследований. Ориентации (срезы) кристаллов с единичным набором мод колебаний имеют специальные названия. В дальнейших исследованиях в основном применялись кристаллические образцы специальных срезов [36 - 39].

DT срез кварца, обеспечивающий возбуждение сдвиговой моды был исследован рентгенодифракционными методами в работе [40]. В образце возбуждались колебания сдвига по ширине, частота колебаний составляла 230 кГц. Длина волны ультразвука составляла $\lambda_s = 2 \times Y = 16$ мм (Y - ширина пластины). Размеры падающего рентгеновского пучка на образце, ограниченного в горизонтальной и вертикальной плоскости, составляли $0,025 \times 0,05$ мм². Столь малые размеры рентгеновского пучка были необходимы для обеспечения дифракции в малой области кристалла, в области пучности ультразвуковой деформации. Ультразвуковые колебания не оказывают влияния на дифракцию рентгеновского пучка только при вертикальном расположении пластиинки. Это вызвано тем, что градиент деформации в плоскости рассеяния равен нулю, однако эффект проявляется при повороте кристалла вокруг вектора дифракции на угол 25°. Зависимость интегральной интенсивности дифрагированного рентгеновского пучка измерялась в зависимости от мощности ультразвуковой волны. Кривая зависимости имеет несколько характерных участков: при малых амплитудах колебаний – квадратичная зависимость, далее следует квазилинейный участок и при больших амплитудах происходит насыщение. В работах, проводимых в геометрии Брэгга [41], можно встретить подобные амплитудные зависимости. Распределение амплитуды ультразвуковой деформации отражает топограмма пластиинки, измеренная в условиях акустического воздействия. Профиль плотности почертнения топограммы,

описывающий зависимость амплитуды ультразвуковых смещений от координаты отсчитываемой по ширине пластиинки, близок к функции $|\sin(\pi y/y)|$, где y – длина кристалла. Важно отметить, что все вышеуказанные результаты и зарегистрированные экспериментально значения интенсивности дифрагированного пучка являются усредненными значениями по периоду колебаний кристалла. Использование временного анализатора позволяет производить измерения интенсивности в зависимости от времени.

Кварцевые резонаторы на основе АТ–среза эффективно применяются при создании различных устройств фильтрации или стабилизации частоты, широко применяются для изготовления датчиков массы. Для АТ–срез кварца [42] характерна высокая механическая добротность, малый температурный коэффициент частоты.

Типы колебаний, возникающие в кварцевой пластине АТ–среза по толщине со смещением вдоль оси x были изучены в работах [43, 44]. В условиях механического резонанса поле деформаций в кристалле есть результат суперпозиции смещений всех возможных типов колебаний. Проведенные эксперименты позволили предсказать многие из мод, обнаруженных экспериментально в пластинках АТ среза кварца. В зависимости от конфигурации образца, смещение, вызванное колебательными движениями одного типа, может преобладать над другими. Если смещение направлено нормально к кристаллической пластинке мода называется изгибной модой, а мода, представляющая собой поворот нормали к пластинке называется сдвиговой. Смещения продольной моды приводят к растяжению-сжатию пластиинки. Исследованию колебаний сдвиговых по толщине (TS) и изгибных (F) колебаний посвящены работы [44] и [45]. В работах проведено детальное топографическое исследование кристаллических пластин в процессе колебаний. В общем случае в АТ среза кристалла кварца характеризуется возбуждением еще многих мод, но исследуемые моды относятся к самым сильным. Исследования полей деформации и сравнения с расчетами резонансных колебаний проведены их

примере. Полученные в работах топограммы искаженных ультразвуком кварцевых пластин, измеренные для разных отношений длины кристаллической пластины к ее толщине показали существенное различие в распределении ультразвуковой деформации. Методика изучения распределение амплитуды деформации по толщине была основана на применении узкой щели для выделения области рентгеновского пучка, идущей от разных участков кристалла в основании дельты Бормана. При этом область дифрагированного пучка, отрезанная щелью со стороны падающего пучка, отвечает за дифракцию на приповерхностных слоях, и наоборот. На основании данной методики, были исследованы структуры высших гармоник (третьей и пятой) сдвиговых по толщине колебаний (см. работы Спенсера [18,44,45]).

Следует отметить, что в расчет колебаний анизотропных пластин представляет весьма трудную математическую задачу, не решенную аналитически. Численные же расчеты трудоемки, требуют больших компьютерных мощностей, и точного учета огромного числа параметров резонаторов и условий возбуждения ультразвука. В связи с этим, данные, полученные на основе рентгеновских экспериментов представляют большую ценность даже для идеализированных случаев бездефектного кристалла [46].

Теоретические исследования рентгеноакустических взаимодействий

Динамическая теория дифракции рентгеновских лучей в геометрии Лауэ на кристаллической решетке, промоделированной ультразвуковыми колебаниями изложена в работе [47]. На основе решения фундаментальных уравнений динамической теории с учетом квазимонохроматической деформации кристаллических плоскостей, зависящей от времени, получены выражения для интенсивности рентгеновского рассеяния для Лауэ случая.

Общая теория динамической дифракции на кристаллических структурах, искаженных ультразвуком, представлена в [48]. Получены основные уравнения, для монохроматических ультразвуковых колебаний длиной

волны, которых короче, чем экстинкционная длина (с учетом высших гармоник). Показано, что каждый сателлит, вызванный этими колебаниями, можно рассматривать как обычный динамической случай двухлучевой дифракции с использованием модифицированной диэлектрической восприимчивости, которая зависит от амплитуды и фазы колебаний.

Многоволновая теория рентгеновской дифракции на ультразвуке, возбужденном в совершенном кристалле изложена в работе [49].

Наиболее детальное теоретическое разностороннее исследование дифракционных эффектов в кристаллах при возбуждении ультразвука проведено в работах И.Р. Энтина и Е.А. Тихоновой [50 - 53]. Поперечная ультразвуковая деформация рассмотрена в работе [52] при условии, что длина волны ультразвука много больше длины экстинкции. В работе [53] рассмотрено рассеяние рентгеновских лучей на кристалле, атомы которого смещены по синусоидальному закону. Проведена классификация по двум параметрам: скорости пространственного изменения смещений и значению амплитуды. Смещения поделены на 4 типа: слабые, сильные, быстро и медленно меняющиеся во времени. В представленных решениях кроме осциллирующих слагаемых возникают также и слагаемые, растущие линейно, а при резонансе квадратично.

В работе [54] развита теория динамической дифракции рентгеновского излучения на кристаллических решетках, промодулированных продольной или поперечной ультразвуковой волной. В аналитической форме получены выражения для поля рентгеновского излучения, дифрагирующего на колеблющемся кристалле для геометрии Брэгга и Лауз.

Кинематическое приближение также успешно используется при решении различных задач взаимодействия рентгеновского излучения с акустическими фононами, не требующих расчетов интенсивности отражений [55].

Эффект усиления и переброски. Управление интенсивностью.

Топографические исследования кристаллических пластин в условиях возбуждения ультразвуковых волн проводились в первую очередь для изучения распространения ультразвука в кристаллических упорядоченных средах и анализа ультразвуковых деформаций. При этом огромный интерес, связанный с открывающимися уникальными экспериментальными возможностями также представляет применение рентгеноакустических взаимодействий для управления основными параметрами рентгеновских пучков – управления рентгеновским экспериментом. И целый ряд работ по рентгеноакустике был посвящен именно поиску возможностей адекватного управления рентгеновским пучком на основе кристаллов при возбуждении в них ультразвуковых волн.

Эффект усиления и полной переброски, обнаруженный в геометрии Лауэ, исследовался в ряде работ, выполненных преимущественно Арменией в Институте прикладной физики [56 - 62]. Эффект полной переброски заключается в том, что при ультразвуковом воздействии на кристалл интенсивность проходящего пучка может быть уменьшена практически до нуля, а интенсивность отраженного пучка при этом пропорционально возрастает.

Данный эффект (полной переброски) впервые был обнаружен в работе [56]. В работе был проведен количественный анализ интенсивностей отраженного и проходящего дифрагированных рентгеновских пучков в геометрии Лауэ. Расчеты были выполнены для тонких кристаллов ($\mu t \sim 1$). Проведенные экспериментальные исследования показали, что при определенной величине параметров внешнего воздействия дифрагированный пучок из направления прохождения полностью перебрасывается в направление отраженного пучка. В других работах для падающей плоской волны исследовано (в геометрии Лауэ) соотношение интенсивностей падающего, проходящего и отраженного рентгеновских пучков для тонких кристаллов. Показано, что коэффициент линейного поглощения уменьшается

в зависимости от величины приложенного ультразвукового поля. Интенсивность проходящего и отраженного пучков при этом может увеличиться на треть.

В работе [52] теоретически предсказано, что акустически нагруженный кристалл должен становиться полностью прозрачным при определенной величине амплитуды стоячей ультразвуковой волны.

В работах [60] показано, что дифрагированный рентгеновский пучок может фокусироваться или дефокусироваться в зависимости от градиента деформации, приложенного перпендикулярно отражающим атомным плоскостям, а местонахождение фокуса зависит от величины градиента.

В работах [63,64] рентгенодифракционным методом получены картины стоячих акустических волн в монокристалле кварца. При акустическом возбуждении исследуемого резонатора на высших гармониках исследовано периодическое изменение диэлектрической проницаемости по толщине, вызванное ультразвуковыми деформациями.

В работе [65] в геометрии Лауз экспериментально исследована дифракция рентгеновского излучения для разных семейств атомных плоскостей монокристалла кварца АТ-среза, при возбуждении в кристалле акустической волны на первой гармонике сдвиговых колебаний. В работе показано, что акустические волны приводят к увеличению интегральной интенсивности дифрагированного отраженного пучка. Представлены измеренные коэффициенты усиления отраженной интенсивности в зависимости от амплитуды переменного электрического сигнала, приложенного к кристаллу. Получены фронтальные распределения интенсивности дифрагированного отраженного пучка для разных атомных плоскостей.

В работе [66] предложено объяснение эффекта полной переброски. Расчет рентгеновского волнового поля в кристалле с учетом деформаций кристаллической решетки для объяснения эффекта полной переброски выполнен в работе [67] на основе решения уравнения Такаги [68,69].

На рис. 1.2а представленные рассчитанные зависимости интенсивности

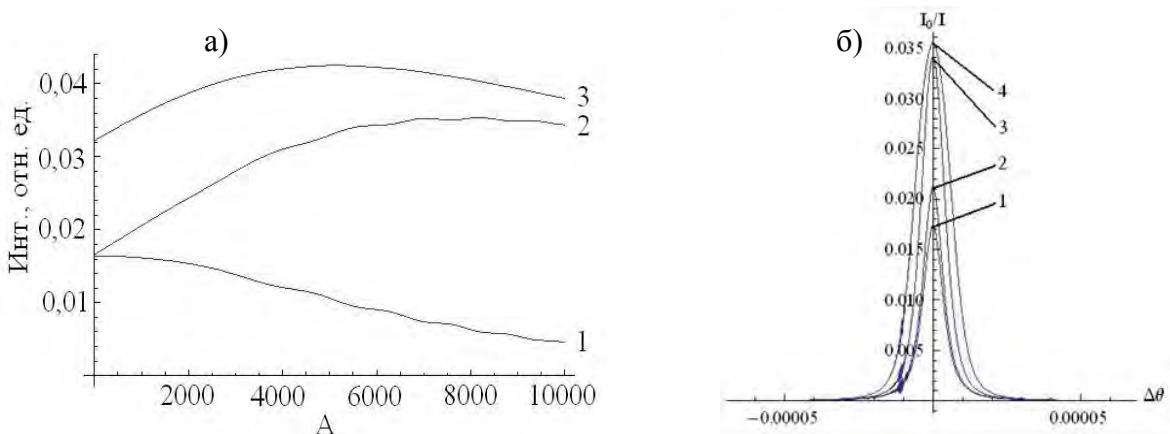


Рис. 1.2 - а) Зависимости относительной интенсивности дифрагированного (1), проходящего (2) пучка и их суммы (3) от величины внешнего воздействия; **б)** Кривые качания для разных величин внешнего воздействия 1 – $A = 0$, 2 – $A = 1000$, 3 – $A = 6000$, 4 – $A = 10000$.

дифрагированного (1), проходящего (2) пучка относительно интенсивности падающего пучка, а также их сумма от величины амплитуды ультразвуковой деформации. Из рис. 25а следует, увеличение амплитуды ультразвуковых колебаний приводит к увеличению интенсивности дифрагированного пучка до некоторого порового значения, при этом интенсивность проходящего пучка падает до нуля. Кривая качания при этом медленно уширяется. Относительная интенсивность увеличивается вплоть до максимального значения (см. рисунок 1.2б). Дальнейшее увеличение амплитуды колебаний приводит только к уширению кривых качания и их максимумы медленно падают. Расчеты проведены для дифракции фотонов с энергией 9,76 КэВ на монокристалле SiO_2 толщиной 1 мм, отражение ($10\bar{1}1$).

Эффект увеличения интенсивности отражения был использован для передачи речевой информации с помощью рентгеновского излучения. Низкочастотная модуляция переменного электрического сигнала, подаваемого на кварцевый резонатор, приводила к модуляции интенсивности рентгеновского излучения, что отражалось в изменении счета сцинтилляционного детектора, сигнал которого подавался на осциллограф.

[62]. В работе [70] с помощью двойной модуляции кристалла кварца осуществлена аналогичная передача звуковой информации. На рис. 1.3 представлена схема эксперимента.

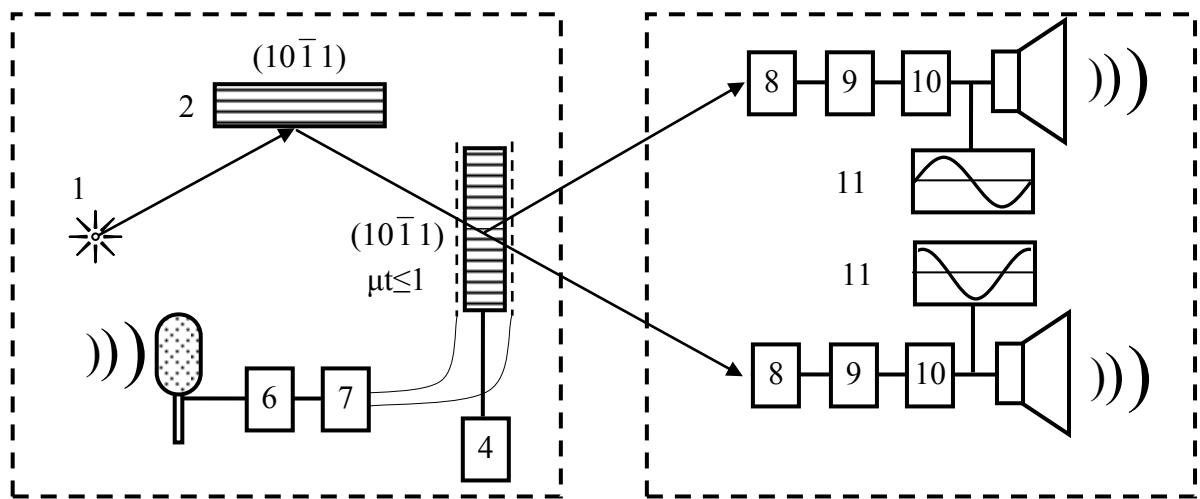


Рис. 1.3. Схема устройств передачи звуковых сигналов с помощью дифрагированного рентгеновского пучка. 1 – Рентгеновский источник, 2- монокроматор, 3 – кристалл модулятор, 4 – гониометр, 5 – микрофон, 6,7 – низкочастотный и высокочастотный генераторы, 8 – сцинтиляционный детектор, 9 - интегральная схема, 10 – усилитель, 11 – осциллограф, 12 – Громкоговоритель.

В работе [71] эффект увеличения интенсивности в направлении дифрагированного пучка был использован для разработки устройства для спектрального анализа. При этом ультразвуковые взаимодействия были использованы исключительно для увеличения интенсивности дифрагированного излучения, управление длиной волны осуществлялось за счет механической перестройки рентгенооптической схемы.

В работах М.В. Ковальчука и В. Л. Носика [72] впервые уделено внимание длинноволновым колебаниям именно с точки зрения развития перестраиваемой рентгеновской оптики. Воздействие на рентгеновскую дифракцию для этой области представляется наиболее близким к воздействию статическим элементам при их повороте. Авторами было отмечено, в настоящее время очень важным становится проведение структурных экспериментов с временным разрешением, позволяющих количественно исследовать динамические процессы, происходящие в

криSTALLических объектах органической и неорганической природы. Например, в области исследования структуры белков основная информация содержит именно структурные превращения, которые происходят в результате биохимических реакций. Методы, основанные на использовании колеблющихся кристаллов, с точки зрения решения поставленной задачи могут оказаться одними из самых эффективных.

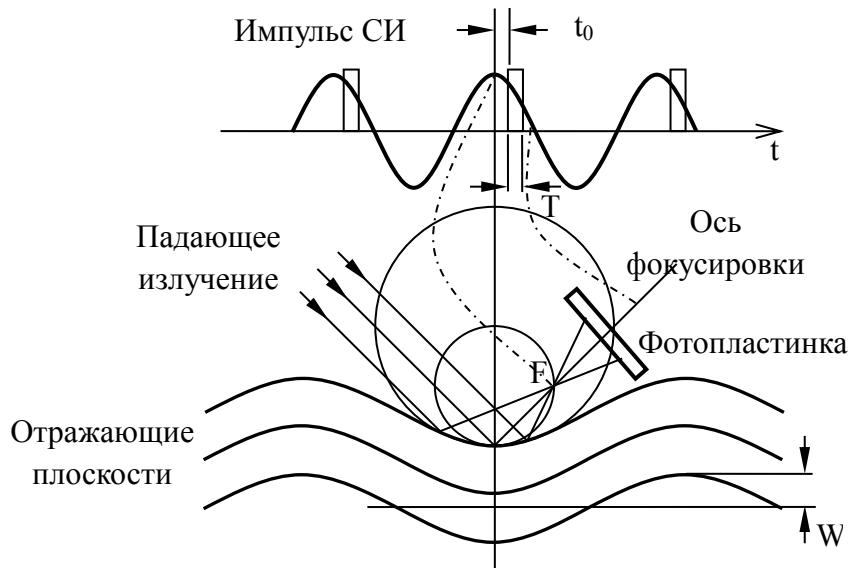


Рис.1.4. Схема колеблющегося фокусирующего кристалла.
 F – фокус, t_0 – сдвиг пучка относительно акустической волны, w – амплитуда смещения атомов, $R(t)$ - радиус кривизны отражающих плоскостей в момент времени t .

Стробоскопическая методика, когда колебания кристалла синхронизированы с импульсами СИ весьма перспективна с точки зрения быстрого переключения рентгеноакустической оптики. На этой основе возможна реализация рассеяния каждого импульса СИ при фиксированном искажении решетки кристалла. На основе сдвига по фазе между акустическими колебаниями и рентгеновским импульсом, можно реализовать различные дифракционные условия. В работе показано, фокусное расстояние (положение фокуса) на рис. 1.4 определяется исходя из параметров акустической волны:

$$R_h = R(t) \frac{\cos^2 \Phi}{\sin \theta}; \quad \Phi = h_z w \cos \omega t$$

где θ - брэгговский угол, ω - частота ультразвуковой волны (УЗВ), $R(t)$ - радиус кривизны в момент времени t , w – амплитуда смещения атомов, h_z – вектор дифракции.

В таком случае можно добиться фокусировки излучения определенного импульса, и расфокусировки всех остальных. Для регистрации достаточно поместить фотографическую пластинку или линейный детектор на определенном расстоянии (рис. 1.4) от кристалла перпендикулярно дифрагированному пучку.

На основе данной схемы можно изучать временную структуру сигнала, падающего на кристалл. Для этого надо зафиксировать некоторый сдвиг по времени между ультразвуком и задержанным рентгеновским сигналом t_0 .

На основе данного эффекта авторы предлагают проводить эксперименты по литографии и томографии: «Вместо того чтобы механически перемещать образец в постоянном пучка излучения, можно менять свойства самого пучка, возбуждая то или иное ультразвуковое колебание в рассеивающем кристалле».

Рентгеноакустические исследования в области высоких частот ультразвука

При возбуждении ультразвука на высокой частоте, при условии, что длина ультразвуковой волны которого меньше размеров области дифракции, формируется дополнительная дифракционная решетка (ультразвуковая сверхрешетка) для рентгеновской волны. При условии $\lambda L / \Lambda^2 < 1$ ультразвуковая сверхрешетка является достаточно тонкой – так называемый случай дифракции Рамана-Ната, когда вместе с основным пиком возникают дополнительные, дифрагированные на сверхрешетке пучки с угловым положением максимумов $9 \sim \lambda n / \Lambda$, где n – порядок дифракции. Они называются сателлитами [73] n -го порядка. В соответствии с теорией дифракции, функция Бесселя соответствующего порядка определяет зависимость интенсивности сателлита от мощности упругой волны.

В начале в 70-х годов прошлого века в связи с развитием акустоэлектроники появились работы по взаимодействию рентгеновского излучения с высокочастотным ультразвуком [74]. Для возбуждения коротковолнового ультразвука в первых работах фононы генерировались с помощью акустоэлектрического эффекта при ускорении носителей тока электрическим полем. С применением данного подхода, авторы получали интенсивное квазимохроматичное поле деформаций с выделенным направлением распространения и определенной поляризацией. Характеристики фононов на частотах ниже 5 ГГц изучались методом мандельштам–бриллюэновского рассеяния света. Для оптических методов переход к частотам выше 5 ГГц невозможен, т.к. длина волны фононов оказывается меньше световой. Частотный диапазон 5-100 ГГц может быть исследован с использованием рентгеновских методов.

Спектр фононов был исследован в работах [75] с применением однокристальной рентгеновской методики. Уменьшение интенсивности упругого пика с одновременным возникновение диффузного рассеяния наблюдалось частотах выше 10 ГГц. Интенсивность основного рассеяния была на два порядка выше интенсивности рассеяния на фононах, а угловое положение фононных пиков составляло 3 угловых минуты по отношению к основному пику, что соответствовало частоте фононов 50 ГГц.

Рассеяние рентгеновских лучей на фононах с частотой 3 ГГц было реализовано работах [76 - 79] с использованием кристаллов GaAs и CdS. При возбуждении фононов интегральная интенсивность дифрагированного рентгеновского пучка увеличилась более чем в 4 раза. В работах [80, 81] для кристаллов CdS показано, что в зависимости от угловой расходимости падающего рентгеновского излучения интегральная интенсивность при акустоэлектрическом возбуждении фононов может меняться. В условиях низкого углового разрешения интегральная интенсивность отражения растет, при высоком разрешении – уменьшается.

Двухкристальная методика позволила разделить брэгговское рассеяние и рассеяние на фононах уже на сравнительно низких частотах ~ 1 ГГц. С применением достаточно совершенных кристаллов InSb в работах [82], [83], [84,85] при температуре жидкого азота были проведены эксперименты в поперечном магнитном поле с напряженностью ~ 1 кгс. Пример кривых дифракционного отражения, полученных в брэгговской геометрии в работе [82] представлен на рис. 1.5. Частота фононов, определенная по угловому смещению сателлитов, соответствовала экспериментальными значениями частоты фононов. Авторы наблюдали сателлиты первого и второго порядка, возникающие с увеличением частоты фононов.

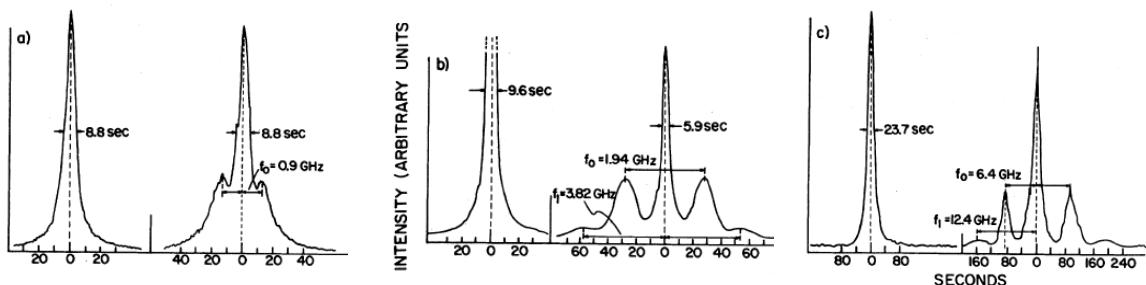


Рис.1.5. Кривые качания (004) InSb, полученные в двухкристальной брэгговской геометрии при возбуждении в кристалле акустоэлектрических фононов.

В области высокочастотного ультразвука рентгеноакустические эффекты можно наблюдать, как при распространении объемных волн в кристаллах, так и при формировании поверхностных акустических волнах (ПАВ).

Первые работы [86,87] по исследованию дифракции на ПАВ проводились с применением лабораторного рентгеновского источника по двухкристальной схеме дифракции. Использовался кристалл ниобата линия, в котором возбуждалась ПАВ. Система детектирования, основанная на сцинтилляционном детекторе с коротким (наносекундным) временем счета в режиме счета отдельных квантов была снабжена многощелевым устройством с периодом щелей, совпадающим с длиной поверхностной акустической волны. Что позволило добиться соответствия периода модуляции

интенсивности дифрагированного рентгеновского пучка и периоду акустической волны.

Большая серия работ по экспериментальному теоретическому исследованию дифракции рентгеновских лучей на кристаллах при возбуждении в них ПАВ, включая разработки приложений, связанных с применением рентгеновской дифракции на ПАВ, были выполнены научным коллективом отдела рентгеновской оптики ИПТМ РАН, возглавляемым Д.В. Рошупкиным в соавторстве с коллегами из Европейского центра синхротронного излучения Р. Тукулу и О. Матоном [88-113].

Также следует отметить большую серию работ Э. Золотоябко, выполненных в этой же области в Технологическом институте Израиля [114-132].

Пионерские работы [88-91] были выполнены в условиях полного внешнего отражения рентгеновских лучей. В экспериментах авторы наблюдали дифракцию синхронного пучка на поверхностной акустической волне, возбужденной в кристалле ниобата лития. В работе [89] была осуществлена временная модуляция рентгеновского пучка на основе дифракции на поверхностной акустической волне при полном внешнем отражении рентгеновского пучка, а в работе [91] проведены теоретические расчеты дифракционных кривых и их сравнение с экспериментом. На основе дифракции рентгеновского пучка на акустической волне были сформированы короткие рентгеновские прямоугольные (микросекундные) импульсы, и показано, что их период и ширина определяется периодом и шириной импульсов поверхностной акустической волны. В работе [92] была предложена схема первого высокочастотного акустического прерывателя рентгеновского пучка в условиях дифракции скользящего падения и формирования поверхностной акустической волны в кристалле. В частности, показано, что около 25% энергии направленного пучка может быть трансформировано в отраженный сателлит. Схема прерывателя была развита в работе [96], в которой авторы применили классическую дифракцию на

поверхностной акустической волне. Для управления интенсивностью было использовано возникновение сателлита с определенным угловым положением при включении ультразвука. В работе также была испытана схема двух последовательно установленных кристаллов, промодулированных поверхностью акустической волной рис. 1.6. Похожие результаты, по исследованию дифракции рентгеновских лучей на различных ПАВ устройствах представлены в работах Э. Золотоябко и И. Поликарпова [130, 133].

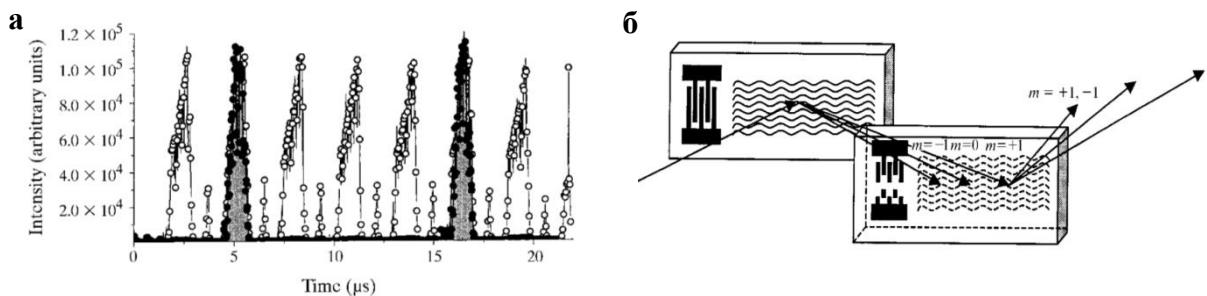


Рис 1.6. а) выделение определённых банчей (каждого четвертого) с применением акустического прерывателя, б) схема двойного акустического прерывателя.

Интенсивность и угловое положение рентгеновского сателлита зависит от мощности и от частоты ультразвуковой волны. В работах по рентгеновской дифракции на многослойном зеркале [93, 97] при возбуждении ПАВ удалось направить свыше 50% излучения в первый дифракционный порядок. С помощью методики прерывателя в работе [98] реализована передача информации в рентгеновском диапазоне длин волн. Высокая частота ПАВ позволяет проводить высокочастотную модуляцию рентгеновской волны. В работе авторы передавали импульсную цифровую (бинарную) информацию, используя рентгеновский луч как передающую волну. Источником информации являлся цифровой видеосигнал. По результатам была проведена оценка скорости передачи информации, которая зависит от интенсивности источника и составила 10 кбайт/с (источником служила 12 кВт трубка с врачающимся анодом). Более интенсивные

источники (по расчетам авторов) позволяют увеличить скорость передачи до 10 Мбайт/с.

Работа [93] одна из первых работ по рентгеновской дифракции на многослойной структуре при одновременном возбуждении ПАВ. В работе зарегистрировано появление дополнительных порядков отражений, определена их зависимость от амплитуды и периода акустической волны, представлена теоретическая модель рентгеноакустического взаимодействия,

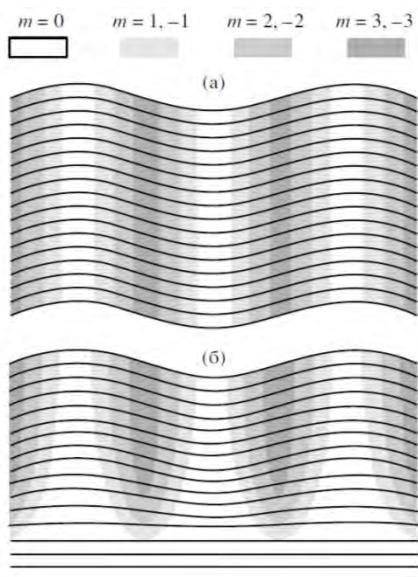


Рис 1.7. Распределение областей промодулированного ПАВ кристалла, ответственных за дифракцию в направлении m -го дифракционного сателлита.

промодулированного ПАВ кристалла, ответственных за дифракцию в направлении m -го дифракционного сателлита.

основанная на динамической теории дифракции.

Следующие работы [95-100] были посвящены дальнейшему развитию экспериментальных подходов и теоретических интерпретаций различных условий дифракции рентгеновского излучения на ПАВ. В работе [95] изучалась дифракция на зонной пластинке Френеля при возбуждении ПАВ, в работах [97,100] исследовались стоячие рентгеновские волны. Динамическая теория для расчетов рентгеновских спектров при дифракции на ПАВ представлена в работе [105]. В частности, проведен учет экспоненциального затухания

затухания ПАВ по глубине кристалла, что позволило более адекватно описать экспериментальные результаты по сравнению с предшествующими работами [119, 120]. На рис. 1.7 показано распределение областей, промодулированного ПАВ кристалла, отвечающих за появление различных порядков отражений (а) без учета (б) с учетом экспоненциального затухания.

Дальнейшие работы [104,106,111-113] преимущественно ориентированы на изучение акустических и рентгенодифракционных свойств новых кристаллов, таких как LGS, LGT и CTGS в условиях возбуждения ПАВ.

На рис. 1.8. приведены кривые дифракционного отражения, показывающие появление сателлитов в кристалле CTGS и эволюцию кривых при больших мощностях ПАВ в кристалле, когда появляются высокие порядки отражений.

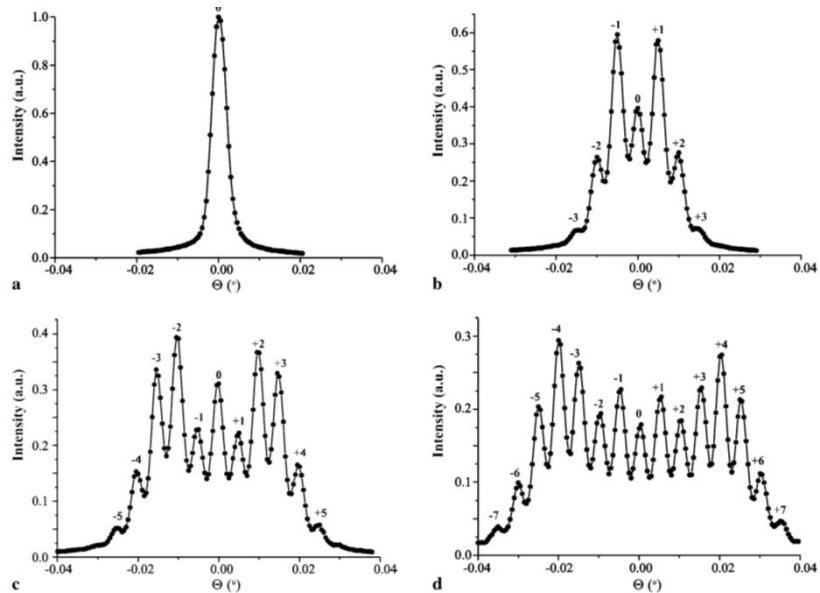


Рис. 1.8. КДО X-среза CTGS, измеренные при различных амплитудах сигнала, подаваемого на ВШП. (a) $U=0$ B, (b) $U=2$ B, (c) $U=5$ B, (d) $U=10$ B; $\Lambda = 8$ мкм, отражение (110).

В работах В. Пунегова, выполненных соавторстве с Д. Рощупкиными [110] совместно проведены теоретические исследования многоволновой дифракции и диффузного рассеяния в условиях возбуждения ПАВ.

С точки зрения разработки управляемой рентгеновской оптики интерес представляет работа [121] в которой предложен перестраиваемый двухкристальный монохроматор с использованием в качестве первого кристалла- кристалла ниобата лития, промодулированного ПАВ. Это одна из первых работ, в которой рентгеноакустические взаимодействия использованы для создания перестраиваемого рентгенооптического монохроматора с изменяемой полушириной.

При дифракции Брэгга и выполнении условия $\lambda L/\Lambda^2 \geq 1$ (где L - глубина проникновения рентгеновского пучка в кристалл) для рентгеновской волны сверхрешетка становится достаточно «толстой». Что с точки зрения условий

дифракции представляет собой случай дифракции по Брэггу, т.е. вместо сателлитов возникает только один дифракционный пик, с угловым положением $\theta=\lambda/\Lambda$. При достаточной мощности упругой волны возможна практически полная перекачка дифрагированного брэгговского пучка, рассеянного на основной решетке в акустический дифракционный пик. Экспериментально данный случай пока не реализован.

Визуализация акустических деформаций.

Стробоскопическая топография.

Изучение распределения акустических полей одна из важных задач акустики. Дифракции рентгеновских лучей широко применяется для решения различных прикладных задач, связанных с изготовлением резонаторных акустических устройств изучением их колебательных мод, изучением влияния дефектов на характер акустических колебаний.

Как было упомянуто выше, метод высокоразрешающей рентгеновской топографии - один из основных методов исследования объемных и поверхностных акустических волн. Высокая чувствительность рентгеновского излучения к малейшим искажениям кристаллической решетки позволяют визуализировать акустические деформации и изучать распространение ультразвуковых волн. Развитию этого метода и практическому применению посвящено большое число работ 70х-80х годов [134,135].

В конце 80х начале 90х годов начали активно развиваться работы по визуализации акустических полей в условиях бегущей ПАВ с применением техники стробоскопической топографии. В работах использовалась схожая техника визуализации акустических волн и создаваемых ими деформаций. Первые эксперименты проводились с применением лабораторных рентгеновских источников. [136,137]. Последующие эксперименты проводились с использованием импульсной структуры источника синхротронного излучения, когда частота импульса СИ была

синхронизирована с периодом ПАВ [138,139,140]. Следует отметить работу Д. Рошупкина [103], где методом стробоскопической топографии на источнике синхротронного излучения (ESRF) исследован процесс распространения бегущих волн и продемонстрирована возможность визуализации распределения максимумов и минимумов ультразвукового волнового поля, а также рассеяния ультразвука на дефектах. В работах [122,131,132] с высоким разрешением и контрастом получены топограммы ПАВ в различных кристаллах Si, LiNbO₃, GaAs

В основе данного метода для случая бегущей волны лежит принцип фокусировки рентгеновского излучения минимумами акустической волны в ближней зоне дифракции. В случае стоячей акустической волны фокусировка рентгеновского излучения осуществляется попеременно пучностями стоячей волны. Разработанная авторами техника регистрации рентгеновских топограмм позволила визуализировать очень быстрые периодические процессы в кристаллах. Пример полученных топограмм приведен на рис. 1.9.

Из рис. 1.9 видно искажение волнового фронта при прохождении ПАВ через дефекты кристаллической решетки в результате рассеяния

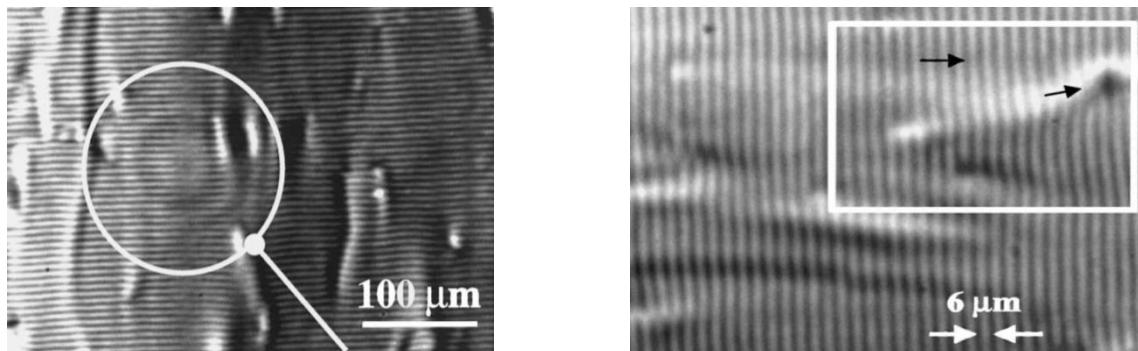


Рис. 1.9. Изображение ПАВ с периодом 6 мкм, распространяющейся в кристалле ниобата лития. Область дислокаций выделена прямоугольником. На левом снимке виден когерентный концентрический контраст, на правом стрелками указаны области рассеяния ПАВ на дефектах

колебательной энергии. В работе [141] проанализирован контраст таких изображений ПАВ и показано, что количественный анализ искажений волнового фронта несет важную информацию о силе взаимодействия

фононов с дислокациями, что является наиболее важным при изучении теплопроводности кристаллов.

Рентгеноакустический резонанс

В широком спектре рентгеноакустических взаимодействий с точки зрения соотношения акустических и дифракционных параметров особое место занимает область рентгеноакустического резонанса, соответствующая условию равенства волнового числа ультразвуковой волны и минимального расстояния между дисперсионными поверхностями $k_s = \Delta k$ (рис. 1.10а) в двухволновом случае (равенства длины упругой волны длине экстинкции τ : $\Lambda \approx \tau$). Впервые явление рентгеноакустического резонанса было экспериментально обнаружено И.Р. Энтиным и представлено в работе [142]. Автором продемонстрировано резонансное ослабление аномального прохождения рентгеновских лучей в геометрии Лауз при совпадении длины ультразвуковой волны и длины экстинкции. В работе [143] представлена динамическая теория рентгеноакустического резонанса и на основе решения уравнений Такаги, проведено моделирование распространение рентгеновского излучения в кристалле с периодическим полем смещений. Полученные результаты хорошо согласуются с проведенными экспериментами.

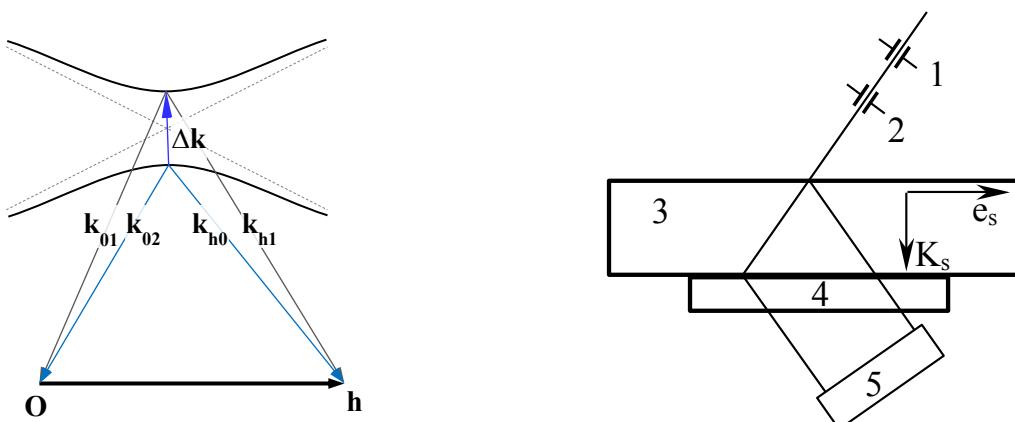


Рис. 1.10. а) Дисперсионная поверхность при двухвольновом приближении.
б) Схема эксперимента РАР. 1,2 – щели, 3- образец, 4-Кварцевый преобразователь, 5-Детектор.

Первые эксперименты по наблюдению рентгеноакустического резонанса проводились на кристалле кремния (Si) с использованием второго и четвертого порядка отражения от плоскостей (110). Толщина кристалла составляла 7,85 мм, что соответствует эффекту Бормана. С помощью пьезопреобразователя (кварц, Y-срез, частота основной моды = 10 МГц) в кристалле возбуждались поперечные ультразвуковые колебания. На рис. 1.10(б) представлена схема эксперимента. Для реализации геометрических условий рентгеноакустического резонанса вектор поляризации акустической волны был параллелен дифракционному вектору семейства плоскостей (110) $\bar{e}_s \parallel H_{(110)}$, а волновой вектор ультразвука перпендикулярен входной поверхности кристалла.

На рис. 1.11 представлены экспериментальные результаты, полученные в [143], представляющие собой зависимость интегральной интенсивности дифрагированного рентгеновского пучка от частоты ультразвуковых колебаний. Интегральная интенсивность дифракционного отражения резко падает, когда частота ультразвука близка к резонансной, те выполняются условия равенства волновых векторов $k_s = \Delta k$. В экспериментах кристалл возбуждался на высших гармониках пьезопреобразователя что не позволяло

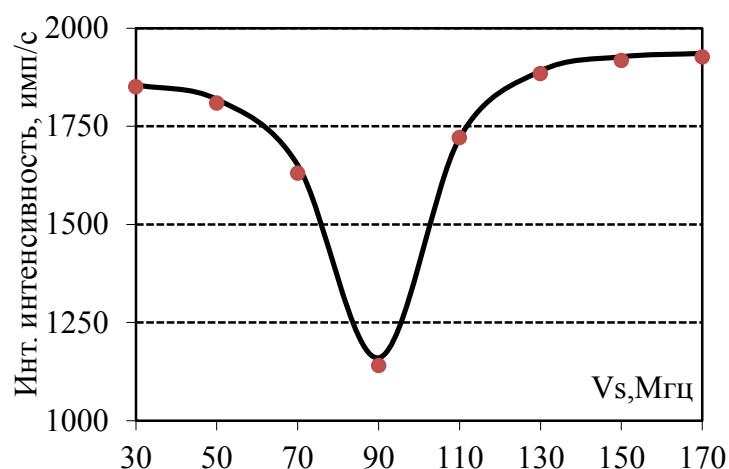


Рис. 1.11. Интегральная интенсивность отраженного пучка в зависимости от частоты ультразвука. На верхнем Si(220), на нижнем Si(440) $\mu T = 11.3$

обеспечивать одинаковую интенсивность колебаний и амплитуду ультразвуковых деформаций для различных частот - интенсивность колебаний падала как $1/n^2$, где n -номер гармоники.

В связи с этим недостатком авторами был предложен другой метод регистрации кривой рентгеноакустического резонанса, который основан на зависимости экстинкционной длины от длины волны рентгеновского излучения. В дали от К-края поглощения условие $\tau = (\lambda/\chi_h)\cos\theta$ (λ -длина ультразвуковой волны) выполняется с достаточной точностью в широком диапазоне длин волн. Эксперимент проводился при постоянной частоте колебаний кристалла, параметром являлась экстинкционная длина. Использовалось тормозное излучение трубки с медным анодом, изменение длины волны λ производилось путем синхронного поворота кристалла и детектора. На рис. 1.12 показана кривая, измеренная в эксперименте. Интенсивность достигает своего минимума, когда длина экстинкции равна длине волны ультразвука. Повышение частоты колебаний приводит к сдвигу резонанса к длинноволновую область рентгеновского излучения.

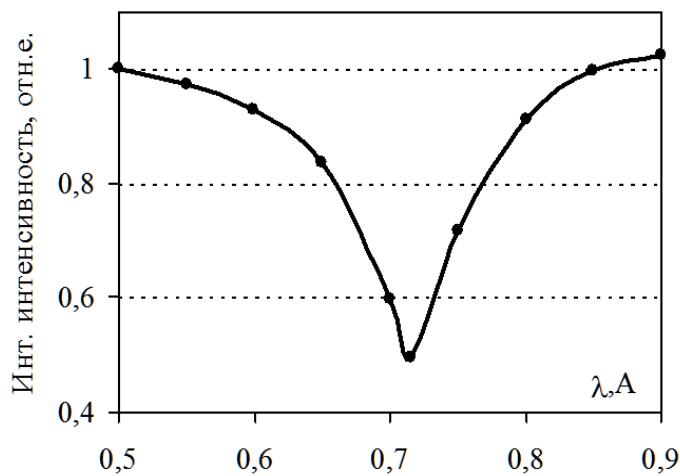
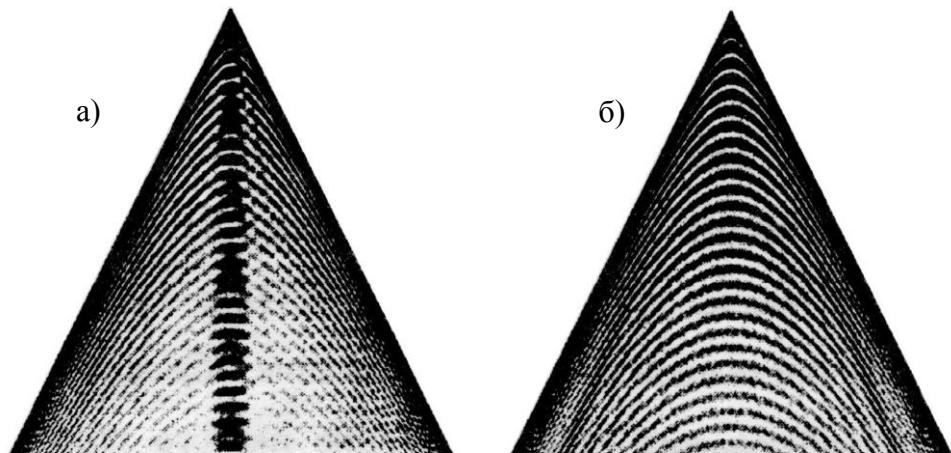


Рис. 1.12. Резонансные кривые, измеренные при переменной длине волны рентгеновского излучения. Si(220).

Рентгеноакустический резонанс экспериментально и теоретически исследовался также и в работах [144-152]. Для геометрии Лауз показано, что помимо подавления аномального прохождения рентгеноакустический

резонанс оказывает влияние на профиль кривой дифракционного отражения, проходящего и дифрагированного пучков [144,150]. Изучению рентгеноакустического резонанса в Брэгговской геометрии посвящены теоретические работы [146,148,151,153] и единственная экспериментальная работа[145]. Интерпретация результатов в [148] основана на применении теории возмущений, И. Прудниковым получено аналитическое решение для динамической дифракции в условиях рентгеноакустического резонанса с использованием четырехвольнового приближения [152]. В недавней работе В. Пунегова [153] в отличие от ранних подходов ультразвуковые колебания в приповерхностной области рассматриваются с учетом Рэлеевской модели распространения приповерхностных волн для трехкристальной схемы дифракции.

Явление рентгеноакустического резонанса тесно связано с эффектом осцилляции интенсивности дифрагированного рентгеновского пучка по глубине дельты Бормана при ультразвуковом воздействии на кристаллическую решетку. Эффект маятниковых осцилляций в зависимости от амплитуды ультразвука был исследован в работах [154], [155].



*Рис. 1.13. Распределение интенсивности волнового поля дифрагированного излучения в треугольнике потока энергии в условиях акустического возбуждения. Отражение Si(220), излучение AgK_{α1}, σ – поляризация, экстинкционная длина τ = 46,94 мкм.
 а) W = 6,21 * 10⁻³ нм, λ_s = 46,95 мкм, б) W = 2,11 * 10⁻³ нм, λ_s = 23,47 мкм.
 (W – амплитуда, λ_s – длина волны ультразвука).*

Экспериментально и теоретически исследованы колебания интегральной интенсивности рентгеновского рефлекса в зависимости от амплитуды ультразвуковой волны, когда её длина меньше экстинкционной.

В работах, выполненных в Институте физики твёрдого тела с применением методов секционной топографии [156-158] проводилось изучение особенности формирования дифракционного контраста при возбуждении поперечной ультразвуковой волны в кристалле. В зависимости от параметров акустической волны (длина волны и амплитуда) исследованы распределения интенсивности деформаций и волновых полей на поверхности и в объеме кристалла. В работах уделено внимание эффекту усиления (фокусировки) дифракционного волнового поля, который проявляется при условии рентгеноакустического резонанса в узкой области центра палатки Бормана.

1.2. Исследование дефектной структуры и пьезоэлектрических характеристик кристаллов в условиях внешних электрических полей с применением рентгенодифракционных методов

Возбуждение ультразвука в кристаллах напрямую связано с приложением электрического поля к кристаллу, статическое электрическое поле способно создавать деформации в кристаллах, обладающих пьезоэлектрической активностью, поэтому исследование воздействия динамического и статического электромагнитного поля на элементарную ячейку, а также на микро и макроструктуру представляется крайне важным для развития альтернативных методов управления рентгеновским излучением, а с другой стороны представляет самостоятельную область с массой фундаментальных и прикладных структурных задач.

Первые работы по изучению поведения кристаллов при наложении электрического поля с применением дифракции рентгеновских лучей появились уже 30-е годы XX века [159-161]. В одной из таких пионерских работ, как для ультразвукового воздействия, так и для электрического поля [160] были проведены исследования по изменению интенсивностей и структуры лауэвских пятен различных пьезоэлектрических кристаллов при наложении на них переменного и постоянного электрического поля. В экспериментах измерялась интенсивность рефлексов, которая при наложении переменного электрического поля увеличивалась.

Исследование кристаллов кварца, слюды и гипса проведено в [161] в условиях приложения постоянного электрического поля. Было изучено изменение дифракционной картины исследуемых образцов, влияние электрического поля на интенсивность и форму рефлексов. В работе показано, что приложение электрического поля к кристаллам приводит к увеличению интенсивности рефлексов на лауэграмме и уменьшению пятна от проходящего пучка в центре. Авторы объясняют обнаруженный эффект увеличением степени совершенства кристаллической структуры под воздействием поля. На рис. 1.14 показаны лауэграммы, полученные в этой

работе. Исследование формы рефлексов позволило изучить диффузию ионов Al (материала электродов) в объем исследуемых кристаллов. Интересным результатом является также изучение рентгеновскими методами способов нанесения электродов на поверхность образцов на основе формы рентгеновских пиков. Первые экспериментальные работы по исследованию пьезоэлектрических свойств рентгенодифракционными методами, к которым относятся и описанные выше научные работы носили качественный характер.

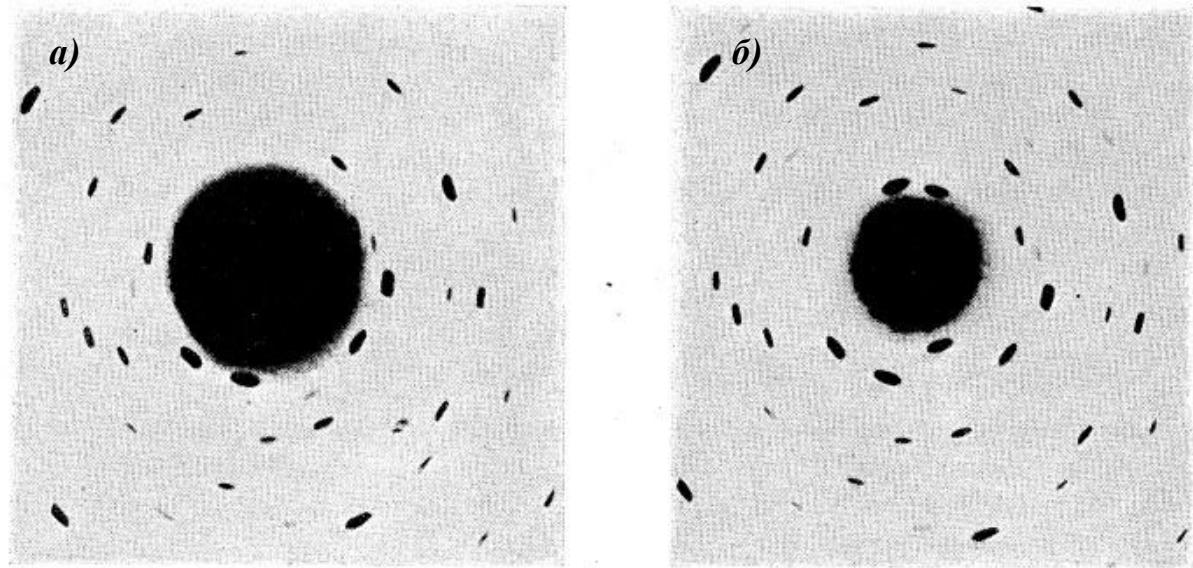


Рис. 1.14. Лауэграммы слюды в отсутствие (а) и при наличии (б) внешнего поля.

Количественные исследования величин пьезомодулей с помощью измерения дифракционных угловых спектров были впервые представлены в [162]. Основой эксперимента служил двухкристальный рентгеновский спектрометр, используемый в работе для измерения малых деформаций, возникающих под воздействием электрического поля в пьезоэлектрических кристаллах. Эксперименты проводились на X-срезе кристаллов а-кварца. Авторами получено значение пьезомодуля $6.94 \cdot 10^{-12}$ м/В, которое хорошо согласуется с результатами, полученными другими методами ранее. Возможность исследования очень маленьких образцов, как отмечено в [162], является принципиальным отличием и преимуществом метода двухкристальной рентгеновской дифракции перед другими, методами

определения пьезомодулей, это даёт уникальную возможность изучать пьезоэлектрические свойства новых материалов, прежде чем отработана технология роста больших кристаллов с высоким совершенством структуры. В процессе эксперимента очень важно постоянство температуры, и немалую роль играет специфика закрепления образов, так, чтобы не создавались внутренние напряжения. Также в работе собраны результаты измерения пьезомодуля d_{11} α -кварца, полученные с применением различных статических и динамических методов с 1880 г.

Опубликованная в 1976 г. работа [163] представляет большой теоретический труд по расчету различных элементов тензора пьезомодулей кристаллов на основе анализа кривых качания различных рентгеновских рефлексов. Представленные в работе аналитические уравнения, позволяют экспериментально определять полный набор пьезоэлектрических констант. В явном виде представлены выражения для продольного и поперечного пьезоэффекта для всех двадцати кристаллических классов, обладающих пьезоэлектрическими свойствами. Для моноклинной, орторомбической, тригональной, гексагональной и кубической систем (19 пьезоэлектрических классов) в явном виде были получены выражения связи изменения угла Брэгга с изменением величины электрического поля через различные пьезокоэффициенты. На примере численного эксперимента с кристаллом симметрии mm^2 показана высокая точность данных уравнений.

В дальнейшем было опубликовано большое количество работ по исследованию пьезоэлектрических свойств кристаллов с помощью измерения сдвигов пиков угловых зависимостей дифракционного отражения для определения изменения параметра кристаллической решётки образца под воздействием электрического поля [164-169]. Кристалл кварца был объектом исследования пьезоэлектрических свойств и в работе [164]. В данной работе авторы выводили исследуемый образец из точного Брэгговского положения и фиксировали угол дифракции на крутом склоне кривой качания. При таких условиях экспериментальная схема становится крайне чувствительной даже к

незначительному сдвигу кривой при воздействии на исследуемый кристалл электрического поля т.к. вызывает достаточно большие изменения интенсивности излучения при малом угловом изменении. В эксперименте при наложении на исследуемый образец электрического поля с разной полярностью изучалось изменение интенсивности рефлекса (4 $\bar{2}0$) (рис. 1.15) В результате проведенных исследований было установлено значение пьезомодуля d_{11} , которое прекрасно согласуется с литературными данными. В работе также отмечено, что метод определения пьезомодулей, основанный на двухкристальной дифрактометрии может быть эффективно применен для измерений в условиях низких и высоких температур, так как при включении внешнего электрического поля интенсивность кривой дифракционного отражения меняется мгновенно.

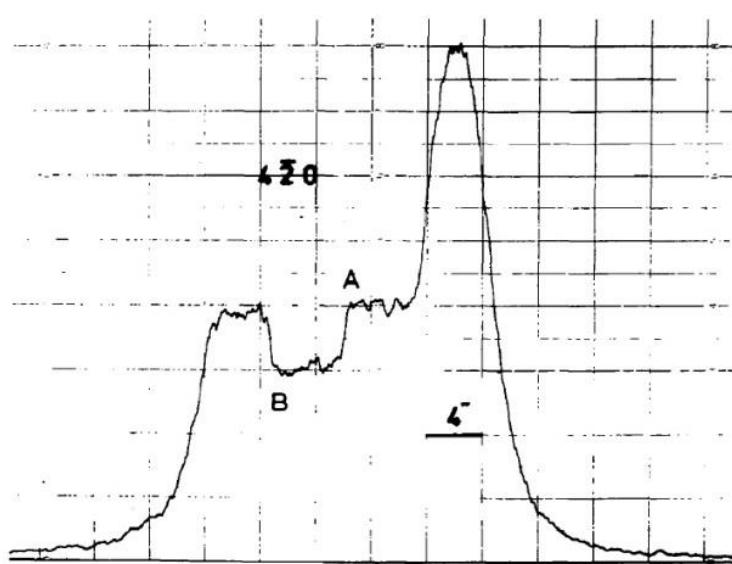


Рис. 1.15. Изменение интенсивности КДО рефлекса (4 $\bar{2}0$) кристалла кварца. Электрическое поле прикладывается в точке А и выключается в точке В при прекращении вращения образца.

Изучению пьезоэлектрических свойств монокристаллов $\alpha\text{-GaPO}_4$ и BiB_3O_6 посвящена целая серия научных работ [165-168], выполненных с использованием методов двухкристальной рентгеновской дифрактометрии. В данных работах изучены изменения как интенсивностей кривых дифракционного отражения, так и их углового положения при воздействием

электрического поля. В результате на основе полученных в эксперименте данных определены величины пьезомодулей исследуемых образцов (рис. 1.16).

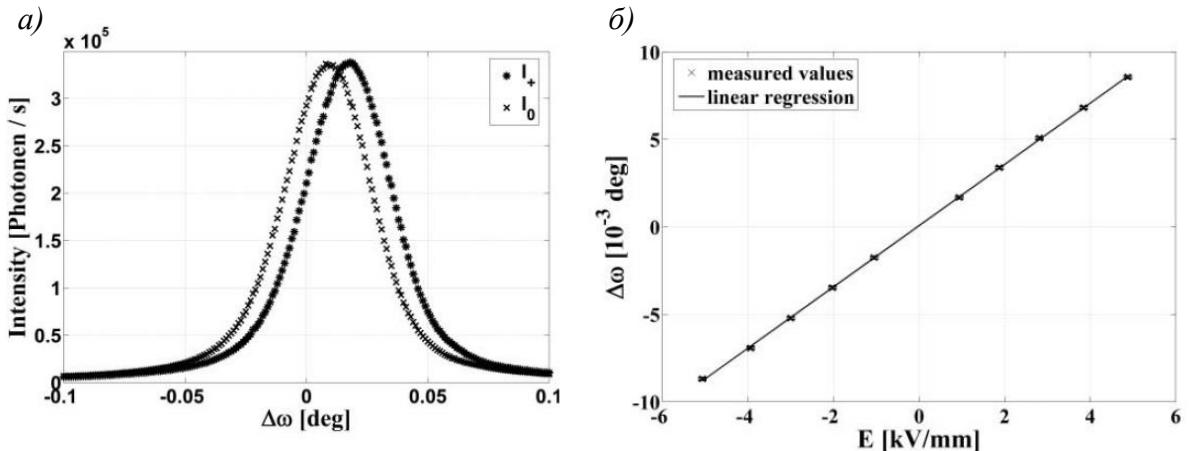


Рис. 1.16. Сдвиг максимума КДО рефлекса (08 $\bar{7}$) кристалла BiB_3O_6 вследствие пьезоэлектрической деформации решетки при наложении электрического поля вдоль кристаллографического направления [010] (а) и зависимость углового сдвига пика КДО рефлекса ($\bar{7}\bar{5}10$) от напряженности приложенного электрического поля (б).

Методы двухкристальной рентгеновской дифрактометрии применялись для исследования пьезоэлектрических свойств не только монокристаллов неорганической природы. В работе [169] качестве объектов исследования были использованы гетероструктуры, в которых были сформированы тонкие пленки пьезокерамики. С использованием синхротронного излучения методом двухкристальной рентгеновской дифрактометрии исследовался кристалл mNA (мета-нитроанилин) – представляющий собой перспективный на то время органический нелинейный оптический материал [170]. На основе экспериментально зарегистрированных угловых сдвигов кривых дифракционного отражения различных рефлексов были рассчитаны все компоненты пьезоэлектрического тензора для данного материала (рис. 1.17).

Таким образом, методы двухкристальной рентгеновской дифрактометрии широко применяются для исследования пьезоэлектрических свойств упорядоченных объектов различной природы. Экспериментальное измерение изменения углового положения максимума кривой качания в

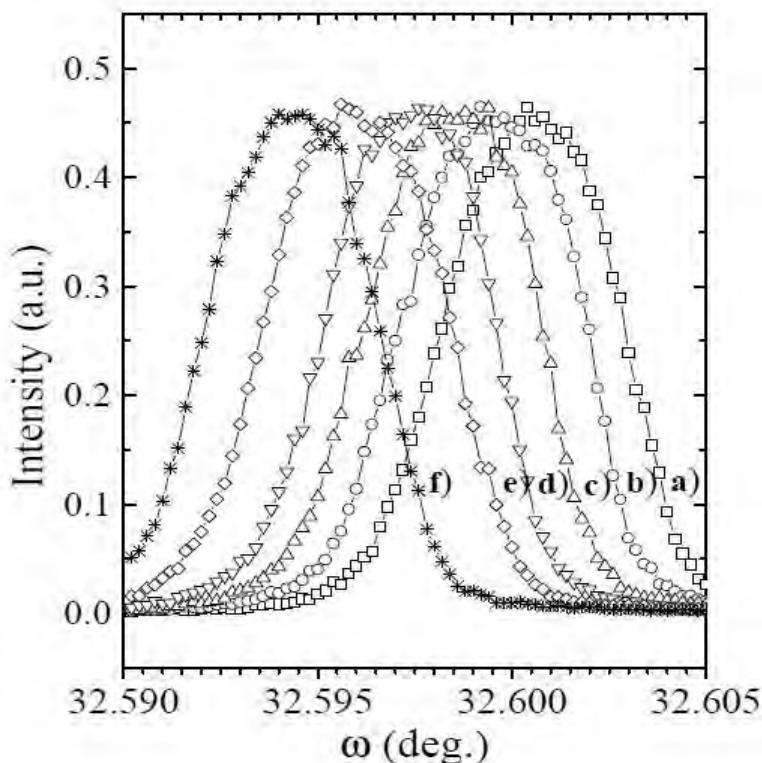


Рис. 1.17. Сдвиг максимума КДО рефлекса (0140) мета-нитроанилина при напряженности электрического поля вдоль оси с кристалла ($B/\text{м}$): a) 0; b) $2 \cdot 10^5$; c) $4 \cdot 10^5$; d) $6 \cdot 10^5$; e) $8 \cdot 10^5$; f) $10 \cdot 10^5$;

условиях наложении электрического поля и соответствующий расчет деформации кристаллической решетки позволяет изучать структурные изменения и определять величины пьезоэлектрических констант. Представленные в обзоре результаты хорошо согласуются (в пределах определённой погрешности) с данными, полученными другими, методами. При следует отметить, что рентгеновские методы, обладающие высоким разрешением и чувствительностью по сравнению с двухкристальной дифрактометрией, такие как метод многоволновой или трехкристальной рентгеновской дифрактометрии, методы картирования обратного пространства практически не применялись для исследования кристаллов в условиях внешних электрических полей.

1.3. Методы исследования дефектной структуры кристаллов в условиях больших ультразвуковых амплитуд

При воздействии на кристаллическую решетку ультразвуковых волн больших амплитуд могут происходить нелинейные изменения кристаллической структуры, связанные с выходом из области линейности закона Гука, переходом кристалла в область пластических деформаций, что может быть связано с появлением дефектов, уменьшением симметрии развитием дислокаций и разрушением образца. В связи с этим методы исследования дефектной структуры кристаллов представляют большой интерес, связанный с важностью их применения на практике для исследования физических свойств материалов, которые работают под нагрузкой. Для исследования дефектной структурой кристаллов в условиях больших амплитуд ультразвука требуются соответствующие методы исследований. Традиционные методы исследований, широко используемые для решения указанных задач в настоящее время, являются методы, в основе которых лежат статические измерения «до» и «после» внешнего воздействия, которые не позволяют получать информацию о самом процессе. Такие методы позволяют изучать только остаточные явления. В качестве примера можно привести метод избирательного химического травления. С помощью подбора для каждого образца специальных химических травителей [171] в эксперименте выявляется тонкая структура кристаллов, в первую очередь неоднородности кристаллической структуры - различные дефекты, дислокации, которые могут быть изучены с помощью оптической, электронной или рентгеновской микроскопии и дифракции. Сравнение данных до воздействия и после позволяет оценить степень влияния больших деформаций на кристалл. Исследование с помощью электронной микроскопии кристаллических пластин [172] позволяет с высокой степенью локальности фактически прямым методом изучать структурные особенности, он высокая локальность затрудняет исследование закономерностей дефектообразования, возникающих на микро и макроуровне. Кроме того, для

электронной микроскопии необходима определенная техническая подготовка образцов, что может приводить к внесению нарушений, не связанных с проводимыми исследованиями.

Таким образом, в настоящее время широко развиты методы, позволяющие исследовать необратимые эффекты, и крайне востребованными являются методы способные зарегистрировать обратимые изменения, которые не видны после прекращения ультразвукового воздействия.

К динамическим нерентгеновским подходам можно отнести поляризационно-оптический метод [173] и метод двухкомпонентного резонансного осциллятора [174,175], который основан на наблюдении за изменением образцов по вольтамперным характеристикам с использовании составного резонатора для возбуждения ультразвука.

Стоячая акустическая волна, создаваемая в исследуемом образце, позволяет достаточно точно контролировать интенсивность ультразвукового воздействия, что дает возможность проводить исследования, начиная с области отсутствия необратимых изменений в образце, до значений, при которых происходит интенсивное размножение дислокаций. Первоначально метод был применен для исследования упругих, затем был развит и использован для изучения вязкоупругих свойств твердых тел [176-179]. Сложная интерпретация получаемых данных и необходимость привлечения дополнительных независимых методов – основные его недостатки. Не смотря на это, данный метод получил широкое распространение, успешно применяется в материаловедении, и на его основе решается масса прикладных научно-технических задач [180,181].

Поляризационно-оптический метод, позволяющий исследовать напряженные состояния, основан на свойствах оптически-прозрачных материалов становиться двулучепреломляющими под действием внешних сил. Можно выделить две разновидности данного метода: метод фотоупругости [173], широко распространённый метод, и менее развитый метод фотопластичности [182]. Исследование пластических эффектов

непосредственно сильно затруднено. И в результате исследуется упругий процесс, который сопровождает пластическую деформацию. С использованием данного метода обнаружено, что кристалл может упрочниться в процессе пластической деформации, и внутренние напряжения перераспределяются и частично компенсируются после снятия внешней нагрузки. Интерференционная картина остаточных напряжений позволяет делать выводы о пластических эффектах. В работе [183,184] в кубических кристаллах типа NaCl проявились полосы двойного лучепреломления, совпадающие с рельефом кристалла, выявленном при травлении. На основе этого был сделан вывод о присутствии задержанных дислокаций.

Для исследования динамики напряженного состояния поляризационно-оптические методы, часто требует использования сложной экспериментальной техники, но главный недостаток – невозможность изучения оптически непрозрачных материалов. Тем не менее, данный метод также имеет широкое применение. Так в работе [185] предложен качественный анализ распределения амплитуды механических напряжений при ультразвуковом воздействии с частотой 10^5 Гц, а в работе [186] результат развит до возможности количественного анализа при высокочастотной вибрации.

Рентгенодифракционные методы относятся к эффективным методам локальных исследований с ангстремным разрешением, при этом они практически не применялись для контроля динамики, в связи с низким временным разрешением.

Применение времяразрешающих рентгеновских методик позволит получать как информация о процессах, происходящих между началом и окончанием ультразвукового воздействия, а также информацию о релаксации кристаллической решетки после окончания воздействия внешней силы. Современные рентгеновские методики в силу инерционности механического управления существенно ограничивают фронт подобных работ, и до

настоящего времени использование рентгеновских методов в исследовании динамики кристаллической структуры в основном имело статический характер. Так, методом двухкристальной рентгеновской дифрактометрии в работе [187] обнаружено значительное увеличение разориентации зерен в кристаллах алюминия, выращенных в присутствии ультразвукового поля по сравнению с кристаллами, выращенными без воздействия ультразвуковых колебаний. В работе [188] на основе анализа результатов исследования, а также экспериментальных условий, заключили, что данный эффект возникает при воздействии ультразвука на закристаллизованную фазу. Также в работе [187] таким же методом в зависимости от температуры исследовано влияние ультразвуковых волн различной амплитуды на структуру дислокаций монокристаллов алюминия. Показано, что при низкой амплитуде ультразвуковые колебания уширяют КДО, и этот результат вполне согласуется с увеличением плотности дислокаций в исследуемых кристаллах. При увеличении интенсивности ультразвука на кривых дифракционного отражения появляются дополнительные максимумы, что может быть трактовано, как появление слабо разориентированных областей внутри кристалла, когерентно рассеивающих рентгеновский пучок. При высоких температурах ультразвуковое воздействие, вызывает появление на кривых качания отдельных пиков, отделенных друг от друга определенным интервалом углов, вполне разделяющихся до уровня фона, что означает образование в монокристалле существенно разориентированных областей. В работах [189,190] исследовались кристаллы меди и наблюдались схожие результаты.

Появления дополнительных дифракционных пиков и размытия кривых дифракционного отражения ставят вопрос о выявлении элементов структуры, ответственных за обнаруженные явления. В работах [191-193] с применением избирательного химического травления было установлено, что при повышенных температурах ультразвуковое воздействие приводит к формированию в плоскостях скольжений скоплений новых дислокаций,

параллельных направлению распространения ультразвуковой волны в исследуемом кристалле. В качестве подтверждения, в работах [191,192] при ультразвуковом воздействии обнаружено расщепление старых субграниц, сформировавшихся еще при росте.

В работе [192] при температурах, близких к комнатной, проведены исследования ультразвукового воздействия на структуру дислокаций алюминиевых монокристаллов. В этом случае метод избирательного травления не применим - ввиду наличия примесей при комнатной температуре дислокации незаметны. Экспериментальные топограммы монокристаллов, подвергнутых воздействию ультразвука имели особый полосчатый контраст, который обусловлен скоплениями дислокаций, сформировавшимся при ультразвуковой обработке. Дислокации были параллельны направлению распространения ультразвуковых волн в кристалле-образце.

В работах [191,192] с использованием метода электронной микроскопии в образцах поликристаллического алюминия были обнаружены ячеистая структура дислокаций и дислокационные диполи. Образцы находились под воздействием ультразвука.

В этой же работе обнаружено, что при воздействии ультразвуком на поликристаллический алюминий, наряду со скоплениями дислокаций, возникает также большое количество призматических петель дислокаций, которые появляются, в основном, при замещении избыточной вакансии. Результаты показывают, что в зависимости от условий ультразвукового воздействия и начального состояния вещества (интенсивность, длительность воздействия, температура), в образце формируется определенная дефектная структура, с такими элементами, как расщепленные по субграницам дислокационные диполи, клубковая и ячеистая дислокационные структуры. Разнообразие кривых дифракционного отражения авторы связывают с различным набором этих дефектов в различных пропорциях.

Применение методов рентгеновской топографии описано предыдущих разделах. В основном проводимые исследования были направлены на изучение особенностей формирования акустического поля, при этом поведению кристаллической структуры при больших амплитудах внимание не уделялось.

Проведенные в работе [194] рентгенодифракционные измерения монокристаллов алюминия, высокой степени чистотой (99,99%), выращенных методом Бриджмена, позволили исследовать дислокационную структуру, формирующуюся при ультразвуковом воздействии при разных температурах. Полученные данные были обработаны с помощью численного анализа азимутального распределения интенсивности рентгеновской дифракции. В результате проведенных экспериментов установлено, что сложность профилей однопиковых дифракционных кривых в начальном состоянии (непосредственно после выращивания) является следствием перераспределения интенсивности рентгеновских пучков, рассеянных несколькими кристаллическими блоками слабо разориентированными относительно друг друга.

В температурном интервале от 50 до 500°С воздействие ультразвука с относительной амплитудой деформации примерно $5 \cdot 10^{-4}$ приводит к существенному росту разориентации между соседними блоками, и отражается расщеплением пиков на кривой дифракционного отражения и увеличении полуширины, что происходит при увеличении плотности дислокаций, где поглощение акустической волны происходит наиболее интенсивно. В [195] показано, что с использованием методов математической обработки кривых дифракционного отражения можно определить количество блоков, непосредственно участвующих в дифракции рентгеновских лучей, а также определить типы распределения разориентации этих блоков.

1.4. Особенности рассеяния рентгеновских лучей в условиях многоволновой дифракции

Теоретические исследования динамической многоволновой дифракции

Общая теория дифракции рентгеновского излучения в монокристалле, построенная Эвальдом [196–198] и Лауз [199], с самого начала формулировалась как теория многолучевой дифракции, а двухволновый случай представлялся как частный случай общей теории.

Впервые систему уравнений Максвелла для решения задачи рассеянию плоской электромагнитной волны рентгеновского диапазона в кристалле на периодической электронной плотности применил Лауз [4, 200]. Для кристаллических структур высокой степени совершенства данный подход описания процессов динамической дифракции является наиболее удобным и строгим.

Случаи двухволновой (а, б) и многоволновой (трехволновой) (в, г) дифракции в прямом (а, в) и обратном (б, г) пространствах показаны на Рис. 1.18.

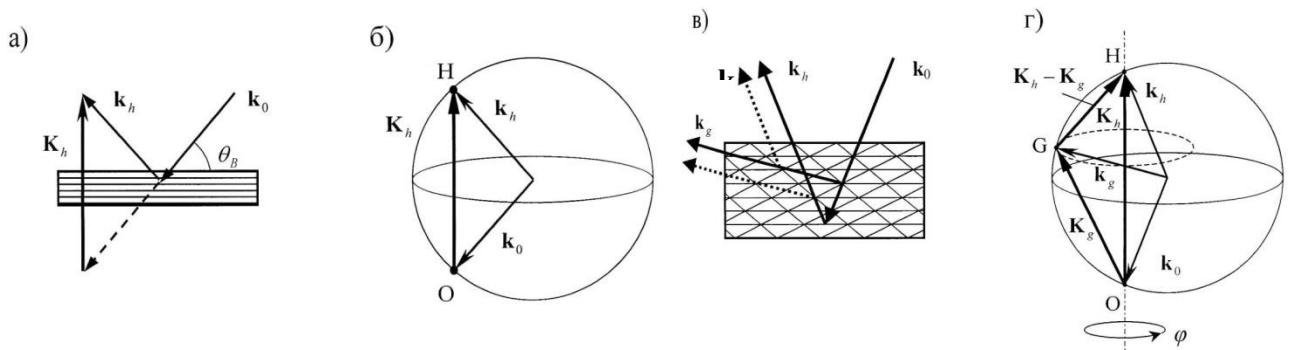


Рис. 1.18. Схематическое представление в прямом (слева) и обратном (справа) пространствах двухволновой (а, б) и многоволновой (трехволновой) (в, г) дифракции рентгеновских лучей.

Отсутствие ЭВМ существенно ограничивало возможности исследования многоволновых взаимодействий на ранних этапах развития теории многоволновой дифракции т.к. получить прямое численное решение задачи не представлялось возможным. Попытки получения аналитического вида уравнения дисперсионной поверхности проводились в первых работах

Эвальда, Пеннинга [201–203], Афанасьева [204] и других авторов. И всё же эта достаточно нетривиальная задача решалась для случая трех- и четырехволновой дифракции. По теории возмущений также пытались учесть и дополнительные отражения. Здесь следует отметить работы Хойера и Мартинсена [205–207]. В этих работах было показана важность учета дополнительного отражения: даже слабое дополнительное отражение, способно воздействовать сильные двухволновые отражения, меняя их параметры.

В последующих работах Колеллы [208], Кона [209] и Чжана [210] представлены алгоритмы численного расчета многоволновой дифракции в геометрии Брэгга для совершенного кристалла. Схема расчета многоволновой дифракции на отражение была развита в последних двух работах, при этом не учитывались зеркально отраженные волны. Теория многоволновой дифракции, разработанная к тому времени, была обобщена для случая многослойной структуры в работе [211]. Получить рекуррентные соотношения позволяли разработанные алгоритмы на основе алгебры матриц, учитывающие Брэгг-Брэгг, Брэгг-Лауэ и Лауэ-Лауэ рассеяние между слоями. В [212] для частного случая симметричных Лауэ-отражений построена теория многоволновой дифракции в условиях полного внешнего отражения, а в [213,214] подробно представлена теория многоволнового взаимодействия.

В дальнейшем теория многоволновой дифракции дополнилась более точными методами численного расчета. Степанов и Ульяненко [215] в 1994 году предложили новую схему расчетов, в которой учет зеркально отраженных волн проводился только для тех пучков, которые распространяются под малым углом к поверхности. Теория Колеллы была пересмотрена в работах Стецко с соавторами, в частности, был сделан более корректно учет зеркально отраженных волн [216 – 222].

Экспериментальное наблюдение и применение многоволновой дифракции

Экспериментальное изучение многоволновой дифракции в дальнейшем показало новые эффекты многоволнового взаимодействия, не наблюдавшиеся в двухволновом случае: усиление аномального прохождения в Лауэ-геометрии, зависимость интенсивности дифрагированных пучков от фазовых инвариантов (фаз структурных амплитуд). Приведенные ниже работы посвящены наблюдению и исследованию этих двух эффектов.

Экспериментальные исследования дифракции с числом отраженных волн больше двух начались на рубеже 30-х 40-х годов [223, 224 – 226]. Изящное экспериментально решение для наблюдения многоволновой дифракции было применено в пионерской работе Реннингера [224] где было обнаружено рассеяние на "запрещённым" отражении (222) в алмазе. Эффект Реннингера заключался в окольном возбуждении, а более точно – в двукратном последовательном отражении падающего пучка на атомных плоскостях определяемых векторами ($\mathbf{h} - \mathbf{g}$) и \mathbf{g} (названных связующим и дополнительным отражением) с в направлении основного (запрещенного) \mathbf{h} отражения, см. Рис. 1.18.

В исследованиях запрещенных отражений в схеме Реннингера [227–229], проводились Баттерманом и соавторами. Изучение запрещенных рефлексов в Ge и Si позволили авторам [230,231] исследовать температурные зависимости структурного фактора слабых запрещенных отражений. В работах удалось разделить ангармоническую составляющую структурного фактора и часть, обусловленную химическими связями.

Как известно в двухволновых экспериментах информация о фазе теряется, – так называемая «фазовая проблема» рентгеноструктурного анализа. В работах [232 - 238] разработаны методы решения фазовой проблемы. В работе [239] отмечено, что многоволновой дифракции обладает фазовой чувствительностью т.к. интенсивности отражений зависят еще и от фаз, отражений, участвующих в многоволновой дифракции (не только от модулей структурных факторов). В этом проявляется отличие от

двуухволновой дифракции. В работах [240–243] были предложены подходы для определения фаз структурных амплитуд, с использованием многоволновой дифракции рентгеновских лучей.

Дифракционная картина при многоволновой дифракции складывается из двух процессов рассеяния: на основной системе плоскостей и последовательных отражений на связующих плоскостях, и т.к. это когерентные процессы, то результат их сложения определяется разностью фаз (триплетной фазой):

$$\Phi_{h,g,(h-g)} = \Phi_h + \Phi_g + \Phi_{(h-g)} \quad (1.12)$$

где Φ_h , Φ_g , $\Phi_{(h-g)}$ – фазы структурных факторов участвующих в дифракции отражений. На кривых дифракционного отражения интерференция прямо дифрагированной и окольно возбужденной волн проявляется в виде характерного профиля изменения интенсивности [244-248]. С применением многоволновых взаимодействий в органических кристаллах [249–251] и в квазикристаллах [252] было проведено прямое восстановление фаз структурных амплитуд.

Учет неупругого когерентного рассеяния рентгеновских лучей на фононах выполнен в работе [253]. Авторами показано, что в условиях многоволновой дифракции этот процесс может изменить структуру наблюдаемой интерференционной картины, и также, как и процесс упругого рассеяния, носит интерференционный характер.

В работе [254] в схеме Реннингера проведено детальное теоретическое и экспериментальное исследование многоволнового взаимодействия с использованием запрещенного рефлекса (222) в кристалле Si. В результате исследований был предложен метод виртуального брэгговского рассеяния (Virtual Bragg Scattering) для прямого определения фаз структурных амплитуд мозаичных кристаллов. Метод заключается в проведении анализа формы "хвостов" реннингеровских пиков в области многоволнового взаимодействия. По своей физической природе рассеяние на опорном (запрещенном) рефлексе является слабым, а ослабление остальных

вовлеченных в рассеяние рефлексов происходит в результате отклонения от точного брэгговского положения.

Метод виртуального брэгговского рассеяния был успешно применен работе [255] для исследования кристалла V_3Si . Экспериментально были определены фазы запрещенных отражений (401) и (315).

В работе [256] теоретически была показана возможность существования вблизи точного многоволнового положения полного отражения при дифракции рентгеновского пучка в запрещенном направлении при отсутствии возбуждения других рефлексов (окольного возбуждения) в схеме Реннингера. Экспериментально эффект полного отражения в запрещенном направлении был продемонстрирован в работах [257,258]. Реализованная экспериментальная схема обеспечивала высокое разрешение по углам в двух взаимно перпендикулярных плоскостях и по энергии. В [256] выделены два совершенно разных механизма рассеяния: амплитудный и резонансный (виртуальный) на основе которых качественно интерпретированы особенности непрямого возбуждения запрещенного отражения. Амплитудный механизм реализуется в угловой области вблизи точного многоволнового положения и определяется суммой амплитуд многоволновых отражений. Резонансный механизм проявляется вдали от многоволновой области, и ответственен за виртуальное брэгговское рассеяние, т.е. может давать существенный вклад даже при малой величине суммы амплитуд дифрагированных волн и зависит от соотношений интенсивности отражений.

Форма хвостов ренningerовских пиков, как показано в [259], линейно связана с фазами триплетных инвариантов отражений, вовлеченных в многоволновое рассеяние, и может быть описана на основе второго борновского приближения. Возможность применения синхротронного излучения с эллиптической поляризацией для определения полярности нецентросимметричных кристаллов экспериментально продемонстрирована в работе [260] на примере $GaAs$, а в работе [261] с использованием

нецентросимметричных кристаллов известной структуры по хвостам реннингеровских кривых показана возможность определения направления и степени поляризации падающего рентгеновского пучка. Работы демонстрируют изменение поляризационных состояний при многоволновой дифракции и связь поляризации с фазами структурных факторов рефлексов, вовлеченных в многоволновое рассеяние.

Многоволновая дифракция происходит с участием нескольких систем атомных плоскостей в кристаллической или многослойной структуре, что позволяет получать информацию об относительной деформации параметра кристаллической решетки одновременно в нескольких направлениях. Кроме того, при тетрагональных (триклинических, моноклинических) искажениях, приводящих к понижению симметрии кристаллической структуры происходит расщепление многоволновых (четрехволновых и более) конфигураций на конфигурации более низких порядков, что позволяет исследователю точно фиксировать такие искажения [262]. Для многослойных систем в ряде случаев возникает явление т.н. гибридной многоволновой дифракции [263-265], характерное возникновением дополнительных отражений, в результате последовательных Брэгг-Лауэ, Лауэ-Брэгг-Лауэ дифракционных отражений в различных слоях многослойной структуры. Гибридная многоволновая дифракция высокочувствительна к тангенциальным составляющим поля смещений относительно границы раздела. В работах [266–268] топографическим методом с использованием псевдокоссельевых проекций проведены первые исследования гетероэпитаксиальных структур, полученных методом жидкокристаллической эпитаксии.

Пленки состава InGaAsP/InP (001), которые были получены также методом жидкокристаллической эпитаксии, изучались в работе [268]. В работах [269, 270] были проведены исследования трехслойных структур на основе индексации и анализа пиков кривых реннингеровского азимутального сканирования.

Прецизионное определение параметров кристаллической решетки - другое, не связанное с фазовой чувствительностью, широко используемое приложение многоволновой дифракции. Многоволновая рентгеновская дифракция для определения параметра решетки впервые была использована Ренningerом.

Азимутальное положение многоволнового ренningerовского дифракционного пика в общем случае зависит от постоянных кристаллической решетки ($a, b, c, \alpha, \beta, \gamma$) и длины волны излучения λ . Подробный анализ точности измерения параметра решетки был проведен в работах [271,272] по угловым расстояниям между многоволновыми ренningerовскими пиками. Было показано, что, в отличие от метода Бонда [273] в котором важны абсолютные значения углов, точность определения параметра решетки методом Реннигера зависит лишь от точности определения длины волны λ , используемой в эксперименте, и азимутального углового расстояние между пиками. Для кристаллов Si, Ge и алмаза с применением метода Реннигера при температуре 25°C были получены значения параметра решетки, точность измерения составила $\sim 2 \times 10^{-6}$.

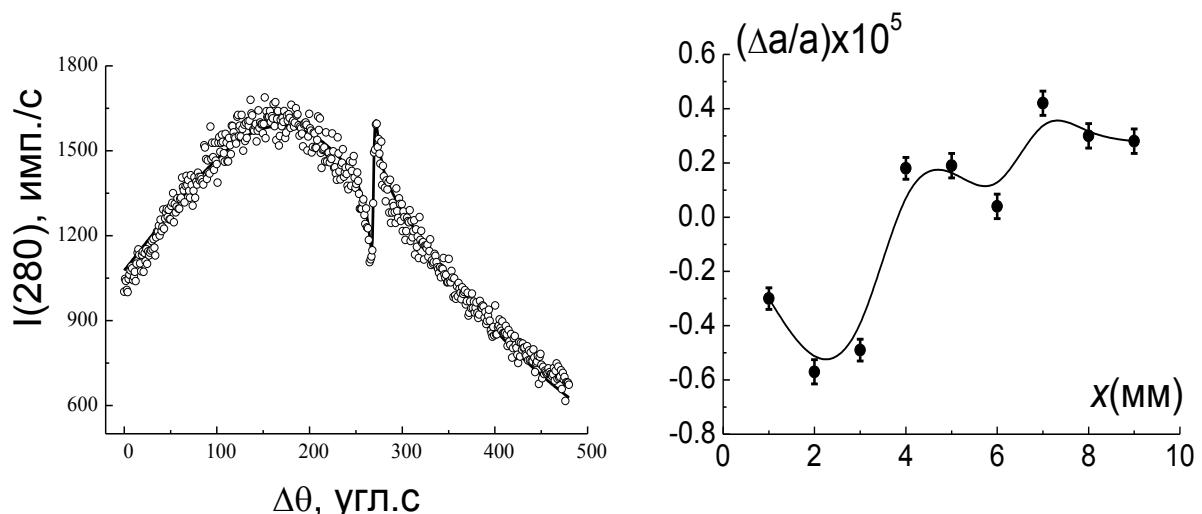


Рис. 1.19. а: КДО для рефлекса (280) KDP (кружки – эксперимент; сплошная кривая – подгонка с помощью метода наименьших квадратов под формулы (10.2), (10.3)). б: Относительное изменение параметра кристаллической решётки KDP вдоль оси x.

В другом методе прецизионного определения параметров решетки – методе, основанном на анализе слабого вторичного отражения [274] достаточно измерить одну кривую и определить угловое расстояние Ψ_0 между максимумом дифракционного отражения и максимумом (минимумом) интерференционной области Рис. 1.19 a ,

Относительное изменение параметра решетки кристалла KDP вдоль оси x , измеренное в работе [274] показано на Рис. 1.19 b . Наблюдается ступенчатое изменение значения параметра решетки $(\Delta a/a)_{\text{экс}}$ может быть объяснено секториальным строением исследуемого кристалла KDP.

Особенно перспективным с точки зрения измерения структурных параметров представляется сочетание многоволновой дифракции с методом стоячих рентгеновских волн, для обеспечения чувствительности в нескольких направлениях, позволяющее проводить двумерную диагностику кристаллической структуры. Подобные эксперименты были проведены в [275–277] несмотря на всю сложность экспериментальной реализации.

В работе [278] показано, что многоволновая дифракция чувствительна к совершенству структуры поверхностных слоев позволяет проводить исследования и без измерения выхода вторичных излучений – в зависимости от отстройки от точного брэгговского положения, можно менять глубину дифракции слабого отражения, и изучать искажения решетки путем послойного анализа приповерхностных областей кристалла.

Описанный подход исследования структуры нарушенных поверхностных слоев был успешно применен экспериментальных работах [279]. С применением совершенных кристаллов в работе [280] были проведены измерения кривых аномальной угловой зависимости.

Для реализации методов в схеме высокого разрешения, основанных на многоволновой дифракции, необходимо иметь коллимированный в двух плоскостях рентгеновский пучок. Это достаточно непростая задача, особенно в лабораторных условиях, когда интенсивность пучка относительно мала. Следует отметить, что встречаются работы, например, [281,282], в которых

анализ деформаций в тонком приповерхностном слое проводился с использованием рентгеновских схем измерения КДО, прецизионных по углу качания, но интегральных по азимутальному углу (т.н. метод полярного сканирования). Несмотря на всю сложность экспериментальной реализации, первая работа по многоволновой дифракции с коллимацией пучка по двум плоскостям была выполнена на рентгеновской трубке [283], но последующие похожие работы, как правило, выполнялись уже на станциях синхротронного излучения. Коллимация падающего пучка выполнялась по классической схеме с применением двух кристаллов монохроматоров, установленных на гoniометрах взаимно перпендикулярно [284,285], либо использовались щели, установленные на значительном расстоянии друг от друга.

В лабораторных условиях использование компланарной геометрии многоволновой дифракции является одним из эффективных решений проблемы низкой интенсивности в схеме высокоразрешающей дифрактометрии. Исследования многоволновой дифракции в компланарной схеме проведены с использованием лабораторного источника рентгеновского излучения (рентгеновской трубки) в работах [274, 286, 287], в частности с целью определения фаз структурных амплитуд для кристалла KDP.

С другой стороны, использование самого эффекта многоволновой дифракции открывает широкие возможности для двумерной коллимации рентгеновского пучка. В частности, в работе [288] был применен подход по двумерной коллимации рентгеновского пучка, предложенный ранее в работе [289] для управления нейтронными пучками. Метод основан на малой ширине пика окольного возбуждения, которая составляет несколько угловых секунд и определяется областью сильного многоволнового взаимодействия. Таким образом, при установке кристалла-монохроматора в положение, соответствующее дифракции в условиях окольного возбуждения, можно сформировать пучок с расходностью, составляющей несколько угловых секунд в двух взаимно перпендикулярных направлениях.

Усиление аномального прохождения Лауэ-пучков в условиях многоволновой дифракции, как упоминалось в начале настоящего раздела, является вторым новым эффектом, не наблюдаемым в двухволновом случае. Наблюдаемый только в многоволновой схеме эффект аномального прохождения Лауэ - пучков также позволяет формировать рентгеновские пучки с малой угловой и спектральной расходимостью. Впервые эффект был обнаружен экспериментально Борманом и Хартвигом в 1965 году [290]. В 1967 вышла статья [291], в которой её авторы Джоко и Фукухара представили для симметричного случая 3-х, 4-х и 6-ти-волновой дифракции решение задачи при точном выполнении условий Брэгга, в частности было показано, уменьшение коэффициента поглощения для всех случаев. Проведенные несколько позже теоретические расчеты [292–297], дополненные экспериментальными исследованиями, эффекта Бормана методами рентгеновской топографии для в трех- [298,299], четырех- [300], и шестиволновых [301,302] случаев, продемонстрировали широкие перспективы использования техники коллимации высокоинтенсивных пучков СИ с применением многоволновых эффектов при аномальном прохождении рентгеновских лучей. В работе [303] с использованием СИ реализована симметричная рентгенооптическая схема шестиволновой Лауэ-дифракции с применением толстого кристалла-монохроматора Si, установленного в схеме четырехволновой дифракции в геометрии Лауэ (Рис. 1.20). В эксперименте были проведены прецизионные измерения минимального коэффициента поглощения и проанализирован выход фотоэлектронов в условиях трехволновой дифракции [304].

Возможности получения пучков рентгеновского излучения с заранее заданными свойствами в схеме случайной четырехволновой дифракции [305] с применение последовательных отражений в компланарной [306], некомпланарной [307] продемонстрированы авторами работ [304-307]. Широкое применение подобных схем и создание на их основе эффективных рентгеновских монохроматоров и коллиматоров в первую очередь

ограничивается их применимостью и работоспособностью только для строго фиксированной длины волны.

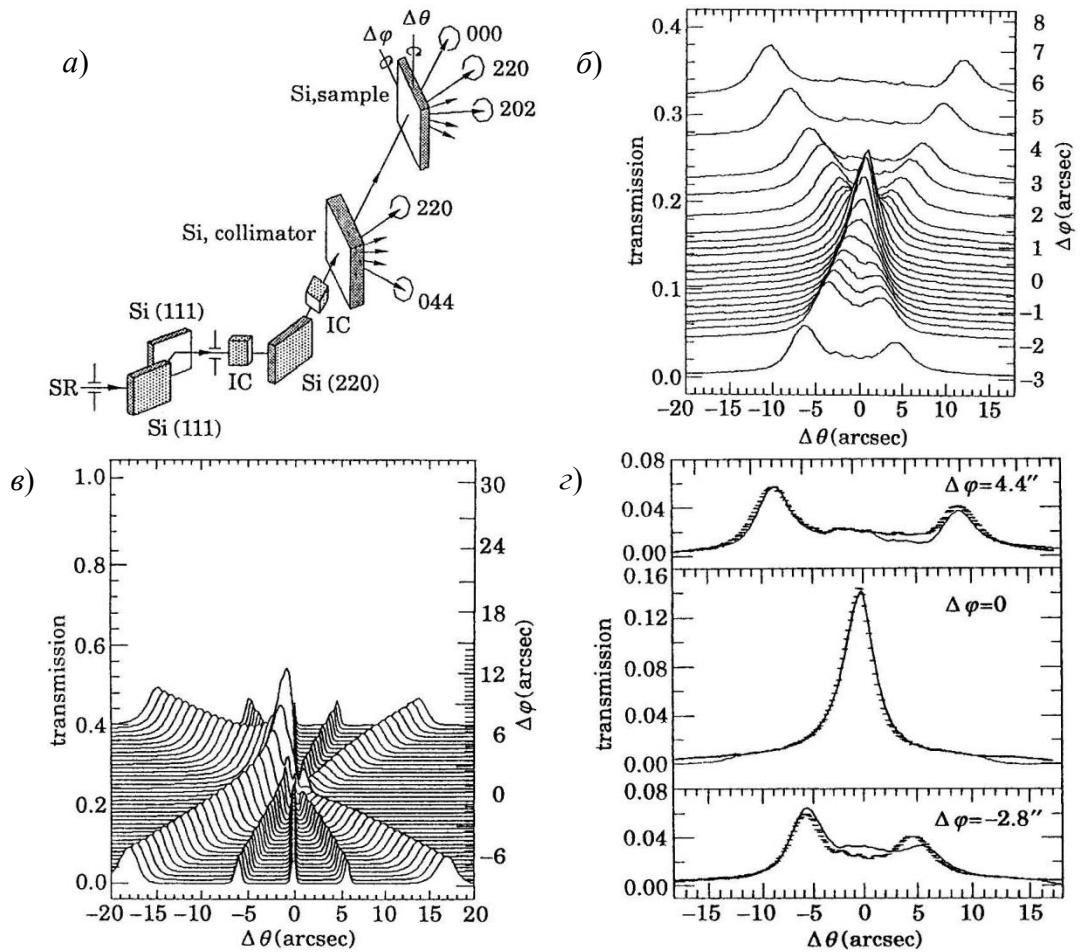


Рис. 1.20. а) – Экспериментальная схема для исследования аномального прохождения в условиях шестиволновой Лауэ-дифракции; б) – Экспериментальное двумерное ($\Delta\theta$, $\Delta\varphi$) распределение коэффициента прохождения в условиях шестиволновой дифракции. $\Delta\theta$, $\Delta\varphi$ – отстройки по полярному и азимутальному углам, соответственно; в) – Теоретическое двумерное ($\Delta\theta$, $\Delta\varphi$) распределение коэффициента прохождения σ -поляризованной плоской волны в условиях шестиволновой дифракции; г) – Сравнение экспериментальных (штриховые) и теоретических (сплошные линии) кривых коэффициента прохождения с учетом двумерной свертки ($\Delta\varphi = -2.8; 0; 4.4$).

1.5. Выводы к главе 1

Проведенный анализ рассмотренных выше литературных данных показывает, что рентгеноакустические взаимодействия являются эффективным способом воздействия на параметры дифракции рентгеновского излучения, и к настоящему накоплен достаточно богатый экспериментальный и теоретический опыт в этой области. Несмотря на это, эффективное управление основными параметрами рентгеновского пучка, такими длина волны и пространственное (угловое) положение на основе рентгеноакустических взаимодействий пока еще не реализовано. Развитие методов ультразвукового управления рентгеновских пучком проводилось в основном области модуляции и управления его интенсивностью с применением высоких и средних частот ультразвуковых колебаний. И проведенный анализ показывает, что наряду с широкими возможностями высокочастотных ультразвуковых колебаний, случай низкочастотного ультразвука особенно интересен для практических приложений по управлению рентгеновским экспериментом. При возбуждении ультразвука низкой частоты – длинноволнового ультразвука можно воздействовать на дифракцию аналогично механическому повороту или изгибу, но с явным потенциалом получения временного разрешения в отличие от медленной механики. Применяемое в настоящее время механическое управление, основанное на перемещении или повороте рентгенооптических элементов, накладывает существенные ограничения на быстродействие рентгеновских методов.

Рентгеноакустическое управление рентгеновским пучком (угловым и пространственным положением, длиной волны и фокусировкой) позволит существенно расширить возможности рентгеновского эксперимента на основе быстрой немеханической перестройки параметров рентгенооптической схемы. Рентгеноакустические методы управления рентгеновским могут стать экспериментальной основой структурных исследований динамических

объектов и быстропротекающих процессов в условиях наблюдения за структурной динамикой с разрешением по времени.

В настоящее время наблюдения за структурными изменениями кристаллов (в первую очередь изменение дефектной структуры) с применением рентгеновской дифрактометрии в условиях интенсивных внешних воздействия, вибрационных и других нагрузок проводятся в режиме измерения статических объектов «до» и «после» воздействия, при этом кинетика самого процесса перестройки структуры остается «за кадром». Применение рентгеноакустических методов с одной стороны позволит воздействовать на кристаллическую структуру, а с другой стороны позволит получать дифракционные картины с временным разрешением, то есть перейти от статического эксперимента к динамическому.

Разработка рентгенодифракционных методов изучения внешних воздействий на конденсированные среды наряду с развитием области управляемой ультразвуком рентгеновской оптики также требует развития методов исследования дефектной структуры и пьезоэлектрических свойств кристаллов, перспективных для создания элементов рентгеновской оптики, развитию *In situ* методов изучения влияния электрического и ультразвукового поля на дефектную структуру.

Метод двухкристальной дифрактометрии широко применяется для исследования пьезоэлектрических свойств различных объектов. Двухкристальная методика позволяет измерять деформации кристаллической решетки приложении электрического поля, позволяет определять значения физических характеристик, такие как пьезоэлектрические и электромеханические константы. При этом следует отметить, что широкие перспективы прецизионных рентгенодифракционных методик, таких как многоволновая дифракция и трехкристальная дифрактометрия, которые практически не применялись для исследования кристаллов в условиях внешних электрических полей и ультразвукового воздействия.

Анализ работ в области многоволновой дифракции показывает принципиальную возможность создания трехмерного фазочувствительного метода исследования дефектной структуры кристаллов, в том числе и в условиях внешних воздействий, на основе комбинации методов высокоразрешающей дифрактометрии и многоволновой дифракции. Однако реализация такого подхода требует учета всех особенностей многоволнового рассеяния в высокоразрешающей схеме дифракции, особенно эффектов, возникающих при амплитудном и резонансном взаимодействии, т.к. они приводят к существенным изменениям углового распределения интенсивности дифракции.

Практическое применение многоволновой дифракции в лабораторных условиях в схеме высокого разрешения для изучения деформаций кристаллической решётки и распределения напряжений в кристаллических изделиях затронуло главным образом кристаллы кубической симметрии (Si, Ge и т.д.). В связи с этим, также представляется важным развитие указанных методов количественной оценки структурных параметров для изучения кристаллов более низких симметрий.

Глава 2. Развитие аппаратурно-методических подходов для исследования конденсированных сред в условиях динамических воздействий методами рентгеновской дифрактометрии

2.1. Используемые в работе рентгеновские дифрактометры

Для проведения рентгеновских экспериментов в работе были задействованы два рентгеновских дифрактометра: ТРС (Трехкристальный рентгеновский спектрометр) и SmartLab (Rigaku). Дифрактометр ТРС представляет собой универсальную и очень гибкую экспериментальную измерительную платформу. Основное достоинство данного прибора заключается в возможности прямого доступа ко всем механическим, электромеханическим и детектирующим системам с возможностью полной замены или подключения дополнительных устройств, что позволяет сравнительно легко переконфигурировать прибор, дополнить его вспомогательным оборудованием – ультразвуковым, электрическим, рентгенофлуоресцентным, механическим и т.д. Тракт регистрации тоже выполнен по открытой схеме и имеется возможность получения как аналогового сигнала непосредственно с детектора так и цифрового, предварительно обработанного с применением пороговых электронных ограничителей сигнала, позволяющих избавится от шумов и фона т.е. сделать максимально полезным сигналы, получаемые с электронного фотоумножителя детектора. В первом случае необходимо провести усиление и дискриминацию (пороговое ограничение) сигнала. Подавляющее большинство экспериментальных задач, в особенности по разработке и реализации новых методов были выполнены именно с применением возможностей ТРС. В отличие от ТРС дифрактометр SmartLab создан по закрытой архитектуре, у него полностью отсутствуют ручные подвижки, имеется строго ограниченный набор монохроматоров. Получить доступ к данным с детектора (передать сигналы другой аппаратуре) невозможно по техническим причинам, но с другой стороны это высокоточный прибор,

снабженный трубкой с вращающимся анодом и охватывающий практически все дифракционные методы. Полная автоматизация Smart Lab здесь играет исключительно положительную роль. В работе данный прибор эффективно применялся для реализации стандартных рентгенодифракционных экспериментов, требующих высокой интенсивности пучка и связанных с набором большого количества данных.

Рентгеновский дифрактометр ТРС

Трехкристальный рентгеновский спектрометр (ТРС), разработанный в СКБ Института кристаллографии АН СССР представляет собой универсальную исследовательскую установку (рис. 2.1) архитектура которой собрана по модульной системе и допускает существенную реконфигурацию.

Конструкция ТРС допускает возможности использования как одного, так и двух независимых монохроматоров, реализацию различных рентгенооптических схем (двухосевой и трехосевой схем в параллельной, непараллельной и антипараллельной геометрии) и выбор рентгеновских отражений от кристаллов в диапазоне двойных углов Брэгга вплоть до 160°. Важно отметить, что при использовании двух монохроматоров реализуется только параллельная и непараллельная схема.

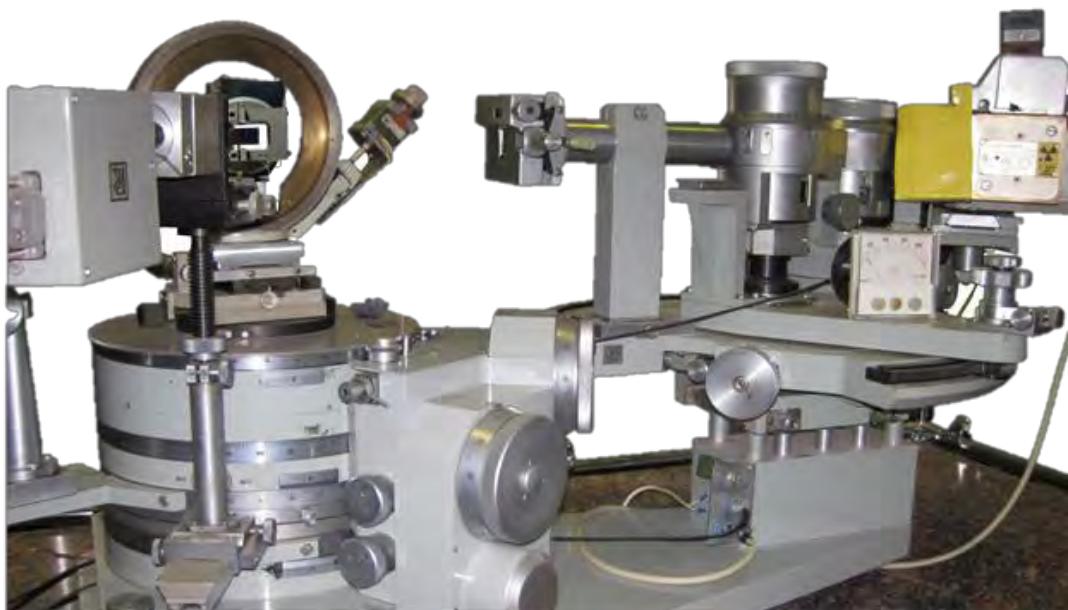


Рис.2.1 Общий вид механической части дифрактометра ТРС.

Данный прибор можно функционально разделить на несколько блоков (рис. 2.2):

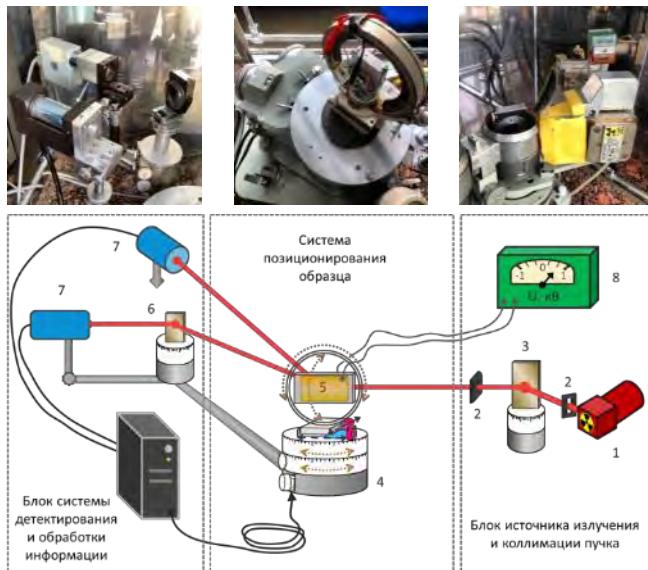


Рис. 2.2 Принципиальная схема дифрактометра ТРС.

(1 – рентгеновская трубка, 2 – коллимирующие щели, 3 – монохроматор, 4 – гониометр, 5 – образец, 6 – кристалл-анализатор, 7 – детекторы, 8 – высоковольтный источник напряжения, 9 – управляющий компьютер)

Блок источника излучения и формирования рентгеновского пучка, в состав которого входит рентгеновская трубка, монохроматор (как правило, высококачественный монокристалл *Si* или *Ge*) и система щелевых коллиматоров.

Система прецизионного позиционирования образца, детекторов, блока анализатора, которая представляет собой многокружный гониометр (набор гониометрических колец и подвижек для поворота и перемещения столика с образцом, детекторами и третьего кристалла).

Гониометрическая система анализатора с установленным на ней кристаллом-анализатором обеспечивает как поступательное, так и вращательное движение последнего.

Блок системы детектирования, включающий до двух сцинтилляционных *NaI* детекторов (второй используется при реализации квазимноговолновой схемы, анализатор в этом случае отсутствует) и систему сопряжения с компьютером и анализа регистрируемого сигнала.

Рентгеновский дифрактометр SmartLab

Рентгеновский дифрактометр SmartLab (Rigaku, Япония), изображённый на рис. 2.3, представляет собой многофункциональную экспериментальную установку, позволяющую реализовывать широкий спектр задач по исследованию структуры образцов, охватывающий большинство актуальных рентгеновских методик. В сочетании с программным комплексом SmartLab Guidance, внедряющим интеллектуальные специализированные протоколы во все типы экспериментов, стало возможным получать высококачественные результаты анализа с минимумом затрат на предварительную подготовку экспериментов. SmartLab с его полной автоматизацией реализованных методов и возможностью создания собственных алгоритмов проведения экспериментов стал залогом максимальной производительности и продуктивности.

Дифрактометр SmartLab Rigaku может эффективно использоваться в исследованиях следующих типов образцов: органические и неорганические кристаллы, наноразмерные структуры, подложки, поликристаллические (порошковые) материалы, текстуры, многослойные и многокомпонентные планарные системы, тонкие пленки и т.д.



Рис. 2.3. Рентгеновский дифрактометр SmartLab RIGAKU

Технические характеристики дифрактометра SmartLab Rigaku:

В качестве источника рентгеновского излучения выступает источник с вращающимся анодом, максимальная мощность которого составляет 9 кВт.

Имеется возможность установки анодов из двух различных материалов: медного и молибденового, длина волны используемого рентгеновского излучения для которых равна 1.54 и 0.71 ангстрема, соответственно. Размер фокуса при любом используемом аноде равен 0.4×8 мм².

SmartLab оснащен особым техническим решением Rigaku, многослойными рентгеновскими зеркалами «Cross Beam Optics» (СВО). Собранная в одном узле СВО оптика открывает возможность одновременного использования двух схем фокусировки: расходящегося (по Брэггу-Брентано) и параллельного пучка. При параллельном пучке имеется возможность использования двукратных и четырехкратных (220) германиевых монохроматоров. В состав блока формирования падающего пучка входят автоматические (вертикальные) и шаблонные (горизонтальные, лимитирующие) щели, обеспечивающие размер облучаемой области образца в соответствии с исследовательской задачей.

Конструкция гoniометра дифрактометра позволяет использовать горизонтальное расположение образца, плоскость дифракции в большей части экспериментов вертикальна. Имеется возможность независимо или синхронизировано (в зависимости от целей эксперимента) изменять угол падения излучения на образец θ_s и угол детектирования θ_D с минимальным шагом 0.0001°. Вращающийся вокруг вертикальной оси блок детектирования позволяет проводить эксперименты с плоскостью дифракции (или рассеяния), отличной от вертикальной. Имеется возможность вращать образец вокруг нормали к поверхности (ось φ) и наклонять ее (ось χ). Использование специализированных модулей крепления образца позволяет изменять область засветки образца и отстраиваться от нормали к поверхности образца, делая возможным вращение не вокруг нее, а вокруг, к примеру, вектора дифракции конкретного рефлекса.

В блок детектирования входят автоматические вертикальные приемные щели (RS1 и RS2), ограничивающие приемную апертуру детектора; щели Соллера, ограничивающие угловую расходимость детектируемого

излучения; имеется возможность установки двукратного Ge(220) анализатора; также имеются автоматизированные аттенюаторы (ослабители), позволяющие использовать один детектор в широком диапазоне интенсивностей (от единиц до 10^8 импульсов в секунду).

В зависимости от задачи могут использоваться различные детекторы. Для этого в состав установки входят сцинтилляционный NaI детектор, двумерный CCD детектор с активной площадью $70 \times 70 \text{ mm}^2$ и энергодисперсионный флуоресцентный детектор.

Для задач, связанных с исследованием образцов при различных температурах, имеется нагревательная приставка Anton Paar DHS 1100, позволяющая нагревать изучаемые объекты до 1100°C в контролируемой атмосфере.

Расположение узлов на дифрактометре показано на рис. 2.4. Стоит отметить, что все перечисленные элементы оптики либо универсальны для

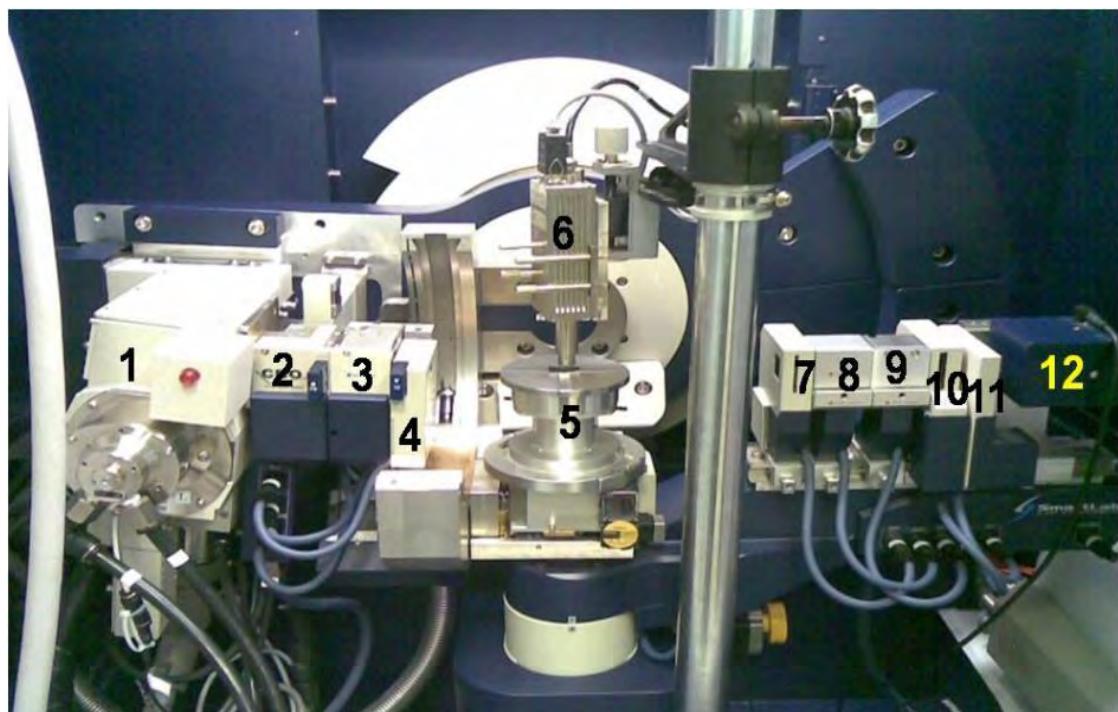


Рис. 2.4. Фотография гониометра рентгеновского дифрактометра SmartLab (ИК РАН) с установленным энергодисперсионным детектором.

Обозначения: 1 – рентгеновская трубка с врачающимся анодом; 2 – фокусирующее зеркало; 3 – блок монохроматоров; 4, 7 и 11 – щели; 5 – столик образца; 6 – энергодисперсионный детектор; 8 и 9 – щели Соллера; 10 – блок аттенюаторов; 12 – сцинтилляционный детектор.

обоих используемых излучений, либо есть специальные элементы для каждого из них, что делает эту установку уникальной в своем роде. На рис. 2.5 представлена полная рентгенооптическая схема дифрактометра.

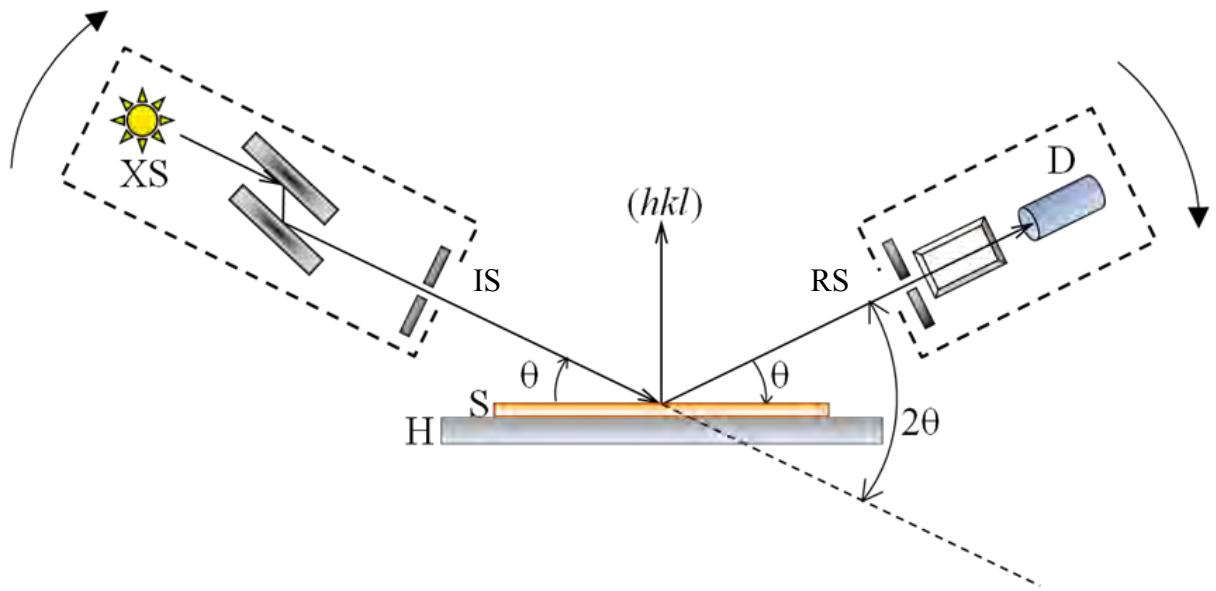


Рис. 2.5. Схема регистрации КДО и двойного брэгговского угла (2θ). XS – источник рентгеновского излучения, D – детектор, S – исследуемый образец, H – держатель образца (столик), (hkl) – индексы Миллера, соответственно регистрируемому отражению.

2.2. Особенности 2x-кристальных рентгенооптических схем. Следствия динамической теории. Расчет кривых дифракционного отражения

Расчеты 2-х кристальной кривой дифракционного отражения с учетом аппаратной функции

Согласно [308-310] в классической двухкристальной бездисперсионной схеме дифракции рентгеновский лучей кривая дифракционного отражения (КДО) представляет собой узкий пик, полуширина которого несколько превышает полуширину «собственной» (дарвиновской) кривой дифракционного отражения, как образца, так и кристалла-монохроматора.

Аппаратная функция дифрактометра может оказывать существенное влияния на форму измеряемых КДО. Так, расчет кривых, проведенный в [311] с учетом спектрального распределения излучения рентгеновской трубы и угловой расходимости падающего рентгеновского пучка за счет конечных размеров щелей коллиматоров (которые необходимы для монохроматизации и выделения основной характеристической линии), показал появление на КДО дополнительного максимума, соответствующего отражению второй линии характеристического излучения.

Метод двухкристальной рентгеновской дифрактометрии [308,312-313] в данной работе активно применяется как прецизионный инструмент для исследования различных кристаллических материалов (степени совершенства кристаллической структуры, внутренних и внешних напряжений и деформаций). Высокая чувствительность данного метода при относительно невысокой монохроматизации достигается в результате измерения кривой в так называемой квазибездисперсионной схеме, позволяющей не учитывать влияние дисперсии рентгеновского излучения. В этой схеме кристаллические пластины исследуемого образца и монохроматора располагаются параллельно друг к другу, их материал и отражения подбираются таким образом, чтобы значения углов Брэгга (и, соответственно, межплоскостных расстояний) выбранных для дифракции

рефлексов были очень близки друг другу или равны. При таких условиях удается использовать интенсивность падающего рентгеновского пучка, сформированного монохроматором и щелевым коллиматором, в пределах всей его спектральной ширины. Т.е. с точки зрения падающего пучка рентгеновского излучения снимаются жесткие ограничения, связанные с влиянием его спектральной расходимости на полуширину кривой.

Бездисперсионные КДО, в общем случае, представляют собой свертку собственных кривых дифракционного отражения монохроматора, образца, $P_h^{(\eta)}(\vartheta + \theta, \lambda)$ и $P_M^{(\eta)}(\vartheta, \lambda)$, и функций, которые описывают спектр и угловую расходимость падающего рентгеновского излучения:

$$(g_s(\theta) \text{ и } g_\lambda(\lambda) (\int d\theta g_s(\theta) = 1, \int d\lambda g_\lambda(\lambda) = 1)).$$

Для двухкристальной бездисперсионной схемы после последовательного двукратного отражения образцом и монохроматором угловое распределение $P_D^{(\eta)}(\vartheta)$, попадающего в детектор рентгеновского пучка, следующий имеет вид:

$$P_D^{(\eta)}(\vartheta) = \int d\lambda g_\lambda(\lambda) \int d\theta g_s(\theta) P_M^{(\eta)} \left(\theta - \frac{\lambda - \lambda_1}{\lambda_1} \tan \Theta_B \right) P_h^{(\eta)} \left(\vartheta + \theta - \frac{\lambda - \lambda_1}{\lambda_1} \tan \Theta_B \right), \quad (2.1)$$

где ϑ – отстройка образца по углу от точного Брэгговского положения Θ_B для выбранного рефлекса, соответствующего длине волны λ_1 падающего пучка; η – поляризация падающего излучения, $\eta = \sigma, \pi$; [313, 314].

Расчет угловых зависимостей коэффициентов отражения для кристалла-монохроматора $P_M^{(\eta)}(\theta)$ и кристалла-образца $P_h^{(\eta)}(\theta)$, используемых в данной формуле, проводится в соответствии с уравнениями динамической теории [314].

Для трубы с молибденовым анодом в соответствии с экспериментальной схемой, спектр падающего на исследуемый кристалл характеристического излучения имеет два пика, соответствующих двум рентгеновским характеристическим линиям α_1 и α_2 , длины волн которых имеют значения λ_1 и λ_2 . Линии разнесены с помощью монохроматора на

некоторое расстояние $\left| \frac{\Delta\lambda}{\lambda_1} \operatorname{tg}\Theta_B \right|$, намного превышающее угловую полуширину выбранного рефлекса $\Delta\Theta_{B,1/2}$, соответствующего λ_1 (здесь $\Delta\lambda = \lambda_2 - \lambda_1$).

Следует отметить, что если для функции распределения падающего излучения $g_s(\theta)$ и $g_\lambda(\lambda)$ эффективная область углов $\Delta\theta_{\text{eff}}$ значительно

превышает область значений спектральной функции $g_\lambda(\lambda)$: $\Delta\theta_{\text{eff}} >> \left| \frac{\Delta\lambda}{\lambda_1} \operatorname{tg}\Theta_B \right|$, то

выражение (2.1) для двухкристальной КДО существенно упрощается и записывается в виде простого однократного интеграла по θ для бездисперсионной кривой дифракционного отражения.

В случае, когда величины $\Delta\theta_{\text{eff}}$ и $\left| \frac{\Delta\lambda}{\lambda_1} \operatorname{tg}\Theta_B \right|$ сравнимы по порядку значения,

моделирование экспериментальных двухкристальных кривых заключается в проведение расчетов с использованием точной формулы (2.1). При этом надо учитывать угловые распределения $g_\lambda(\lambda)$ и $g_s(\theta)$, которые определяются типом рентгеновской трубки, т.е. материалом анода (а для источника синхротронного излучения - спектральной функцией), размером фокуса рентгеновского источника, а также геометрией рентгенооптической схемы и размерами щелей коллиматоров.

В случае стандартной рентгеновской трубки (без учета тормозного излучения по причине его малой интенсивности по сравнению с характеристическими спектральными линиями) спектральная функция $g_\lambda(\lambda)$ представляет собой суперпозицию двух пиков, представляющих собой линий характеристического излучения, а именно:

$$g_\lambda(\lambda) = \frac{2}{3\pi} \left\{ \frac{\delta\lambda_1}{(\lambda - \lambda_1)^2 + (\delta\lambda_1)^2} + 0.5 \frac{\delta\lambda_2}{(\lambda - \lambda_2)^2 + (\delta\lambda_2)^2} \right\}, \quad (2.2)$$

где для трубы с анодом из молибдена $\frac{\delta\lambda_1}{\lambda_1} \approx \frac{\delta\lambda_2}{\lambda_2} = 3 \cdot 10^{-4}$ и $\frac{\Delta\lambda}{\lambda_1} = 6 \cdot 10^{-3}$,

При численном расчете КДО по формуле (2.1), для определения спектрального распределения рентгеновского характеристического

излучения использовалось выражение (2.2). Для расчета расходимости рентгенооптической схемы по углу $g_s(\theta)$ был использован подход, описанный в [311]. Рассматривается линейный фокус рентгеновской трубы с полушириной раной $2\sigma_x$. Источник излучения представлен в виде совокупности точечных источников, расположенных вдоль фокуса, т.е. вдоль направления, перпендикулярного оси поворота монохроматора. Размеры щелей коллиматоров S_1 и S_2 (для примера, $S_1=S_2=S$) определяют эффективную $\Delta\theta_{eff}$ область углов падения. В этом случае для функции угловой расходимости $g_s(\theta)$ справедливо выражение:

$$g_s(\theta) = \frac{1}{\int d\theta \int_{x_1(\theta)}^{x_2(\theta)} dx e^{-x^2}} \int_{x_1(\theta)}^{x_2(\theta)} dx e^{-x^2} \quad (2.3a)$$

расчет пределов интегрирования для данного выражения имеет вид [311]:

$$\begin{aligned} x_1(\theta) &= -\frac{S/2 + |\theta|l_{1x}}{\sqrt{2}\sigma_x}, & x_2(\theta) &= \frac{S/2 - |\theta|l_{2x}}{\sqrt{2}\sigma_x}, \\ -\frac{\Delta\theta_{eff}}{2} < \theta &< \frac{\Delta\theta_{eff}}{2}, & \Delta\theta_{eff} &= \frac{2S}{l_{12}} \end{aligned} \quad (2.3b)$$

а l_1 , l_2 – расстояние между рентгеновской трубкой и щелями и l_{12} – между щелями.

Рис. 2.6 Функция углового распределения для различных значений ширины щелей коллиматора (мкм): а) 50, б) 100, в) 200, г) 300.

Расстояния от трубы до щелей и между ними l_1 , l_2 и l_{12} равны 0.54, 0.99 и 0.45 м, соответственно. Расчет по формулам (2.3.)

Функции угловой расходимости $g_s(\theta)$, рассчитанные с использованием выражений (2.3) для различных ширин колирующих щелей $S_1=S_2$ (50, 100, 200 и 300 мкм) приведены на рис. 2.6. Расстояния между трубкой и щелями l_1 , l_2 и расстояние между щелями l_{12} соответствовали расстояниям экспериментальной схемы дифрактометра ТРС и равны 0.54, 0.99 и 0.45 м, соответственно, а значения эффективной области углов падения $\Delta\theta_{eff} = \frac{2S}{l_{12}}$ для выбранных щелей равны: $2.22 \cdot 10^{-4}$, $4.44 \cdot 10^{-4}$, $8.88 \cdot 10^{-4}$, $11.10 \cdot 10^{-4}$.

Выражения (2.1)-(2.3) полностью описывают последовательное двукратное отражение характеристической линии рентгеновской трубы (для двухкристальной бездисперсионной схемы). Их можно использовать для численных расчетов, моделирования и анализа экспериментальных двухкристальных кривых дифракционного отражения.

Для случая, когда, что $K_{\alpha 1}$ - и $K_{\alpha 2}$ -линии представляют собой достаточно узкие линии (т.е. при пересчете в угловую шкалу в соответствии с выбранным рефлексом их полуширины меньше или порядка $\Delta\Theta_{B,1/2}$), то формулу (2.1) можно несколько упростить. При этом угловая зависимость кривой дифракционного отражения будет представлять собой суперпозицию двух однократных интегралов - сверток коэффициентов отражения образца и монохроматора с функцией расходимости по углу $g_s(\theta)$ для двух волн λ_1 и λ_2 , соответствующих дуплету характеристической линии $K_{\alpha 1}$ и $K_{\alpha 2}$:

$$P_D^{(\eta)}(\vartheta) = \frac{2}{3} \int d\theta g_s(\theta) P_M^{(\eta)}(\theta) P_h^{(\eta)}(\vartheta + \theta) + \\ + \frac{1}{3} \int d\theta g_s(\theta) P_M^{(\eta)}\left(\theta - \frac{\lambda_2 - \lambda_1}{\lambda_1} \tan \Theta_B\right) P_h^{(\eta)}\left(\vartheta + \theta - \frac{\lambda_2 - \lambda_1}{\lambda_1} \tan \Theta_B\right) \quad (2.4)$$

Данная упрощенная формула (2.4) вместе с точной формулой (2.1) была также использована при проведении расчетов кривых дифракционного отражения для различных значений коллимационных щелей $S = 50, 100, 200$ и 300 мкм.

На рис. 2.7 представлены результаты расчетов кривых дифракционного отражения с применением точного (2.1) и упрощенного (2.4) выражения (с

использованием аппаратных функций (2.2) и (2.3) для рентгенооптической схемы спектрометра ТРС.

Из рисунков видно, что расчетные кривые для двухкристальной схемы наряду с основным максимумом, соответствующим длине волны $\lambda_1 K_{\alpha 1}$ -линии, которая и используется для реализации дифракции, на правом склоне имеют еще один слабо выраженный пик, который смещен по угловой шкале относительно главного пика на величину $\frac{\lambda_2 - \lambda_1}{\lambda_1} \operatorname{tg} \Theta_B$. Этот пик соответствует длине волны $\lambda_2 K_{\alpha 2}$ -линии отраженный склоном монохроматора (рис. 2.7).

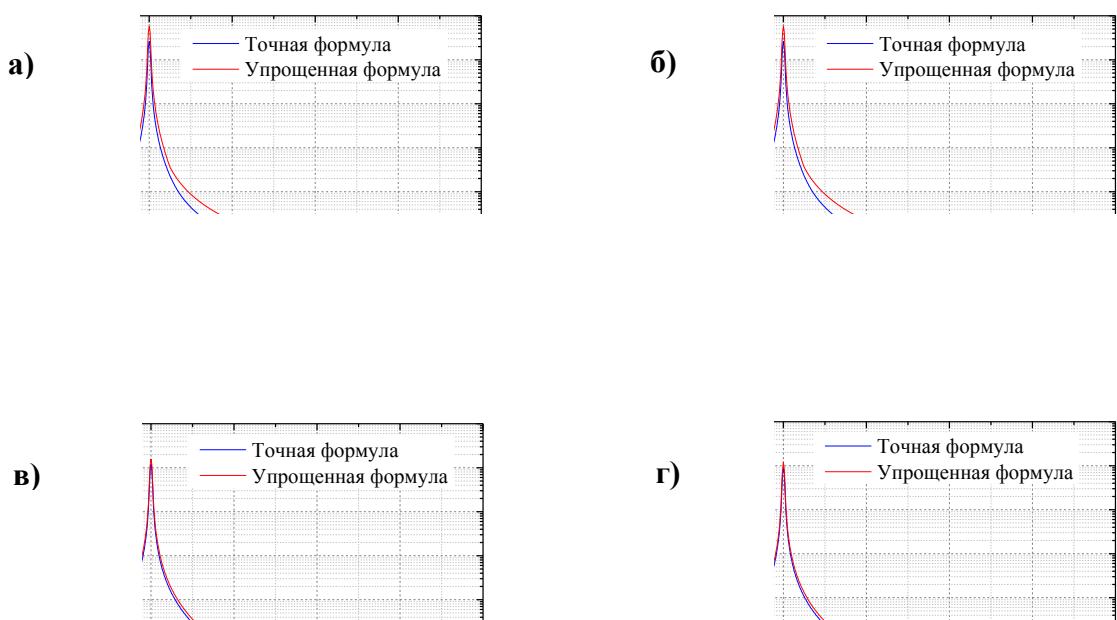


Рис. 2.7 Расчетные КДО: по точной и приближенной формуле (2.1) сплошная линия и (2.4) пунктирная линия для различных значений ширины щелей коллиматора S (мкм) а) 50, б) 100, в) 200, г) 300.

Такая, на первый взгляд, неочевидная особенность двухкристальных бездисперсионной схем, с использованием классической рентгеновской трубы впервые была описана в [311].

Стоит отметить, что для предельного случая, когда величина $\frac{\Delta\lambda}{\lambda_1} \operatorname{tg} \Theta_B$ оказывается меньше $\Delta\theta_{\text{eff}}$, определяющей для аппаратной функции область

значений, точная формула (2.1) принимает вид соответствующего выражения, описывающего абсолютно бездисперсионную двухкристальную схему [314]. Такая тенденция прослеживается из рисунков 2.7 (а-г), демонстрирующих эволюцию формы двухкристальных кривых в области малого пика, полученных с применением точной и приближенной формулы для различных значений щелей. Кривые качественно и количественно соответствуют друг – другу: совпадает интенсивность, форма кривых и угловые положения обоих (главного $K_{\alpha 1}$ и побочного $K_{\alpha 2}$) пиков.

Для рассматриваемого дифракционного отражения Si(220) приближенная формула (2.4) может быть использовать лишь для качественного сравнения с экспериментальных и расчетных кривых, так как

для излучения Mo K_{α} в данном случае $\left| \frac{\delta\lambda}{\lambda_1} \operatorname{tg}\Theta_B \right| > \Delta\Theta_{B,1/2}$.

Для проверки предложенных алгоритмов расчета кривых на дифрактометре ТРС были проведены эксперименты по измерению КДО. Для

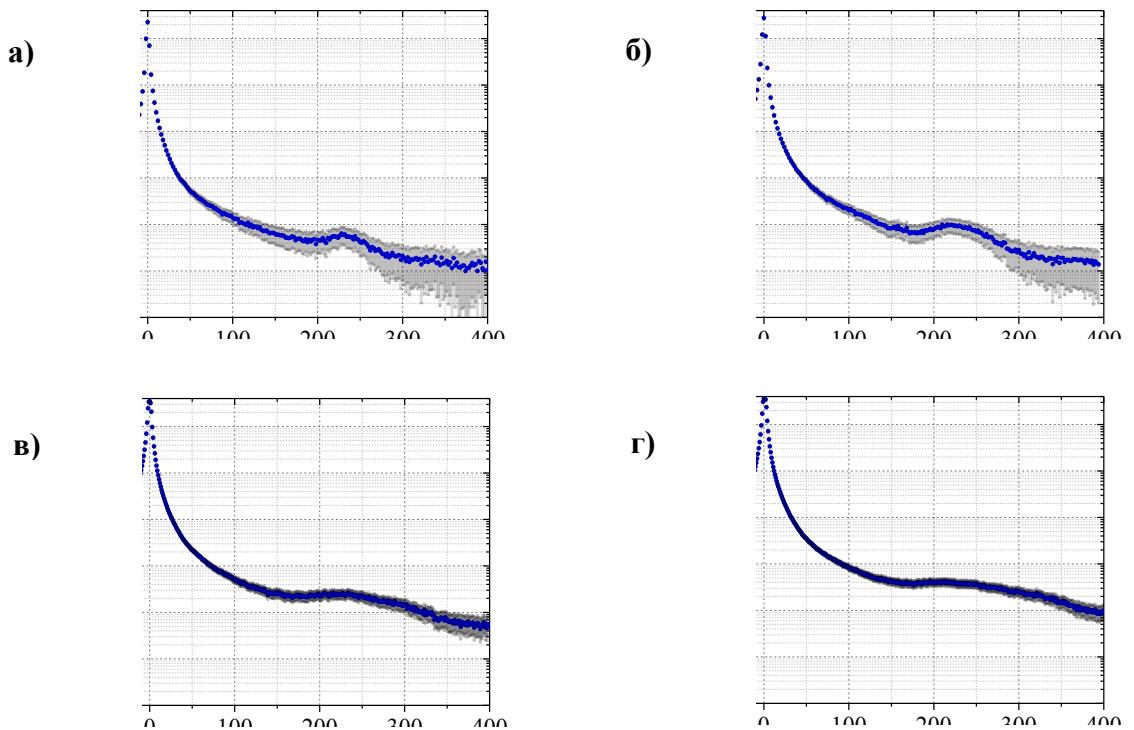


Рис. 2.8 Примеры экспериментальных КДО, измеренных при различных значениях ширины щелей коллиматора (мкм) $S = S_1 = S_2$: а – 50, б – 100, в – 200, г – 300.

монохроматора и образца были использованы монокристаллические пластины бездислокационного кремния (Si), с ориентацией поверхностей в направлении [110]. Для реализации двухкристальной бездисперсионной схемы на монохроматоре и образце было использовано симметричное отражение (220). Измеренные двухкристальные КДО представлены на рисунке 2.8. в сравнении с расчетными.

Как видно из рисунков проведенный эксперимент и советующие ему расчеты двухкристальных кривых качественно и количественно соответствуют друг другу. Полученные с использованием характеристического излучения Мо рентгеновской трубки теоретические экспериментальные двухкристальные кривые дифракционного отражения для различных ширин коллимационных щелей демонстрируют, при уменьшении щелевого зазора, общий вклад от линии $\text{Mo}K_{\alpha 2}$ возрастает.

Приведенные алгоритмы моделирования экспериментальных кривых применялись для расчета КДО в условиях возбуждения ультразвука.

(Расчет кривых дифракционного отражения при вибрационных механических нагрузках (однородная деформация))

Экспериментальные исследования кристаллов в условиях наложения длинноволновых ультразвуковых колебаний, проведенные в работах [315,316] показали, что при такого рода внешних воздействиях атомы кристаллической решетки периодически смещаются по направлению вектора обратной решетки одного из рефлексов, что приводит к модулированию условий дифракции рентгеновских лучей. Следствием этого является уширение КДО, причем, с увеличением амплитуды подаваемого ультразвука полуширина кривой увеличивается.

Учитывая рассматриваемый однородный характер колебаний, определим параметр кристаллической решетки при фазе максимального растяжения как d_r , а параметр кристаллической решетки в фазе максимального сжатия определим как d_s и, соответственно, d_0 определим

значение параметра решетки для случая недеформированного кристалла (или нулевой фазы). Каждому из определенных выше значений межплоскостных расстояний будут соответствовать брэгговские углы максимума дифракции - θ_r , θ_0 , θ_s . Тогда на такой кристалл, совершающий колебания, направляется квазипараллельный пучок монохроматического рентгеновского излучения под углом Брэгга θ_0 , то условия дифракции будут выполняться только во временной промежуток в окрестности нулевой фазы, когда параметр кристаллической решетки равен θ_0 . Т.к. межплоскостное расстояние колеблющегося кристалла, и, следовательно, угол Брэгга $\theta(t) = \arcsin(\lambda/2d(t))$ зависит от времени, для других фаз колебаний дифракционные условия будут нарушены. Чтобы выполнить условия дифракции для других фаз кристалл надо повернуть на некоторый угол, например, на угол $(\theta_r - \theta_0)$ для фазы растяжения и $(\theta_s - \theta_0)$ для фазы сжатия. Т.к. время поворота кристалла значительно больше периода колебаний, то каждой точки поворота будет соответствовать уже диапазон межплоскостных расстояний (от d_s до d_p) и, соответственно, увеличится область углов дифракции такого кристалла (от $\theta_r < \theta_0$ до $\theta_s < \theta_0$). Полуширина КДО ω_{us} , при включённом ультразвуке, увеличится на значение равное $(\theta_s - \theta_r)$ и будет составлять $\omega_{us} \sim \omega_0 + \theta_s - \theta_r$, где ω_0 – полуширина двухкристальной КДО невозбужденного кристалла. Следовательно, при анализе степени однородной ультразвуковой деформации кристаллической структуры на данном участке кристалла можно проводить по полуширине кривой дифракционного отражения. Следствием этого является возможность изучения распределения ультразвуковой деформации по длине кристалла на основе анализа изменения полуширины кривой при перемещении по кристаллу рентгеновского пучка [317].

При проведении экспериментов с использованием стробоскопической техники измерения дифрагированного рентгеновского пучка, то есть когда имеется возможность фактически «замораживать» кристалл в любой заранее заданной фазе колебания, было показано, рис. 2.9, что кривые, измеренные

для фаз максимального сжатия и растяжения, имеют форму и полуширину, практически полностью соответствующие невозбужденному кристаллу.

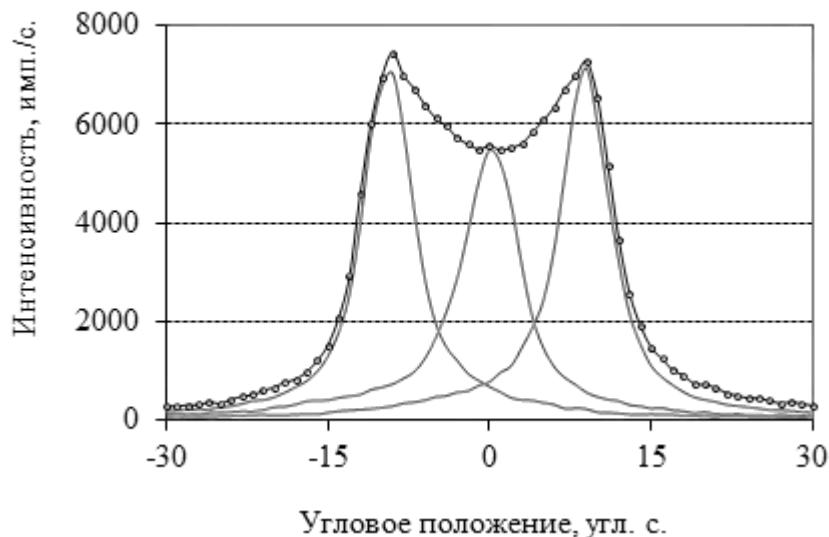


Рисунок 2.9 - КДО кристалла кремния, измеренная в интегральном режиме при включенном ультразвуке, и ее составляющие - кривые для фаз максимального растяжения и сжатия кристаллической решетки.

Рис. 2.10 представлены результаты расчета контура кривой дифракционного отражения с включенным ультразвуком в интегральном

Рис. 2.10 - Интегральная КДО, рассчитанная кристалла Si(220) при включенном ультразвуке (*integral*), и образующие её компоненты - стробоскопические КДО различных нескольких фаз ультразвукового колебания.

режиме регистрации рентгеновского пучка (жирная кривая) и образующие его компоненты - кривые дифракционного отражения для различных фаз ультразвукового колебания.

Как показано на рис. 2.9. эти же кривые можно измерить с использованием режима стробоскопической регистрации рентгеновского пучка при «покачивании» кристалла в окрестности точного Брэгговского положения. Соответственно, динамический (колеблющийся) кристалл можно

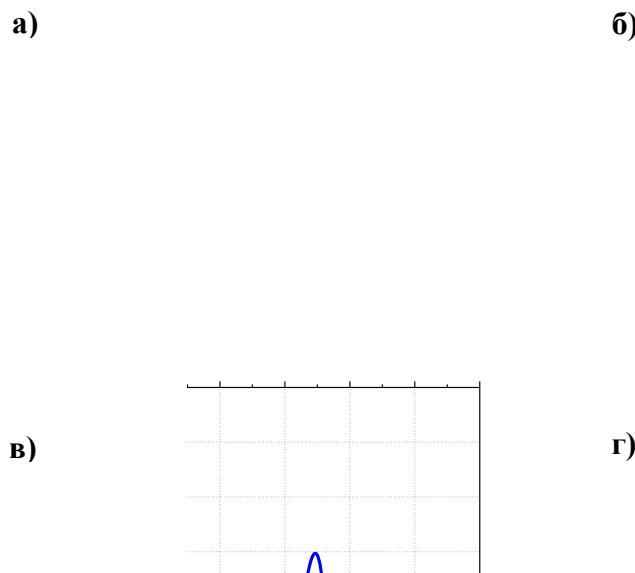


Рисунок 2.11 - Интегральная КДО, рассчитанная для кристалла Si (220), находящегося под воздействием ультразвуковых вибраций ($v=160$ кГц) различной амплитуды. Относительные деформации межплоскостного расстояния $\Delta d/d$, вызываемые ультразвуковыми колебаниями: 0 (а), 10^{-4} (б), $3 \cdot 10^{-4}$ (в), $5 \cdot 10^{-4}$ (г) (Излучение $MoK_{\alpha 1}$).

рассматривать как статический кристалл с фиксированной деформацией, соответствующей определенной фазе колебания. При этом фазам деформации растяжения соответствует смещение углового положения кривой в сторону меньших углов, а деформации сжатия соответствует сдвиг кривой в сторону больших углов. Суперпозиция стробоскопических кривых

для различных фаз представляет собой широкую интегральную КДО колеблющегося кристалла.

На Рис 2.11, 2.12 представлены результаты расчетов кривых дифракционного отражения для кристаллов Si и Ge при различных амплитудах ультразвуковых колебаний.

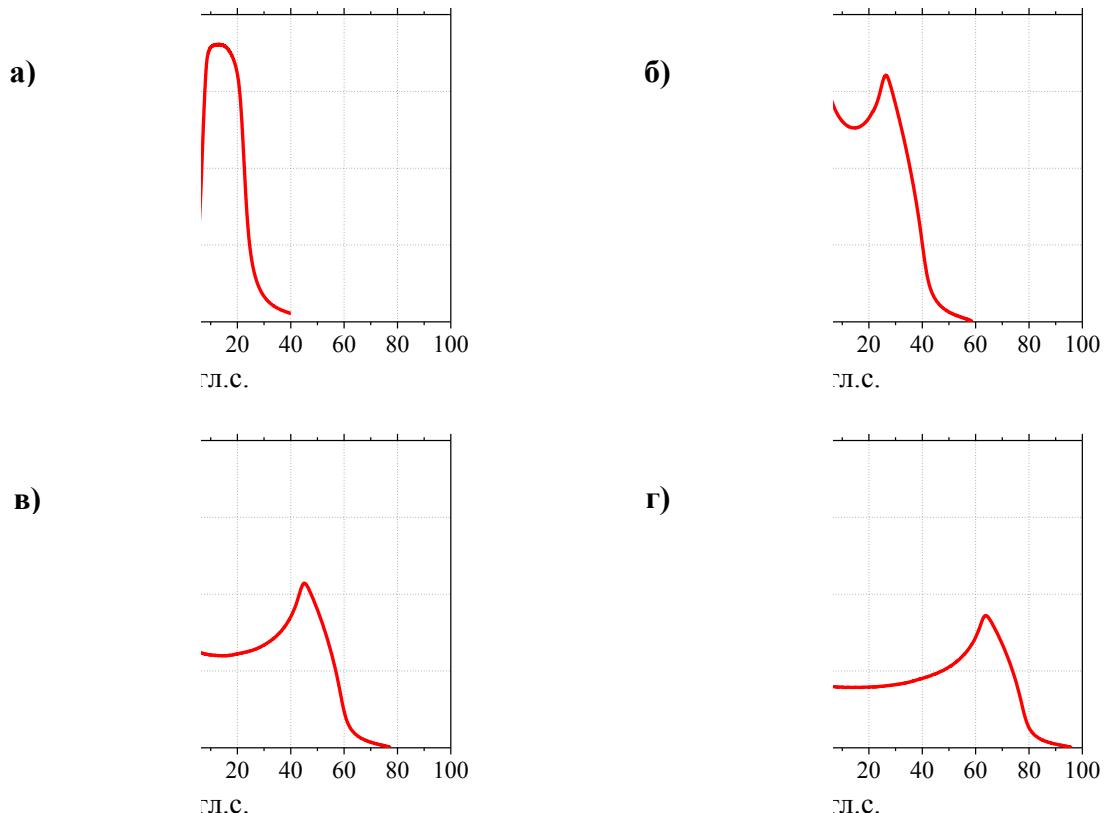


Рис. 2.12. - Интегральная КДО, рассчитанная для кристалла Ge (111), находящегося под воздействием ультразвуковых вибраций ($v=160$ кГц) различной амплитуды. Относительные деформации межплоскостного расстояния $\Delta d/d$, вызываемые ультразвуковыми колебаниями: 0 (а), $6 \cdot 10^{-4}$ (б), 10^{-3} (в), $2 \cdot 10^{-3}$ (г) (Излучение $\text{Cu}K_{\alpha 1}$).

Проведенные расчеты двухкристальных КДО, в том числе при различных амплитудах механических напряжений, создаваемых с помощью ультразвука, показали, что с помощью ультразвука можно в широких пределах изменять межплоскостное расстояние, и использовать для значительной перестройки параметров рентгеновского пучка.

Геометрическая оптика Лауэ-дифракции. Теоретический анализ и моделирования экспериментов в случае неоднородной Лауэ дифракции на примере кристалла Si

В предыдущем разделе был рассмотрен случай однородной ультразвуковой деформации в случае Лауэ дифракции. Настоящий раздел посвящен моделированию Лауэ-дифракция в кристалле с переменным параметром кристаллической решетки, причем изменяющимся в направлении параллельно поверхности образца. Такая задача не может быть описана в терминах дифракции плоских волн, так как даже при падении плоской волны на такой кристалл последняя не сохраняется и становится переменной в пространстве. Соответственно, необходимо решать уравнения Такаги для переменных амплитуд проходящей и отраженной волн. При этом сразу полезно учитывать реальные граничные условия. В данном разделе будет проведен анализ для условий, соответствующих эксперименту на кремнии, результаты которого опубликованы в [318].

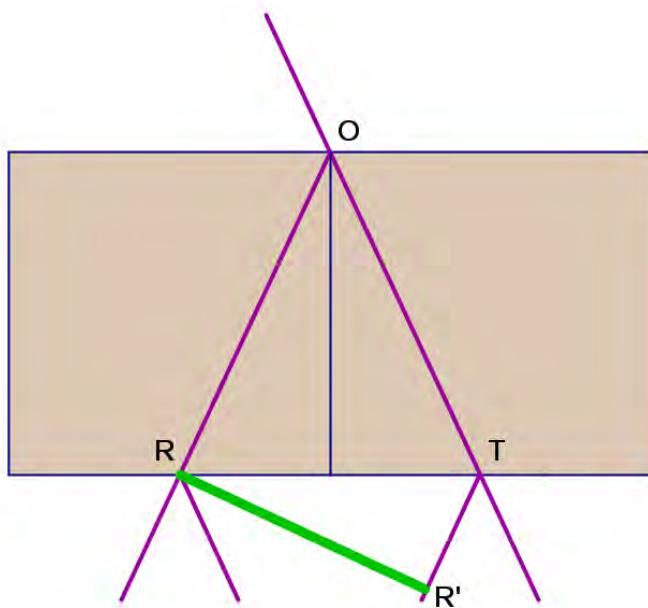


Рис.2.13. Геометрия дифракции

Геометрия дифракции показана на Рис. 2.13. При падении на кристалл узкого пучка, область в которую проникает излучение определяется треугольником Бормана с вершинами ORT. На выходе из кристалла пучки

разделяются. Ширина отраженного пучка показана линией RR'. Она определяется формулой

$$RR' = 2t \sin(\theta_B) = 332.5 \mu. \quad (2.5)$$

Угловая ширина A отражения монохроматором, как известно, вычисляется по формуле

$$A = 2|\chi_{rh}|/\sin(2\theta_B) = 10.567 \mu\text{рад.} \quad (2.6)$$

При этом на расстоянии $R = 80$ см пространственная полуширина падающего пучка равна $w = 8.45 \mu$. Видно, что ширина падающего пучка почти в 40 раз меньше ширины выходящих из кристалла прошедшего и отраженного пучков.

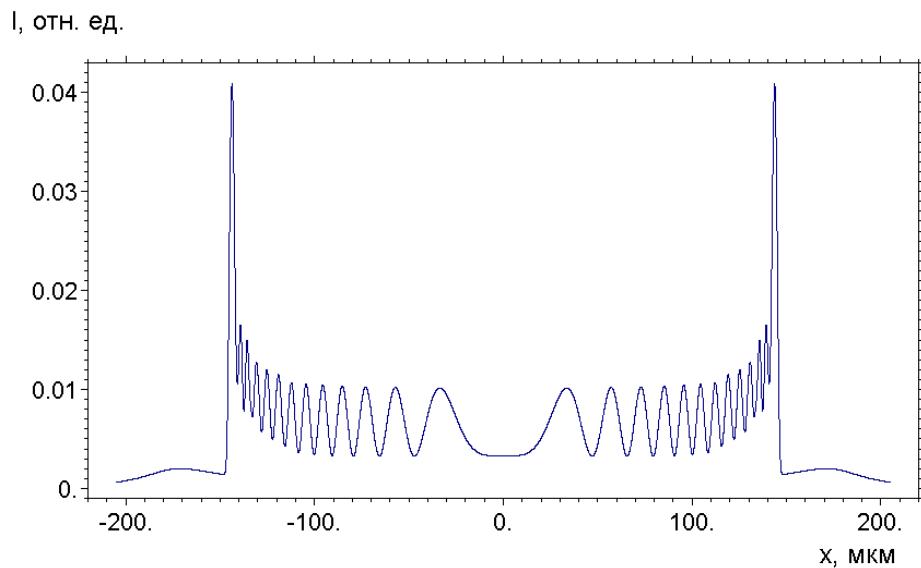


Рис. 2.14. Распределение интенсивности в отраженном пучке для сферической волны

В расчетах в качестве падающей волны можно рассматривать волну со сферическим фронтом фазы, но с убывающей по гауссовому закону амплитудой, а именно

$$E_{in}(x) = \frac{1}{(i\lambda R)^{1/2}} \exp\left(-\frac{x^2}{x_0^2}\right) \exp\left(i\pi \frac{x^2}{\lambda R}\right), \quad x_0 = \frac{w}{(2 \ln 2)^{1/2}} \quad (2.7)$$

Прямое численное решение уравнений Такаги методами сеток представляет собой весьма сложную задачу для данного случая. Т.к. будем рассматривать только достаточно плавные и медленные изменения параметра решетки кристалла в направлении параллельном поверхности, то в этих

условиях весьма интересным представляется подход, основанный на решении уравнений по траекториям. Теория метода подробно рассмотрена в работах В. Кона [319,320], в соавторстве с которым проведены данные расчеты. На Рис. 2.14 показано распределение интенсивности в отраженном пучке, рассчитанное для указанных выше условий и для сферической падающей волны без обрезания углов. Как известно, для источника на конечном расстоянии слабопоглощаемая волновая мода поля фокусируется на толщине

$$t_f = \frac{|\chi_{rh}|R}{\sin \theta_B \sin(2\theta_B)} = 22.9 \mu$$

а затем лучи опять расходятся, образуя каустики. Так как толщина фокусировки очень мала по сравнению с толщиной кристалла, расстояние между каустиками почти равно ширине пучка для источника на поверхности. В области между каустиками существует два поля и интерференция между ними приводит к осцилляциям. Метод траекторий дает завышенное значение интенсивности на каустиках, что приводит к завышению и интегральной интенсивности. Этот факт хорошо известен и подробно обсуждался в литературе. Тот же результат был получен в [319].

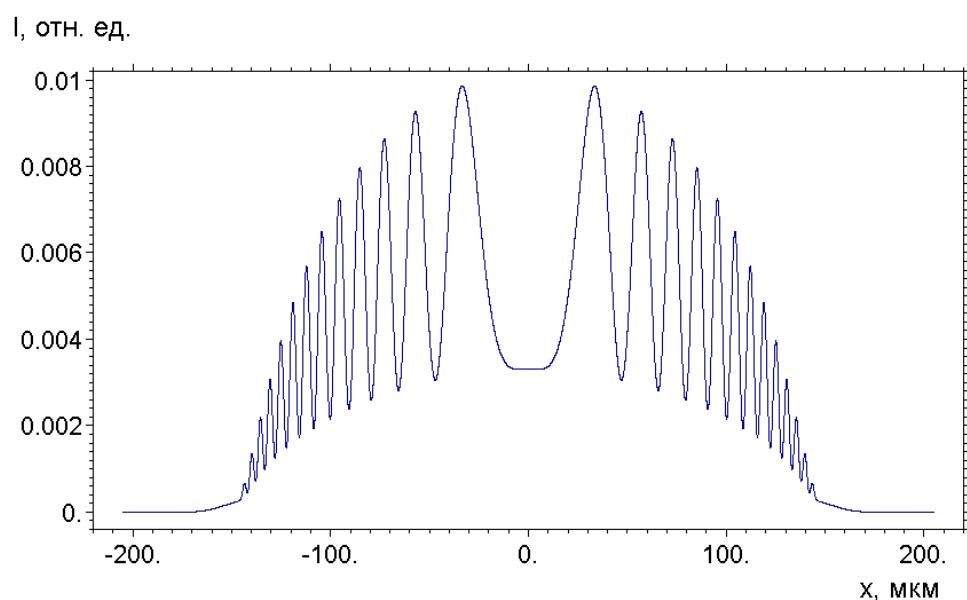


Рис. 2.15. Интенсивность в отраженном пучке для гауссовой сферической волны

На Рис. 2.15 показано распределение интенсивности при тех же условиях с одним отличием, что падающая сферическая волна имеет гауссовый профиль амплитуды и описывается формулой (2.7). Видно, что центральная часть распределения нисколько не пострадала, но боковые части, включая каустики, сильно подавлены. Физически этот факт легко объяснить. Каустики и боковые части распределения формируются за счет отражения лучей, которые не вполне точно попадают в условия Брэгга и отражаются хвостами кривой качания (кривой угловой зависимости отражения плоских волн). Выигрыш в интенсивности получался за счет увеличения плотности траектории (сближения траекторий) в этих областях. В обрезанной сферической волне все такие лучи либо отсутствуют, либо имеют малый вес за счет плохого отражения монохроматором, что и приводит к подавлению боковых частей распределения.

С другой стороны, в центральной части распределения численная точность метода траекторий весьма высока. По этой причине этот метод вполне пригоден для численного моделирования зависимости интегральной интенсивности от угла поворота кристалла. Наличие деформаций в кристалле с большим периодом не может ухудшить численную точность, так как для появления каустик просто не хватает ширины падающего пучка.

В методе траекторий падающая когерентная волна разбивается на систему лучей, угол наклона конкретного луча по отношению к оптической оси определяется производной от фазы волны Φ по координате. В точке с нулевой производной луч точно удовлетворяет условиям Брэгга, по мере роста производной направление луча все более отклоняется от угла Брэгга. Для сферической волны угол отклонения луча от оптической оси линейно зависит от положения этого луча в пространстве относительно оптической оси так как $d\Phi/dx \propto x$. Таким образом, центральная часть пучка соответствует динамической области дифракции. В кристалле лучи резко меняют направление потому, что теперь они идут по направлению потока энергии для суперпозиции из двух волн: проходящей и дифрагированной. В

частности, луч, идущий до кристалла по оптической оси, в кристалле проходит прямо посередине треугольника Бормана, то есть по нормали к поверхности. Здесь и далее рассматривается симметричный случай. При этом обе моды поля (сильно поглощаемая и слабопоглощаемая) имеют одну и ту же траекторию. Для всех других лучей угол наклона для двух мод поля разный.

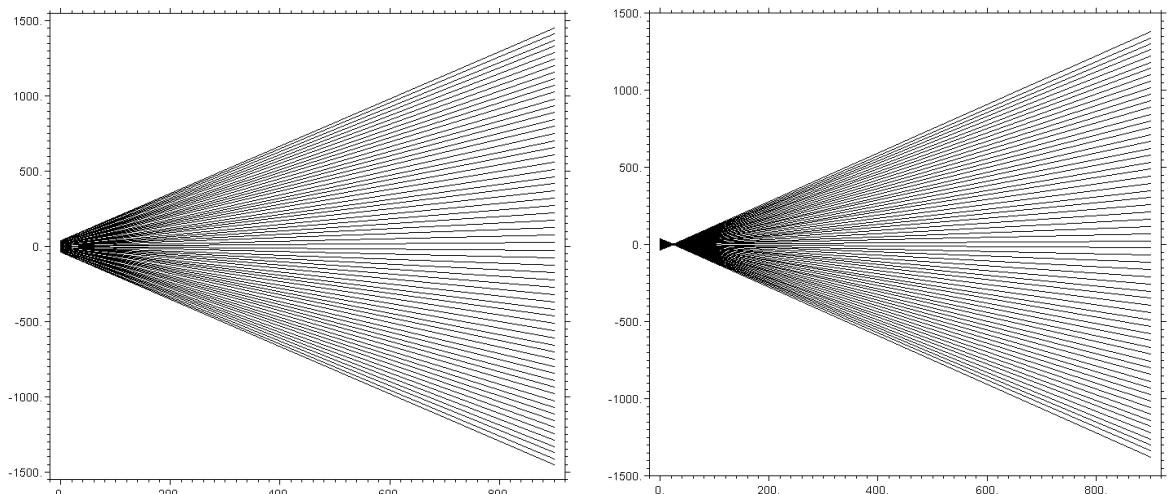


Рис. 2.16. Центральные траектории (64) в сильно (слева) и слабо (справа) поглощаемых модах.

Известно, что направление потока энергии в кристалле идет по нормали к дисперсионной поверхности в точке возбуждения. При этом для слабопоглощаемой моды угол наклона меняет знак, то есть траектории сближаются, а для сильно поглощаемой моды он имеет тот же знак, то есть траектории продолжают разбегаться. На Рис. 2.16 показаны 64 центральные траектории из рассматриваемых 512 траекторий (расчет с монохроматором) для сильно поглощаемой моды (слева) и для слабопоглощаемой моды (справа). Горизонтальная шкала показывает глубину в кристалле, вертикальная – расчетные единицы. Полная расчетная область перпендикулярно пучку равна $409,6 \mu$. Интенсивность вычислялась в 16384 точках в этой области с шагом $0,025 \mu$. Начальные точки траекторий равномерно распределялись в области $25,6 \mu$ с шагом $0,05 \mu$. Эта область более чем в 3 раза превышает полуширину падающего пучка. Показанные 64

траектории соответствуют центральной области с шириной $3,2 \mu$ в падающем пучке. На выходе из кристалла эта область увеличивается в 30 раз, но все равно меньше ширины отраженного пучка. Из-за различия в траекториях обе моды поля имеют в каждой точке на выходной поверхности разные фазы, причем разность фаз медленно меняется от нуля в центре до максимального значения на краях. Интерференция двух мод в каждой точке на выходной поверхности и приводит к осцилляциям интенсивности (рис. 2.15).

Угловая зависимость отражения кристаллом без деформации. В экспериментах измеряется угловая зависимость интегральной интенсивности при вращении кристалла относительно монохроматора. В нашем случае это означает, что положение узкого пучка фиксировано на оптической оси, а кристалл вращается. При вращении кристалла падающие лучи попадают в начальные условия, при которых они все отклонены от угла Брэгга на определенный угол. При этом, с ростом угла поворота вектора дифракции в сторону, противоположную направлению отраженного пучка траектории для левой (сильнопоглощаемой) зоны поднимаются вверх, то есть в сторону падающего пучка, а траектории для правой (слабопоглощаемой) зоны опускаются вниз, то есть в сторону отраженного пучка.

На рис. 2.17 показаны траектории для угла поворота 5 мкрад. Видно, что лучи все больше прижимаются к своему краю, то есть к направлениям

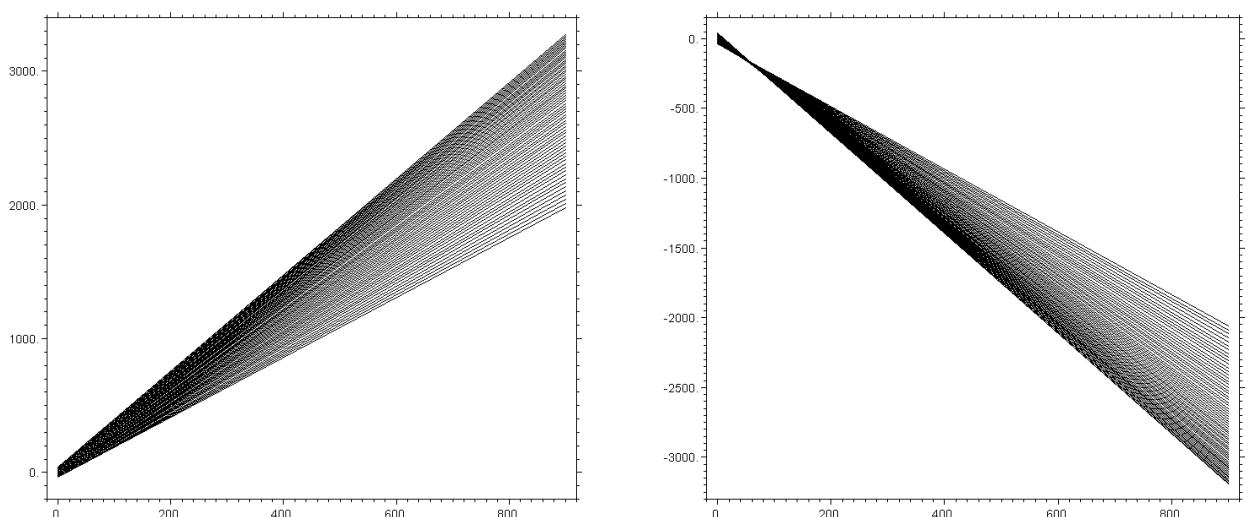


Рис. 2.17. Центральные траектории при повороте кристалла на 5 мкрад.

прошедшей или отраженной волн, а интерференция двух мод происходит за счет лучей с противоположных концов распределения лучей в падающей волне. Реальное пространственное распределение интенсивности показано на рис. 2.18. В левый край приходят лучи слабопоглощаемой моды, поэтому он не так быстро опускается по сравнению с правым краем, который в основном формируется сильнопоглощаемой модой. Именно этим обусловлена асимметрия кривой.

Интересна физическая природа двухпиковой структуры. Пик со стороны прошедшего пучка имеет высокую степень возбуждения, но очень плохо отражается. Проходящий пучок полностью описывается этой зоной. Пик со стороны отраженного пучка, наоборот, хорошо отражается, но слабопоглощаемая мода плохо возбуждается при положительных углах поворота. При повороте кристалла в другую сторону роль двух мод меняется местами.

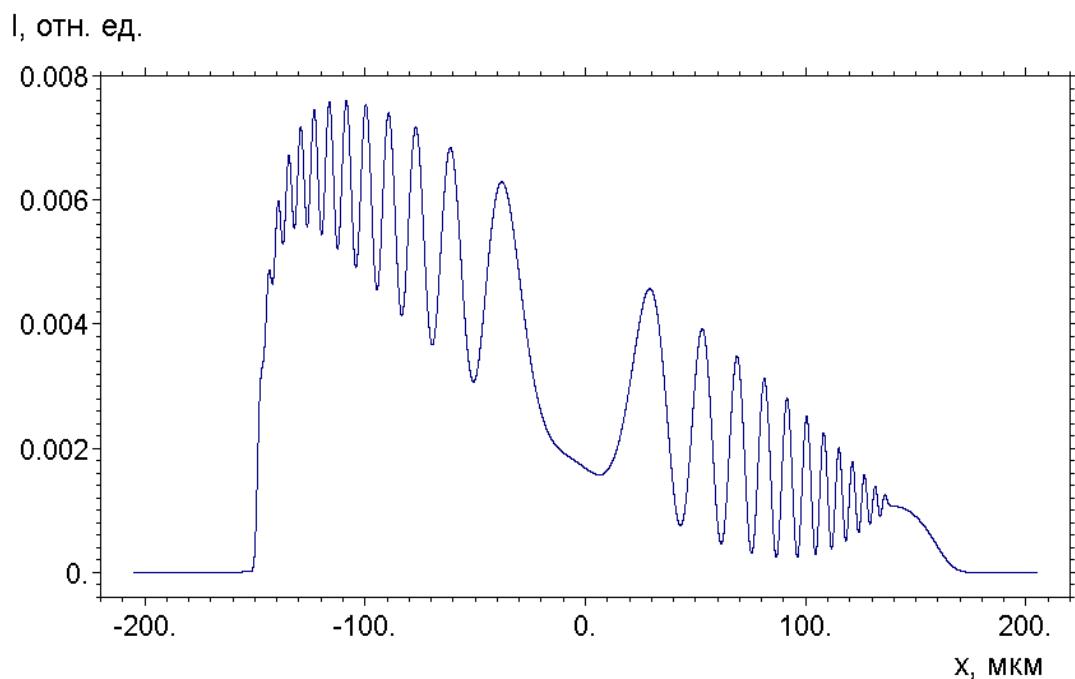


Рис. 2.18. Распределение интенсивности при повороте кристалла на 5 мкрад.

Угловая зависимость интегральной интенсивности показана на Рис. 2.19. Полуширина кривой равна 15 мкрад, что в полтора раза шире угловой ширины падающего пучка. Показанная кривая почти совпадает с той,

которая бы получилась при свертке кривых качания кристаллов монохроматора и образца. Это, во-первых, показывает правильность проведенных расчетов, а во-вторых, подтверждает эквивалентность пространственного (сферическая волна) и углового (плоская волна) расчетов кривой качания. Вертикальная шкала на Рис. 2.19. показана в относительных единицах по отношению к интегральной интенсивности падающего пучка $I_{0\text{int}}$. При этом расчетные значения умножались на шаг сетки точек $0,025 \mu$ и делились на $I_{0\text{int}}$. Значение $I_{0\text{int}}$ легко оценить по формуле $I_{0\text{int}} = AK(8\pi\ln 2)^{-1/2}$,

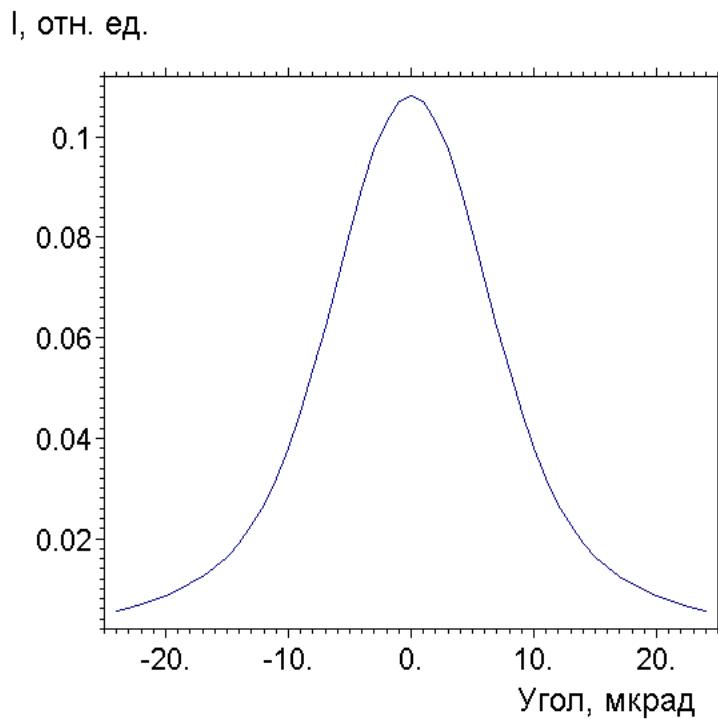


Рис. 2.19. Угловая зависимость интегральной интенсивности.

где $A = w/R$ – угловая ширина падающего пучка, $K = 2\pi/\lambda$. Подставляя значения для рассматриваемого случая получаем $0,224 \mu^{-1}$. Потери на поглощение составляют $\exp(-\mu_0 t / \cos \theta_B) = 0,269$. Таким образом, чистый коэффициент отражения равен 0,415. Это близко к максимальному значению 1/2 для бесконечно узкого пучка. Реально отражение несколько меньше, но зато имеет место эффект Бормана, снижающий потери на поглощение.

Деформация и ее влияние на пространственную структуру пучка.

Рассмотрим следующую модель деформации кристалла

$$hu(x) = U \cos(bx_s) \quad (2.8)$$

где ось x направлена вдоль поверхности кристалла противоположно вектору дифракции и координата x_s отсчитывается от начала образца. Согласно [2] локальный параметр отклонения от условия Брэгга равен

$$a = a_0 - \frac{\partial}{\partial s_h} hu(x) = -\sin(2\theta_B)K\varphi - \sin\theta_B U b \sin(bx_s) \quad (2.9)$$

где φ – угол поворота кристалла в сторону увеличения угла Брэгга. Полезно также оценить относительное изменение параметра решетки. С учетом соотношения $h_x = -h$ имеем

$$\frac{\Delta d}{d} = \frac{du_x}{dx} = (Ub/h)\sin(bx_s), h = \sqrt{8} \frac{2\pi}{a} = 3,27 \cdot 10^4 \mu^{-1} \quad (2.9a)$$

Параметр $b = 2\pi/\Lambda$, где Λ – длина волн ультразвука. В эксперименте предполагалось, что она равна удвоенной длине образца, то есть $\Lambda = 6$ см. Поэтому b имеет порядок величины $b = 10^{-4} \mu^{-1}$ или больше. Деформация максимальна в середине образца, где $bx_s = \pi/2$. Оценим порядок величины параметра U . Из формулы видно, что величина $-(Ub)/(2K\cos\theta_B)$ эквивалентна углу поворота кристалла, который компенсирует деформацию. Максимальный угол поворота достигал в эксперименте величины $\varphi = 60$ мрад. Соответственно для параметра U получаем оценку $U < 1,2 \cdot 10^{-4} (\Lambda/\lambda)$, где λ – длина волны рентгеновских лучей. Подставляя параметры, приходим к неравенству $U < 10^5$. Итак, получили хотя и очевидный, но неординарный результат. Очень длинная волна может создать заметную деформацию только при огромных смещениях решетки по сравнению с межатомным расстоянием. При этом $\Delta d/d = 3 \cdot 10^{-4}$. Это вполне разумное значение.

Запишем теперь $x_s = x_0 + x$, где x_0 – координата падающего узкого пучка на кристалле, а x отсчитывается от центра пучка. Изгиб траектории, записанный в нормальных координатах для центральных лучей, определяется общей формулой

$$\frac{d^2x}{dz^2} = \mp \frac{\sin^3 \theta_B}{\cos^2 \theta_B} \frac{1}{K|\chi_{rh}|} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \text{hu}(x) = \pm \frac{\sin^3 \theta_B}{\cos^2 \theta_B} \frac{Ub^2}{K|\chi_{rh}|} \cos(bx + \psi), \quad (2.10)$$

где $\psi = bx_0$ – фаза, меняющаяся от нуля (в начале образца) до π (в конце образца). В случае постоянной деформации, то есть в середине образца, $\psi = \pi/2$ и косинус можно заменить на аргумент со знаком минус. Подставляя $U = 10^5$, $b = 10^{-4} \mu^{-1}$, $x = 10^2 \mu$ (на краю пучка и на выходе, то есть максимум), $K|\chi_{rh}| = 0,17 \mu^{-1}$, $\sin^3 \theta_B / \cos^2 \theta_B = 0.0054$, получаем $d^2x/dz^2 = 3 \cdot 10^{-7} \mu^{-1}$. С другой стороны, максимальный угол наклона траектории dx/dz равен $\theta_B = 0.17$ рад. Из данной оценки видно, что на реальной толщине кристалла 900μ изменение угла наклона лучей оказывается ничтожным. Таким образом, отклонения от постоянной деформации ничтожно малы и не влияют на результат.

Тем не менее, полезно рассмотреть решение уравнения в линейном приближении, то есть при замене косинуса на аргумент со знаком минус. В этом случае получаем уравнение

$$\frac{d^2x}{dz^2} = \mp \frac{U}{|U|} C^2 x, \quad C^2 = \frac{\sin^3 \theta_B}{\cos^2 \theta_B} \frac{|U|b^3}{K|\chi_{rh}|} \quad (2.11)$$

Если коэффициент перед x в правой части отрицателен, то решение имеет вид

$$x = x_0 \cos(Cz) + (v_0/C) \sin(Cz), \quad x_0 = x(0), \quad v_0 = (dx/dz)_0 \quad (2.12)$$

то есть траектория является периодической с периодом $z_p = 2\pi/C$. Для рассматриваемых параметров период равен $z_p = 4 \cdot 10^4 \mu$. Это намного превышает толщину кристалла. На реальной толщине кристалле траектории являются прямыми линиями так же, как для идеального кристалла.

Рассмотрим случай с градиентом деформации, когда $\psi = \pi/4$. В этом случае параметр отклонения от условия Брэгга имеет вид

$$a = a_0 - \frac{\partial}{\partial s_h} \text{hu}(x) = -\sin(2\theta_B)K\varphi - \sin\theta_B U_1 b [\cos(bx) + \sin(bx)] \quad (2.13)$$

Здесь $U_1 = 2^{-1/2}U$. Ниже для U_1 будем использовать ту же оценку 10^5 . Для наших условий косинус можно заменить на 1, а синус можно заменить на

аргумент. При этом косинус можно скомпенсировать сдвигом угла, при котором выполняется условие Брэгга и затем отсчитывать угол от этого нового значения. Другими словами, положим $\varphi = \varphi_0 + \varphi_1$, где $\varphi_0 = -(U_1 b)/(2K \cos \theta_B)$ и будем рассматривать новый угол φ_1 . С другой стороны, производная от фазы сферической волны $d\Phi/dx = Kx/R$, где R – расстояние от источника до кристалла. А угол наклона траекторий для центральных лучей равен

$$v_0 = \left(\frac{dx}{dz} \right)_0 = \pm \frac{2 \tan \theta_B}{K |\chi_{rh}|} \left[\sin \theta_B \frac{\partial \Phi}{\partial x} - \frac{a(x)}{2} \right] \quad (2.14)$$

Таким образом, при входе излучения в кристалл градиент деформации просто как бы перенормирует расстояние от источника до кристалла. Он может либо эффективно приблизить, либо удалить источник, но без изменения ширины пучка. Однако при наших параметрах влияние деформации на начальный угол наклона лучей пренебрежимо мало. Действительно $(K/R) \sin \theta_B = 2,05 \text{e-}2 \mu^{-2}$; $\sin \theta_B U_1 b^2 / 2 = 0,92 \text{e-}4 \mu^{-2}$, то есть второй член в 200 раз меньше первого. Поэтому скорость определяется первым членом и равна $v_0 = \pm 4,52 \text{e-}2 x_0 \mu^{-1}$.

Следующий вопрос – будут ли траектории загибаться. Подставляя $\psi = \pi/4$ в формулу (2.10) легко понять, что теперь косинус можно заменить на 1, а U на U_1 и

$$\frac{d^2 x}{dz^2} = 2D = \pm \frac{\sin^3 \theta_B}{\cos^2 \theta_B} \frac{U_1 b^2}{K |\chi_{rh}|} = \pm 3 \cdot 10^{-5} \frac{U}{|U|} \mu^{-1} \quad (2.15)$$

Решение можно записать в виде $x = x_0 + v_0 z + Dz^2$. На толщине кристалла 900 μ сдвиг траектории за счет третьего члена равен $Dz^2 = 12 \mu$. Это хоть и заметно, но все равно мало по сравнению с шириной отраженного пучка. Но если сравнить со вторым членом, то для центральных лучей этот сдвиг весьма заметен. Так для $x_0 = 1 \mu$ имеем $v_0 z = 41 \mu$. Итак, градиентная деформация вполне может повлиять на результат, что и наблюдалось в экспериментах.

На рис. 2.20(а) показаны траектории центральных лучей в случае растянутой решетки ($U > 0$) и нулевого угла отклонения кристалла. Видно, что траектории отличаются от показанных на рис. 2.16 наличием параболической поправки с постоянным коэффициентом в соответствии с формулой (2.15). Траектории вычислялись по 21 точке. На Рис. 2.20(б) показаны траектории для сжатой решетки. Поправка просто меняет знак.

На рис. 2.21 показаны угловые зависимости интегральной интенсивности для этих же деформаций.

Оказывается, отражение для растянутой решетки больше, чем без

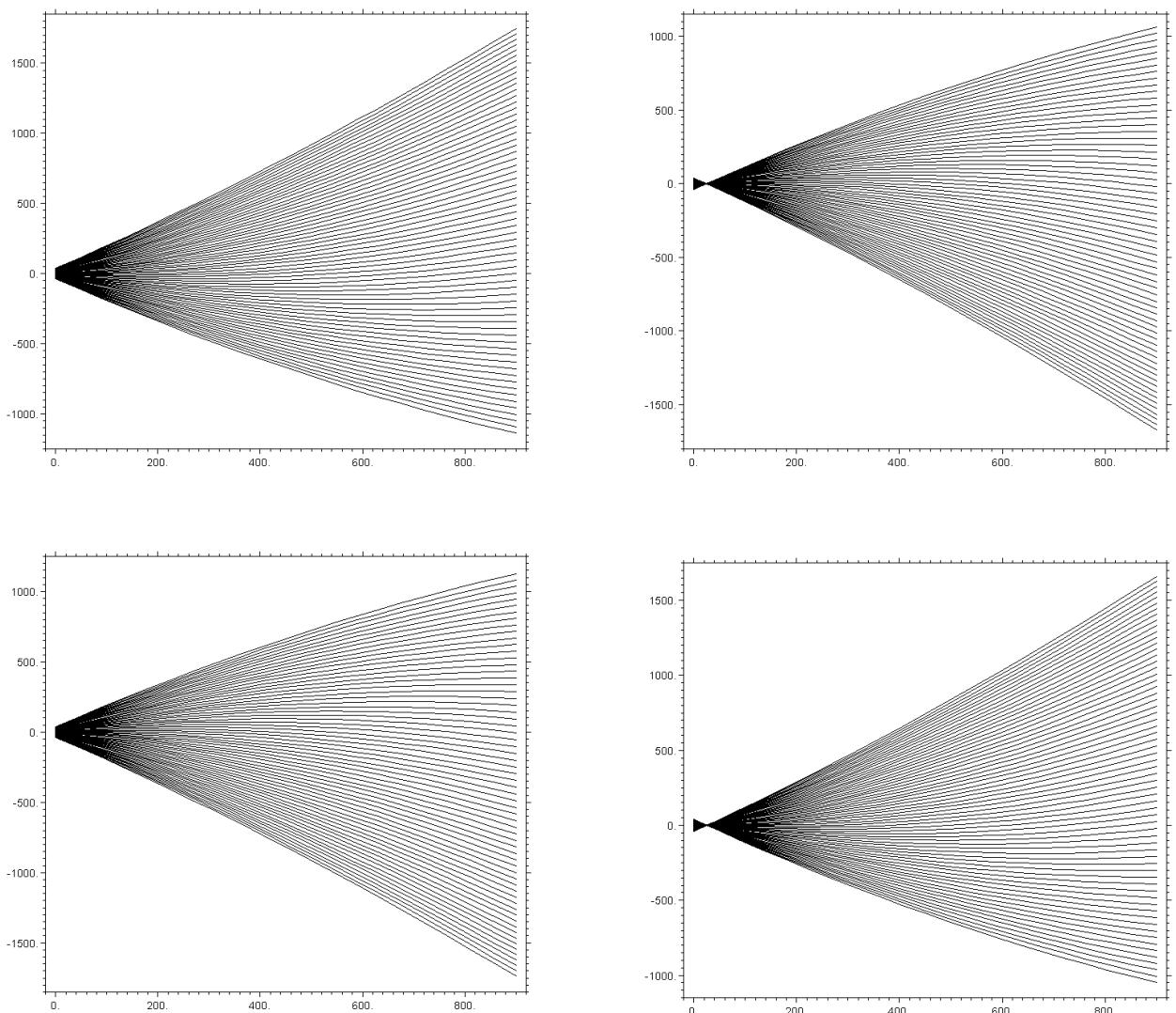


Рис. 2.20. а) Траектории лучей при $U_1 = 10^5$, $b = 10^{-4} \mu^{-1}$,
б) Траектории лучей при $U_1 = -10^5$, $b = 10^{-4} \mu^{-1}$

деформации, а для сжатой решетки – меньше. Этот результат никак не следует из траекторий – они антисимметричны.

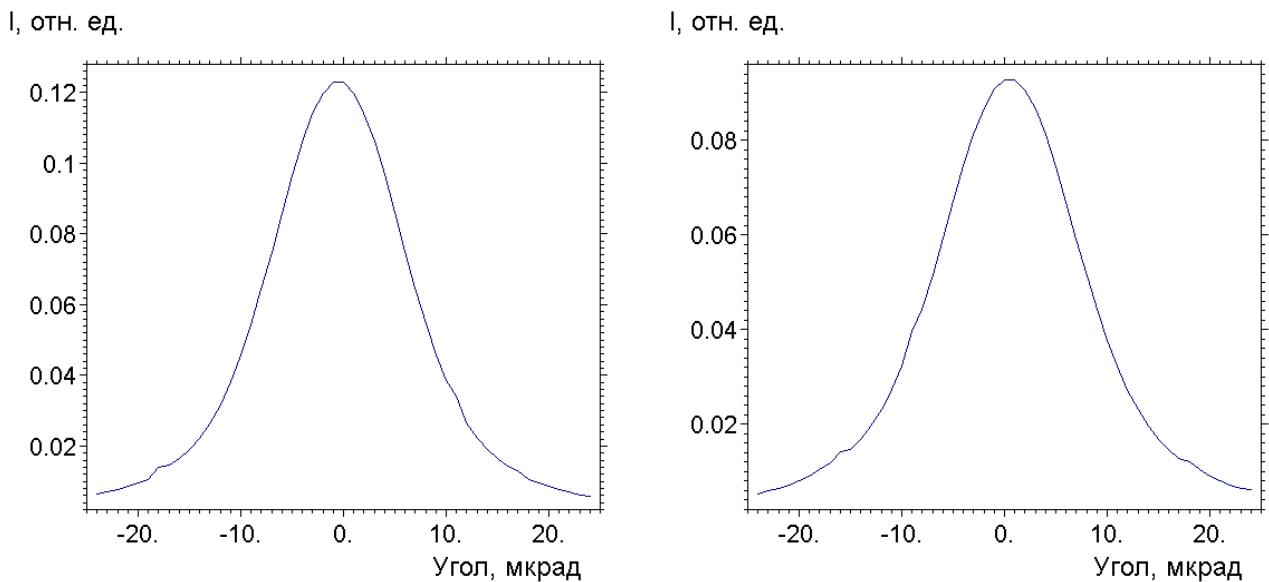


Рис. 2.21. Угловая зависимость интегральной интенсивности для градиентно деформированного кристалла при $b = 10^{-4} \mu^{-1}$, $U_1 = 10^{-5}$ (слева), $U_1 = -10^5$ (справа)

2.3. Особенности рентгеноакустических взаимодействий в разных диапазонах частот акустических волн. Выбор диапазона частот ультразвука с точки зрения классических подходов дифракции - от коротких волн, формирующих сверхрешетки, до длинноволнового ультразвука - динамического аналога статической рентгеновской оптики

В соответствии с классическим представлениями по дифракции электромагнитных волн на искаженных объемных дифракционных решетках, особенности рентгеноакустического взаимодействия, т.е. дифракционная картина, возникающая при рассеянии электромагнитной волны рентгеновского диапазона на промодулированной ультразвуковыми колебаниями кристаллической решетке, в существенной степени зависят от соотношения между длиной акустической волны и размерами области дифракции (например, для продольных колебаний экстинкционной глубиной в случае Брэгговской дифракции и шириной рентгеновского пучка на образце в случае Лауз дифракции). При этом важен, как и тип колебаний (продольные, изгибные или сдвиговые) так и геометрия эксперимента. В этой связи можно выделить несколько типов взаимодействии для разных соотношений между шириной области дифракции рентгеновского пучка d и длиной упругой волны λ .

I. Область, соответствующая высоким частотам ультразвука $d \gg \lambda$.

Здесь размер области дифракции многократно превышает длину ультразвуковой волны. В этой области ультразвук создает периодическую сверхрешетку с периодом равным длине ультразвуковой волны (рис.2.22). Это классический случай дифракции Рамана-Ната. Дифракционная картина представляет собой дифракционные максимумы, равноотстоящие друг от друга и расположенные симметрично по обеим сторонам от дифрагированного пучка. Угловое положение дифракционных максимумов относительно основного отражения $\sin \theta_0 = m\lambda/2d$ определяется выражением $\sin \theta_m = m\lambda/\Lambda + \cos \theta_0$, $m = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$, где θ_m – угловое положение

дифракционного максимума m -го порядка; Λ – длина звуковой волны, λ – длина рентгеновской волны, θ_b – угол дифракции рентгеновского пучка. Т.е. дифракция на сверхрешетке приводит к образованию дополнительных рентгеновских дифракционных максимумов – сателлитов. Здесь обязательно надо выделить область рентгеноакустического резонанса – красивого динамического эффекта, который впервые наблюдался в Лауэ дифракции в условиях аномального прохождения рентгеновских лучей при определенном направлении волнового вектора и поляризации ультразвуковой волны. Эффект заключается в резонансном взаимодействии ультразвуковой волны и блоховской волны, определяющей расщепление дисперсионной поверхности. Рентгеноакустический резонанс в геометрии Лауэ вызывает подавление аномального прохождения рентгеновских лучей (эффект Бормана).

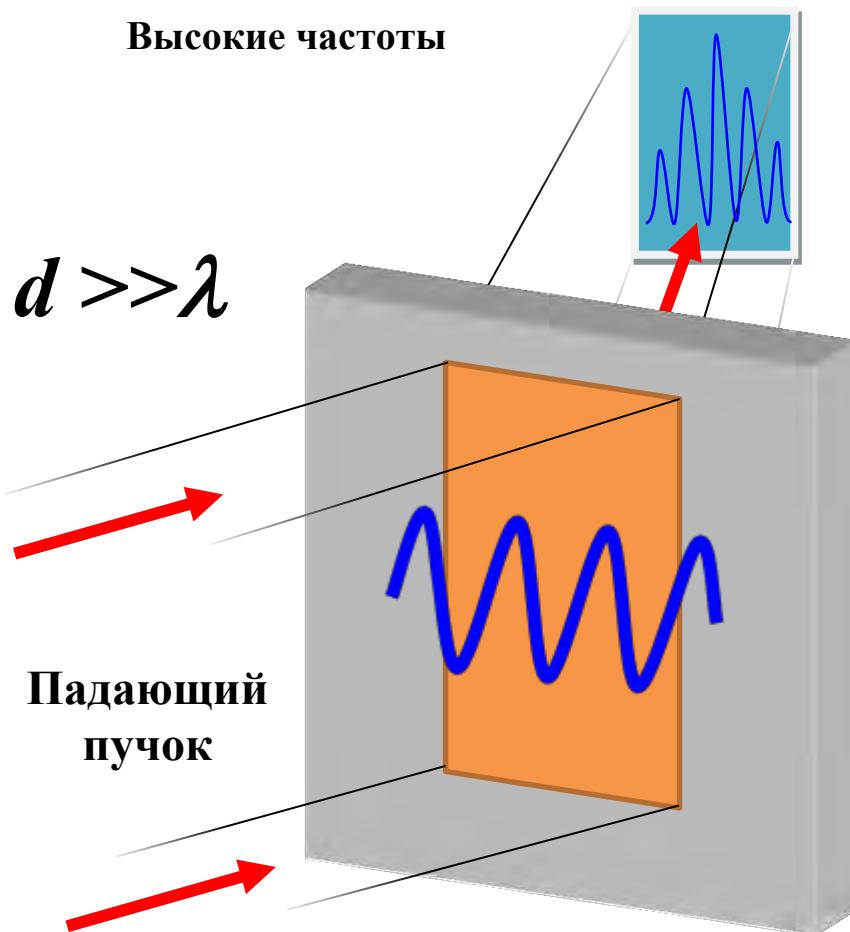


Рис. 2.22. Профили деформации, создаваемые ультразвуковыми колебаниями по сечению рентгеновского пучка.

Область средних частот ($\lambda \sim d$). В области средних частот упругая волна создает сильные пространственные неоднородности по ширине рентгеновского пучка (рис.2.23). Общий расчет дифракционных картин при таких условиях рентгеноакустических взаимодействий представляет достаточно трудоемкую задачу. Известны работы по модуляции рентгеновской волны с помощью таких колеблющихся кристаллов.

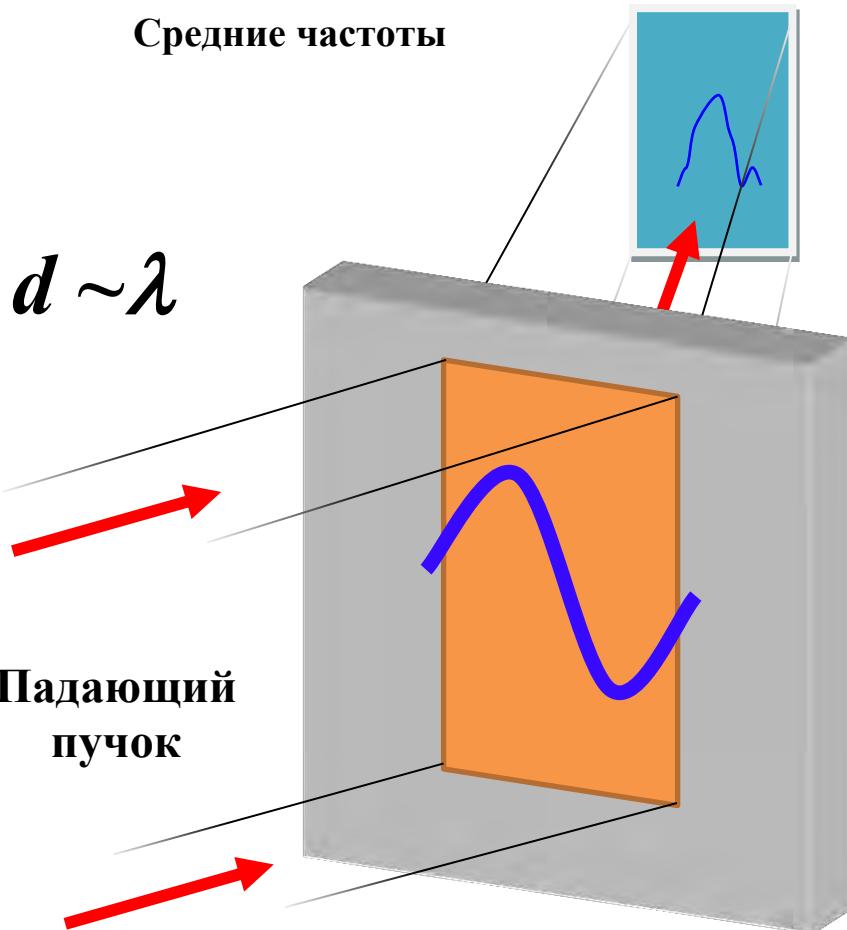


Рис. 2.23. Профили деформации, создаваемые ультразвуковыми колебаниями по сечению рентгеновского пучка.

Область низких частот ($\lambda \gg d$). Отличительная особенность этой области заключается в создании непериодической, регулярной (однородной или градиентной) деформации кристаллической решетки области дифракции рентгеновского пучка (рис.2.24).

Основное внимание в работе уделено именно указанной области: С точки зрения дифракционных эффектов эта область максимально близка к статической рентгеновской оптике, где перестройка рентгеновской схемы обычно осуществляется на основе поворота рентгенооптических элементов (за счет изменения угла падения рентгеновского пучка), при этом важным отличием является динамический характер изменения параметра кристаллической решетки. Т.е. ультразвуковая перестройка межплоскостного расстояния позволяет выполнять процедуру по перестройке рентгенооптической схемы, аналогичную повороту кристалла, но с совершенно другой скоростью.

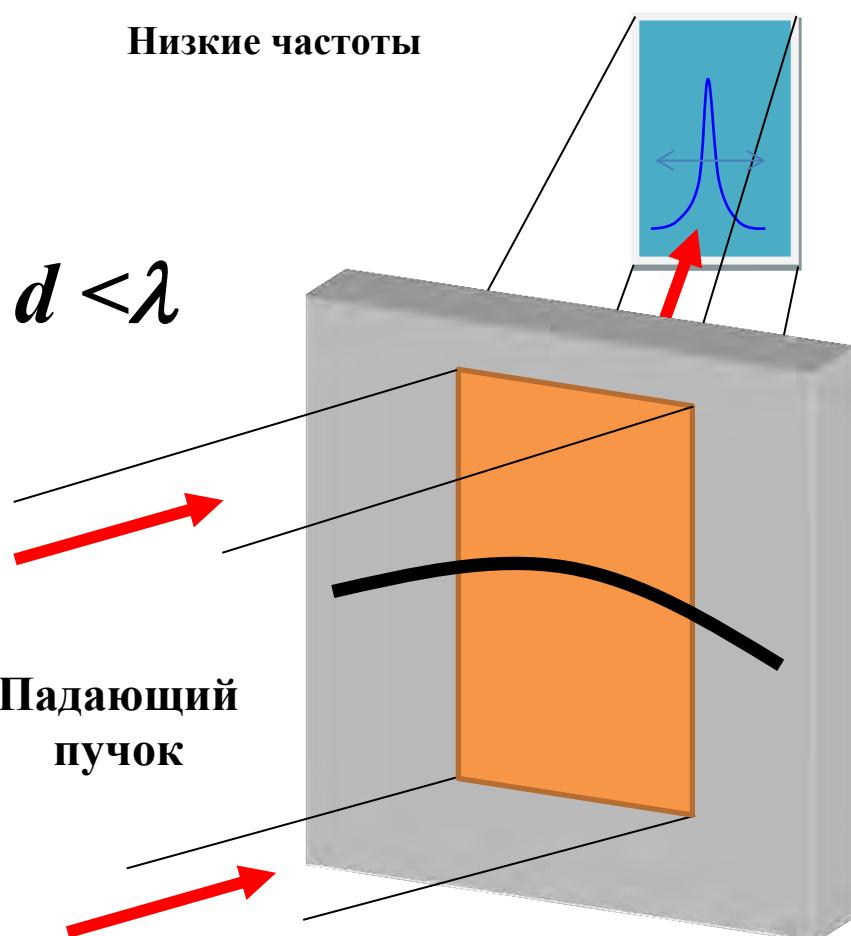


Рис. 2.24. Профили деформации, создаваемые ультразвуковыми колебаниями по сечению рентгеновского пучка.

2.4. Модернизация спектрометра ТРС для изучения внешних воздействий (ультразвуковые волны в кристаллах, электрическое поле): кристаллодержатели для подачи электрического сигнала на образцы, система возбуждения ультразвука

Для изучения внешних воздействий была проведена модификация спектрометра ТРС, заключающаяся в комплектации его вспомогательным оборудованием, необходимым для проведения экспериментальных работ, связанных с изучением поведения структуры кристаллов при воздействиях постоянного и переменного электрического поля, ультразвуковых колебаний и деформаций, и применения обнаруженных эффектов в качестве основы для развития методов структурной диагностики.

В составе дифрактометра можно выделить три основных компоненты. В первую очередь, оборудование для возбуждения и контроля ультразвуковых колебаний в кристаллах, основанное на генераторах высокочастотных колебаний, высокочастотном усилителе, многоканальном осциллографе, анализаторе спектра и другом вспомогательном контрольно-измерительном оборудовании (частотометры, вольтметры).

В качестве источника переменного электрического сигнала использовался генератор функций и сигналов произвольной формы Tektronix AFG3022B. Используемый генератор является двухканальным и обеспечивает разрешение при настройке частоты – 1 мкГц, амплитуды – 1 мВ в диапазоне 100 Гц- 10МГц, 0-20 В. Синусоидальный сигнал с одного из каналов генератора использовался для возбуждения рентгеноакустического резонатора и получения требуемых амплитуд ультразвуковых деформаций. Другой канал генератора использовался для создания синхроимпульсов и подачи на схему совпадения. Синхроимпульс представлял собой импульсный сигнал, синхронизированный по частоте с синусоидальным, с регулируемой задержкой по фазе. Для усиления электрического сигнала, произведенного генератором, применялся высокочастотный усилитель мощности Tabor 9250.

Для контроля частоты применялся частотомер, а визуализация формы сигналов осуществлялась с применением осциллографа.

Система, позволяла точно поддерживать частоту электромеханического резонанса, амплитуду ультразвуковых колебаний, и обеспечивать регистрацию дифрагированного излучения, как в интегральном по времени режиме, так и в режиме стrobоскопической регистрации.

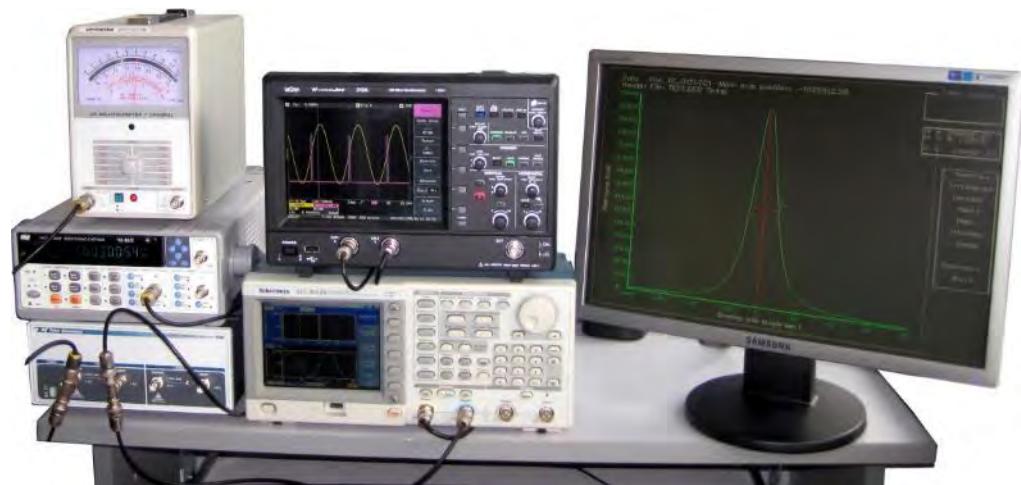


Рис 2.25. Система возбуждения и контроля ультразвука в кристаллах, синхронизированная с многоканальным анализатором

На рис. 2.25 представлен общий вид системы возбуждения и контроля колебаний в кристаллах.

Одним из важных компонентов системы возбуждения ультразвуковых колебаний в кристаллах и дифрактометра являются кристаллодержатели. Конструкция кристаллодержателей должна обеспечивать жесткое закрепление и точное позиционирование рентгеноакустического элемента на гониометрической системе спектрометра, подведение электрического сигнала высокой частоты центр пьезоэлектрической части рентгеноакустического резонатора, доступ для рентгеновского пучка ко всей поверхности кристалла в широком диапазоне углов и возможность наклона и перемещения кристалла. В соответствии с акустическими подходами крепление рентгеноакустического кристалла должно осуществляться в узловых точках, и при этом жесткость закрепления не должна деформировать

кристалл, вызывая тем самым изменения в дифракционном пике кристалла. Также важной составляющей конструкции кристаллодержателя является условие, при котором выступающие перед кристаллом части держателя не должны создавать помех для распространения рентгеновского пучка. На рис. 2.26-2.27 представлена серия изготовленных кристаллодержателей, которые использовались для проведения рентгенодифракционных экспериментов в геометрии Брэгга и Лауз.

Следующий компонент системы – регистрационный тракт, состоящий из стробоскопической одноканальной и многоканальной системы регистрации рентгеновского пучка. Одноканальная система была основана на схеме



Рис. 2.26 Кристаллодержатели для Брэгг-Лаузской геометрии.

совпадения Ortec universal coincidence 418a и также включала в себя усилитель, дискриминатор для предварительной обработки сигнала с

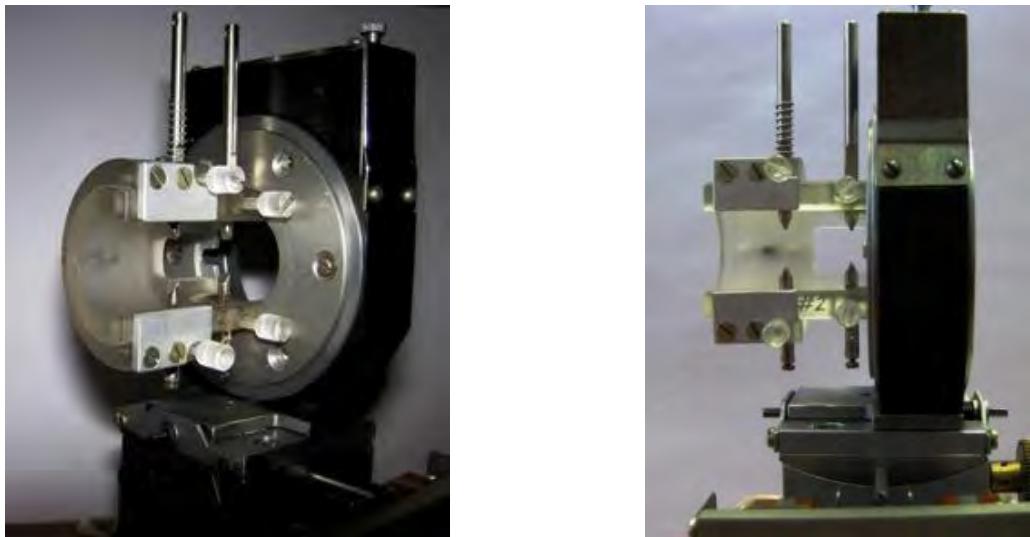


Рис. 2.27. Кристаллодержатель для рентгеноакустического резонатора, разработанный и изготовленный для проведения рентгенодифракционных экспериментов геометрии Брэгга.

детектора. Система совпадения была синхронизирована с задержкой по фазе с частотой колебания кристалла, что позволяло проводить измерения интенсивности дифрагированного пучка при любом интересующем исследователя значении фазы колебаний в пределах установленного на системе совпадения временного окна (как правило, не превышающим одной двадцатой доли периода колебаний). Т.е. позволяла стробоскопическим образом «замораживать» кристалл и наблюдать мгновенную деформацию в кристалле для любого значения фазы колебаний.

Многоканальная система регистрации рентгеновского пучка была основана на быстродействующем многоканальном анализаторе АСВ (анализатор стоячей волны) с возможностью развертки по времени. Многоканальный анализатор был специально изготовлен фирмой ООО «ИТЦ Радикон» по техническому заданию, разработанному автором настоящей работы, для проведения экспериментов по рентгеноакустическим взаимодействиям. В отличие от одноканальной системы в данном случае

интенсивность дифрагированного колеблющимся кристаллом измерялась за весь период колебаний, но при этом измеренные значения интенсивности для различных фаз колебаний распределялись для накопления по независимым каналам счета. Каждому из указанных каналов соответствовало определенное значение фазы, общее число каналов составляло полный период колебаний (рис. 2.28). В зависимости от частоты колебаний на многоканальном анализаторе могло быть задействовано от 20 до 655535 каналов, при этом минимально возможное время регистрации на один канал составляло 50 нс.

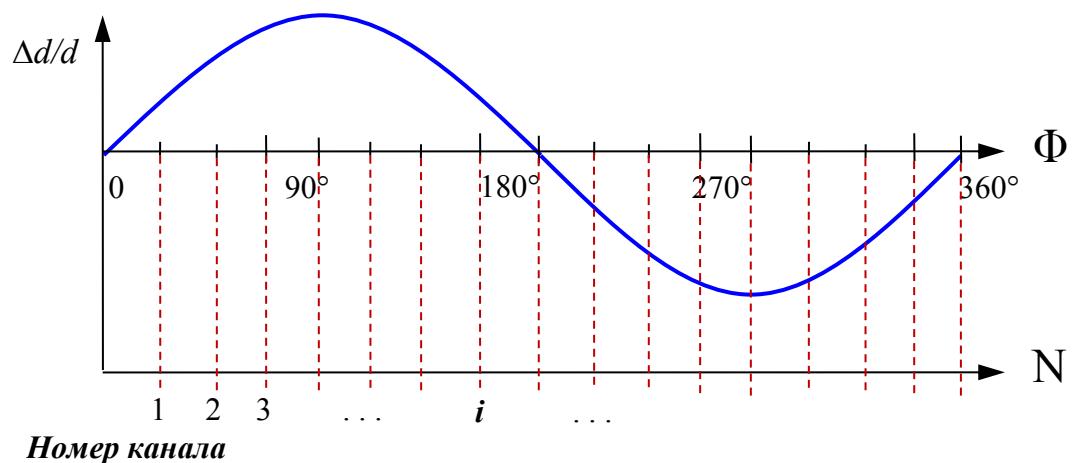


Рис. 2.28. Распределение каналов системы АСВ в зависимости от фазы колебаний.

Задачи многоканального анализатора АСВ – распределенный анализ периодического во времени модулированного рентгеновского сигнала для различных фаз колебаний (с использованием независимых счетных каналов). Таким образом, рентгеновский пучок модулируется с помощью рентгеноакустического кристалла, в котором ультразвуковые колебания создаются с помощью синусоидального электрического сигнала (опорного сигнала). Модулированный рентгеновский пучок регистрируется сцинтилляционным детектором, зарегистрированные импульсы накапливаются в одном из каналов, определенным фазой управляющего синусоидального сигнала, при которой был зарегистрирован каждый пришедший импульс. При этом, период колебаний разбит на заданное (плавающее) число каналов, определяя временное окно каждого канала.

Технические характеристики системы АСВ:

- Частоты управляющего синусоидального или импульсного сигнала 1 кГц – 250 кГц. Определение частоты опорного сигнала с точностью 1 Гц
- Переменное число каналов (в зависимости от частоты опорного сигнала).
- Максимальное количество задействованных при измерениях независимых каналов счета интенсивности рентгеновского пучка – 65535 канала.
- Минимальное количество задействованных при измерениях независимых каналов счета - не менее 20 при частоте 200 кГц.
- Минимальная ширина временного окна счета в один канал – не более $2,5 \cdot 10^{-7}$ сек (250 нс).
- Возможность установки размера временного окна для каждого канала (относительно полного периода колебаний).
- Программное обеспечение, позволяющее проводить необходимые настройки (выбор количества рабочих каналов, размер временного окна каждого канала, тип принимаемого сигнала, установки режимов работы детектора, установка режимов работы TTL –входа и выхода, уровень и длительность TTL импульса, программа калибровки детектора и выбора порогов детектирования).
- Режимы регистрации и накопления:
- Запись и хранение данных по всем каналам, накопленных за определенное время (временное окно устанавливается заранее). При этом время экспозиции каждого снимка может варьироваться в пределах от 2 микросекунд до 300 секунд.
- Накопление в режиме скользящего среднего (бегущего окна), при котором в каналах содержится информация, усредненная за предварительно заданный промежуток времени, отсчитываемый от последнего измерения.
- Временное кадрирование. Записи в память анализатора всех промежуточных значений интенсивности по каналам. Время экспозиции

каждого снимка может варьироваться в пределах от 2 микросекунд до 300 секунд. Длительность эксперимента при этом может составлять от 50 микросекунд до 3 часов.

- Возможность выборочного суммирования снимков.
- TTL выход, который выдает суммированный по определенным каналам сигнал.

Для создания электрических полей большой напряженности до 50 кВ/см применялось оборудование, основанное на высоковольтных источниках питания GWInsteek GPS-30300, Matsusada AU5-10 и кристаллодержателях, позволяющих подавать постоянное высокое напряжение на кристалл.

2.5. Особенности распространения ультразвука в анизотропных средах

Макроскопические свойства анизотропных сред могут заметно отличаться в зависимости от направления и скорости ультразвуковых волн в кристаллах и существенно зависят от направления распространения. Для каждого направления возможны три волны: и две поперечные квазипротодольная (чистые поперечные и чистая продольная).

Пренебрегая в первую очередь электрической проводимостью, а также теплопроводность и механическими потерями упругих деформаций для решения задачи о распространении акустических волн в кристаллах запишем уравнение движения в следующем виде:

$$\rho \frac{\partial^2 \omega_i}{\partial t^2} = f_i, \quad (2.16)$$

где f_i – компонента объемной силы в уравнении состояния для пьезоэлектрических кристаллов.

В задаче по распространению упругих волн в пьезоэлектрическом кристалле порядок электромагнитных поправок определяется отношением скоростей звука и света $(v/c)^2$. Для известных веществ эта величина не превышает 10^{-9} и характеризует ошибку, которая допускается, если воспользоваться квазистатическим приближением. В этом случае электрическое поле в пьезокристалле должно удовлетворять соотношению:

$$\text{rot } \mathbf{E} = 0, \text{ тогда } E_n = -\frac{\partial \varphi}{\partial x_n}, \quad (2.17)$$

φ - потенциал электрического поля.

Если полностью исключить наличие в кристалле свободных зарядов и магнитного поля, то все сводится к решению системы уравнений:

$$\begin{aligned} \rho \frac{\partial^2 \omega_i}{\partial t^2} &= C_{ijkl}^{E,S} \frac{\partial^2 \omega_k}{\partial x_j \partial x_l} + e_{nij}^{u,S} \frac{\partial^2 \varphi}{\partial x_n \partial x_j}, \\ 4\pi e_{mkl}^{u,S} \frac{\partial^2 \omega_k}{\partial x_m \partial x_l} - \epsilon_{mn}^{u,S} \frac{\partial^2 \varphi}{\partial x_m \partial x_n} &= 0 \quad (2.18) \end{aligned}$$

Решение (2.18) ищется в виде плоских однородных гармонических волн смещения и потенциала, причем, в силу (2.17), эквипотенциальные поверхности будут совпадать с волновыми поверхностями, а электрическое поле будет совпадать с направлением волновой нормали

$$\omega_i = \omega_{i0} \exp[i(wt - k_j x_j)],$$

$$\varphi = \varphi_0 \exp[i(wt - k_j x_j)], \quad (2.19)$$

где k – волновой вектор;

w – круговая частота.

Обозначим n_i – единичный вектор волновой нормали, совпадающий с k по направлению.

Подстановка (2.19) в (2.18) дает систему уравнений:

$$\rho w^2 \omega_i = k^2 c_{ijkl}^{E,S} n_j n_l n_k + k^2 e_{nij}^{u,S} n_n n_j \varphi,$$

$$k^2 e_{mkl}^{u,S} n_m n_l n_k \omega_i = k^2 \varepsilon_{mn}^{u,S} n_m n_n \varphi \quad (2.20)$$

Система уравнений (2.20) распадается на два независимых уравнения (относительно φ и v), которые связывает через смещение ω :

$$\varphi = \frac{(e_{mkl}^{u,S} n_m n_l) \omega_k}{\varepsilon_{rs}^{u,S} n_r n_s},$$

$$(\Gamma_{ik}^E + \mathbf{K}_{ik} - \rho v^2 \delta_{ik}) \omega_k = 0, \quad (2.21)$$

$$\Gamma_{ik}^E = c_{ijkl}^{E,S} n_j n_l; \quad \mathbf{K}_{ik} = \frac{\Psi_i \Psi_k}{\varepsilon}; \quad \Psi_i = e_{mkl}^{u,S} n_m n_l; \quad \varepsilon = \varepsilon_{mn}^{u,S} n_m n_n \quad (2.22)$$

Γ_{ik}^E – тензор Кристоффеля. Введем второй такой же тензор $\Pi_{ik} = \Gamma_{ik}^E + \mathbf{K}_{ik}$.

Из симметрии тензоров Γ_{ik}^E и \mathbf{K}_{ik} следует симметрия тензора Π_{ik} , и дисперсионное уравнение для системы уравнений (2.22), записанное в виде

$$|\Pi_{ik} - \rho v^2 \delta_{ik}| = 0 \quad (2.23)$$

будет иметь три собственных решения (действительных и положительных). Соответственно, в направлении n , соответствующему тензору Π_{ik} , скорости для трех упругих волн будут определяться решением уравнения (2.23), а взаимно ортогональные линейные поляризации этих волн

будут определяться собственными векторами, определяемых собственным значениям матрицы (2.23). Среди указанных собственных значений для потенциала нет решения, и, следовательно, волна потенциала не может быть свободной в пьезоэлектрическом кристалле, и представляет собой связанную волну, которая сопровождает упругую.

Здесь важно отметить, что тензор K_{ik} обращается в 0 при отсутствии пьезоэлектрического эффекта, и остается только тензор Γ_{ik}^E , определяющий распространение упругих волн в кристалле и состоящий из компонент тензора C_{ijkl}^E .

При наличии пьезоэлектрического эффекта кристаллы приобретают дополнительную электрическую жесткость. В этом случае тензор Π_{ik} состоит из дополнительных упругих модулей

$$\Pi_{ijkl} = C_{ijkl}^{E,S} + \frac{e_{pij}^{u,S} n_p e_{qkl}^{u,S} n_q}{\epsilon_{jk}^{u,S} n_j n_k} \quad (2.24)$$

Величины C_{ijkl} , определённые только для плоских упругих волн, зависят также от направления и не являются настоящими упругими модулями.

Т.е. из-за дополнительных объемных сил, которые пропорциональны скорости распространения упругих волн, кристалл становится более жестким.

Распространение ультразвука в кристаллах

Рассмотрим теорию распространения упругих волн в пьезоэлектриках на примере кристалла класса симметрии 32, поскольку этому классу относится значительное число известных кристаллов пьезоэлектриков, в том числе кристаллический кварц. У кристаллов, принадлежащих этому классу, ось Z является осью третьего порядка, а ось X - осью второго порядка. Условия симметрии налагают ограничения на вид материальных тензоров, сокращая число их компонент. Приведем формы матриц для тензоров различных рангов кристаллов класса 32.

Тензоры второго ранга в тензорных обозначениях, например, диэлектрической проницаемости ϵ_{ij}

$$\begin{vmatrix} \epsilon_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{11} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{33} \end{vmatrix} \quad (2.25)$$

Тензоры третьего ранга в матричных обозначениях – тензоры пьезомодулей e_{ij} и h_{ij}

$$\begin{vmatrix} e_{11} & -e_{11} & 0 & e_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -e_{14} & -e_{11} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{vmatrix} \quad (2.26)$$

и тензоры пьезоэлектрических постоянных d_{ij} и g_{ij}

$$\begin{vmatrix} d_{11} & -d_{11} & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -d_{14} & -2d_{11} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{vmatrix} \quad (2.27)$$

Отличие (2.26) и (2.27) вызвано разными правилами перехода к матричным обозначениям для напряжений и деформаций.

Тензоры четвертого ранга в матричных обозначениях: тензор модулей упругости c_{ij}

$$\begin{vmatrix} c_{11} & c_{12} & c_{13} & c_{14} & 0 & 0 \\ c_{12} & c_{11} & c_{13} & -c_{14} & 0 & 0 \\ c_{13} & c_{13} & c_{33} & 0 & 0 & 0 \\ c_{14} & -c_{14} & 0 & c_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & c_{44} & c_{14} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & c_{14} & \frac{c_{11} - c_{12}}{2} \end{vmatrix} \quad (2.28)$$

и тензор упругих постоянных s_{ij}

$$\begin{vmatrix} s_{11} & s_{12} & s_{13} & s_{14} & 0 & 0 \\ s_{12} & s_{11} & s_{13} & -s_{14} & 0 & 0 \\ s_{13} & s_{13} & s_{33} & 0 & 0 & 0 \\ s_{14} & -s_{14} & 0 & s_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & s_{44} & 2s_{14} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 2s_{14} & 2(s_{11} - s_{12}) \end{vmatrix} \quad (2.29)$$

Уменьшение числа независимых коэффициентов в (2.25), (2.26), (2.28) упрощает выражения для компонент тензоров Γ_{ik}^E и K_{ik} , которые для кристаллов класса 32 определяются уравнениями:

$$\begin{aligned}\Gamma_{11} &= \tilde{c}_{11}n_1^2 + c_{66}n_2^2 + c_{44}n_3^2 + 2c_{14}n_2n_3, \\ \Gamma_{12} &= (c_{12} + c_{66})n_1n_2 + 2c_{14}n_1n_3, \\ \Gamma_{13} &= 2c_{14}n_1n_2 + (c_{13} + c_{44})n_1n_3, \\ \Gamma_{22} &= \tilde{c}_{66}n_1^2 + c_{11}n_2^2 + c_{44}n_3^2 - 2c_{14}n_2n_3 \\ \Gamma_{23} &= c_{14}(n_1^2 - n_2^2) + (c_{13} + c_{44})n_2n_3, \\ \Gamma_{33} &= c_{44}(n_1^2 + n_2^2) + c_{33}n_3^2,\end{aligned}\tag{2.30}$$

$$\begin{aligned}\psi_1 &= e_{11}n_1^2 - e_{11}n_2^2 - e_{14}n_2n_3, \\ \psi_2 &= -2e_{11}n_1n_2 + e_{14}n_1n_3, \\ \psi_3 &= 0, \\ \varepsilon &= \varepsilon_{11}^u(n_1^2 + n_2^2) + \varepsilon_{33}^u n_3^2.\end{aligned}\tag{2.31}$$

Следующим шагом необходимо выбрать конкретные направления в кристалле, которые удобны как для расчетов, так и для приготовления образцов и проведения измерений скоростей звука. Удобный набор для тригональных кристаллов представляет совокупность направлений X, Y, Z и направление в плоскости YZ, составляющее угол 45° с осями Y и Z. Распишем уравнение (2.25) для этих случаев, используя условие нормировки $n_1^2 + n_2^2 + n_3^2 = 1$, направление [100] – вдоль оси X:

$$\begin{vmatrix} c_{11}^E + \frac{e_{11}^2}{\varepsilon_{11}^u} - \rho v^2 & 0 & 0 \\ 0 & \frac{c_{11}^E - c_{12}^E}{2} - \rho v^2 & c_{14}^E \\ 0 & c_{14}^E & c_{44}^E - \rho v^2 \end{vmatrix} \begin{pmatrix} \omega_1 \\ \omega_2 \\ \omega_3 \end{pmatrix} = 0\tag{2.32}$$

Это уравнение имеет три корня:

$$\rho v_1^2 = c_{11}^E + \frac{e_{11}^2}{\varepsilon_{11}^u}, \rho v_{2,3}^2 = \frac{c_{44}^E + c_{66}^E}{2} \pm \sqrt{\left(c_{66}^E - c_{44}^E\right)^2 + 4c_{14}^2}\tag{2.33}$$

Для каждого корня направление вектора смещений определяются из соотношений для компонент смещения, которые выводятся из (2.32) путем

поочередной подстановки в это выражение корней (2.33). Из уравнения типа (2.32) нельзя найти вектор $[\omega_1, \omega_2, \omega_3]$, а можно найти только его направление, при этом условие нормировки остается произвольным. Подстановка дает следующие результаты: для скорости V_1 вектор $[\omega_1, \omega_2, \omega_3]$ направлен вдоль [100], то есть волна является чистой продольной модой (направление фазовой и групповой скоростей совпадают), а ось X является продольной нормалью (осью); для волн V_2 и V_3 (соответственно, знак «+» и знак «-» в (2.33) и далее в аналогичных формулах), $\omega_1 = 0$, т.е. смещения этих волн лежат в плоскости YZ, причем справедливо соотношение:

$$\operatorname{tg} \vartheta = \frac{\omega_3}{\omega_2} = - \left(\frac{c_{44}^E - c_{66}^E}{2c_{14}^E} \pm \frac{1}{2} \sqrt{\left(\frac{c_{66}^E - c_{44}^E}{c_{14}^E} \right)^2 + 4} \right), \quad (2.34)$$

где ϑ – угол, показывающий отклонение вектора смещения от оси Y.

Здесь и далее знаки «+» и «-» перед радикалом в (2.34) соответствуют «+» и «-» перед радикалом в выражении для V_2 и V_3 . Волны V_2 и V_3 являются, соответственно, быстрой и медленной чистыми сдвиговыми волнами, а ось X является также поперечной нормалью. Обозначим,

$$V_1 = V_{t1}, V_2 = V_{t2}, V_3 = V_{t3} \quad (2.35)$$

Направление [010] – вдоль оси Y

$$\begin{vmatrix} \frac{c_{11}^E - c_{12}^E}{2} + \frac{e_{11}^2}{\epsilon_{11}^u} - \rho v^2 & 0 & 0 \\ 0 & c_{11}^E - \rho v^2 & -c_{14}^E \\ 0 & -c_{14}^E & c_{44}^E - \rho v^2 \end{vmatrix} \begin{pmatrix} \omega_1 \\ \omega_2 \\ \omega_3 \end{pmatrix} = 0 \quad (2.36)$$

Корни этого уравнения имеют вид:

$$\rho V_1^2 = c_{66}^E + \frac{e_{11}^2}{\epsilon_{11}^u}, \quad \rho V_{2,3}^2 = \frac{c_{44}^E + c_{66}^E}{2} \pm \frac{1}{2} \sqrt{(c_{66}^E - c_{44}^E)^2 + 4c_{14}^2} \quad (2.37)$$

Для скорости V_1 поляризация $[\omega_1, \omega_2, \omega_3]$ направлена вдоль [100], это чисто сдвиговая волна с поляризацией по оси X, а ось Y в этом случае

является поперечной нормалью. Векторы смещения волн V_2 и V_3 имеют компоненту по X, равную нулю, следовательно, они лежат в плоскости YZ и направлены под углом ϑ к оси Y, в соответствии с выражением:

$$\operatorname{tg} \vartheta = \frac{\omega_3}{\omega_2} = - \left(\frac{c_{44}^E - c_{11}^E}{2c_{14}^E} \pm \frac{1}{2} \sqrt{\left(\frac{c_{11}^E - c_{44}^E}{c_{14}^E} \right)^2 + 4} \right). \quad (2.38)$$

Решения V_2 и V_3 являются, соответственно, квазипротодольной и квазисдвиговой волнами. Обозначим,

$$V_1 = V_{t3}, V_2 = V_{t4}, V_3 = V_{t6} \quad (2.39)$$

Направление [001] – вдоль оси Z

$$\begin{vmatrix} c_{44}^E - \rho v^2 & 0 & 0 \\ 0 & c_{44}^E - \rho v^2 & 0 \\ 0 & 0 & c_{33}^E - \rho v^2 \end{vmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \omega_1 \\ \omega_2 \\ \omega_3 \end{pmatrix} = 0 \quad (2.40)$$

Корни этого уравнения имеют вид:

$$\rho v^2 = c_{33}^E, \rho v^2 = c_{44}^E. \quad (2.41)$$

Для скорости V_1 поляризация $[\omega_1, \omega_2, \omega_3]$ направлена по [001], это чисто продольная мода с поляризацией по оси Z. Корни V_2 и V_3 совпадают. Отсюда следует, что ось Z является продольной акустической осью, сдвиговые волны являются вырожденными, а их поляризация, строго перпендикулярная оси Z, может иметь произвольное направление в плоскости XY. Обозначим,

$$V_1 = V_{t2}, V_2 = V_3 = V_{t4} \quad (2.42)$$

Направление [011] – под 45° к осям Y и Z

$$\begin{vmatrix} \left(c_{66}^E + c_{44}^E + 2c_{14}^E \right) & 0 & 0 \\ + \frac{(e_{11} + e_{14})^2}{\varepsilon_{11}^u + \varepsilon_{33}^u} - 2\rho v^2 & \left(c_{11}^E + c_{44}^E - \right) & \left(c_{44}^E + c_{13}^E \right) \\ 0 & \left(2c_{14}^E - 2\rho v^2 \right) & \left(-c_{14}^E \right) \\ 0 & \left(c_{44}^E + c_{13}^E \right) & \left(c_{33}^E + c_{44}^E \right) \\ & -c_{14}^E & -2\rho v^2 \end{vmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \omega_1 \\ \omega_2 \\ \omega_3 \end{pmatrix} = 0 \quad (2.43)$$

Найдем корни этого уравнения

$$\begin{aligned}\rho v_1^2 &= \frac{1}{2} \left(c_{66}^E + c_{44}^E + 2c_{14}^E + \frac{(e_{11} + e_{14})^2}{\varepsilon_{11}^u + \varepsilon_{33}^u} \right), \\ \rho v_{2,3}^2 &= \frac{1}{4} \left(c_{11}^E + c_{33}^E + 2(c_{44}^E - c_{14}^E) \pm \sqrt{(c_{33}^E - c_{11}^E + 2c_{14}^E)^2 + 4(c_{44}^E - c_{14}^E + c_{13}^E)^2} \right) \quad (2.44)\end{aligned}$$

Поляризация волны $v_1 [\omega_1, \omega_2, \omega_3]$ направлена по [100], то есть данная волна является чисто поперечной. Это значит, что данное направление является поперечной нормалью. Вектор смещения волн v_2 и v_3 лежит в плоскости YZ и направлен под углом ϑ к оси Y в соответствии с выражением

$$tg \vartheta = \frac{\omega_3}{\omega_2} = \frac{c_{33}^E - c_{11}^E + 2c_{14}^E}{2(c_{44}^E + c_{13}^E - c_{14}^E)} \pm \frac{1}{2} \sqrt{\left(\frac{c_{33}^E - c_{11}^E + 2c_{14}^E}{c_{44}^E + c_{13}^E - c_{14}^E} \right)^2 + 4} \quad (2.45)$$

Обозначим,

$$v_1 = v_{t7}, \quad v_2 = v_{t3}, \quad v_3 = v_{t5} \quad (2.46)$$

Соотношения (2.46, 2.50, 2.54, 2.57) позволяют по измеренным (в соответствующих этим выражениям направлениях) фазовым скоростям звука и известной плотности определить полный набор упругих модулей кристалла класса 32. Представим эти соотношения компактно, используя обозначения (2.48, 2.52, 2.53, 2.56)

$$\begin{aligned}c_{11}^E &= \rho v_{t1}^2 - \frac{e_{11}^2}{\varepsilon_{11}^u}, \quad c_{33}^E = \rho v_{t2}^2, \quad c_{44}^E = \rho v_{t4}^2, \\ c_{14}^E &= \sqrt{c_{66}^E c_{44}^E - \rho^2 v_{t1}^2 v_{t2}^2}, \quad (2.47)\end{aligned}$$

$$(c_{11}^E - 2c_{14}^E + c_{44}^E)(c_{44}^E + c_{33}^E) - (c_{13}^E + c_{44}^E - c_{14}^E)^2 = 4\rho^2 v_{t3}^2 v_{t5}^2 \quad (2.48)$$

Последнее равенство позволяет определить c_{13} . Определить все упругие модули $\tilde{n}_{\alpha\beta}^E$ из (2.48) можно при условии, что известны пьезомодули и коэффициенты диэлектрической проницаемости. При высокой точности измерений скорости звука пьезомодули можно рассчитать из ультразвуковых данных, если воспользоваться выражениями

$$\rho v_{t4}^2 + \rho v_{t6}^2 = c_{44}^E + c_{11}^E, \quad \rho v_{t1}^2 + \rho v_{t2}^2 = c_{44}^E + c_{66}^E, \quad (2.49)$$

которые позволяют получить c_{11}^E и c_{66}^E , а сами пьезомодули находятся из первого выражения в (2.33) или (2.37), а также (2.44). Однако нахождение пьезомодулей из ультразвуковых измерений сопровождается значительными вычислительными погрешностями, так как в основе этого алгоритма лежит нахождение величины $\Delta c = c_{\alpha\beta}^D - c_{\alpha\beta}^E$, которая может быть выражена через коэффициент электромеханической связи. Можно показать, что, например, при $k = 0.1$, а это является типичным значением для k , $\Delta c = 0.01 c_{\alpha\beta}^E$. Отсюда следует, что $c_{\alpha\beta}^D$ отличается от $c_{\alpha\beta}^E$ всего на 1 %, и относительная погрешность их разности, то есть величины Δc , в 100 раз превышает относительную погрешность величины $c_{\alpha\beta}^E$. При точности измерения скорости звука 10^{-4} погрешность пьезомодулей будет не менее 2 %. Точность измерения пьезомодулей резонансными методами значительно выше.

Следующие соотношения можно получить на основе свойств корней кубического уравнения, и они могут быть проверочными:

$$2\rho(v_{t3}^2 + v_{t5}^2) = c_{11}^E + c_{33}^E + 2c_{44}^E - 2c_{14}^E,$$

$$\rho^2 v_{t4} v_{t6} = c_{11}^E c_{44}^E - c_{14}^2, \quad (2.50)$$

$$2\rho v_{t7}^2 = c_{66}^E + c_{44}^E + 2c_{14}^E$$

В случае температурных исследований кроме зависимости от температуры скоростей звука, диэлектрической проницаемости, пьезомодулей, необходимо измерить коэффициенты теплового расширения, которые позволяют вычислить поправки на температурное изменение линейных размеров образца и плотности. Это особенно существенно при получении температурных коэффициентов.

*Расчеты характеристик распространения и выбор материалов для
электроакустических преобразователей и рентгенооптических элементов
составных рентгеноакустических резонаторов*

На основе изложенного выше подхода были проведены расчеты характеристик распространения материалов-пьезоэлектриков кварца, лангатата и парателлурита и материалов, широко используемых для изготовления рентгеновской оптики – кремния и германия. Некоторые результаты расчетов продемонстрированы на рис 2.29 –2.31.

Фазовые скорости [км/с], TeO_2 (.), XY

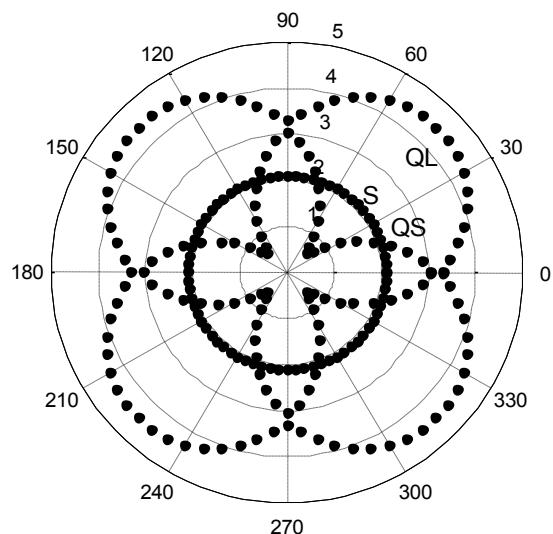


Рис. 2.29. Диаграмма поверхности фазовых скоростей (км/с) в плоскости XY кристалла TeO_2 ; Q – квази, L – продольные, S – попречные волны.

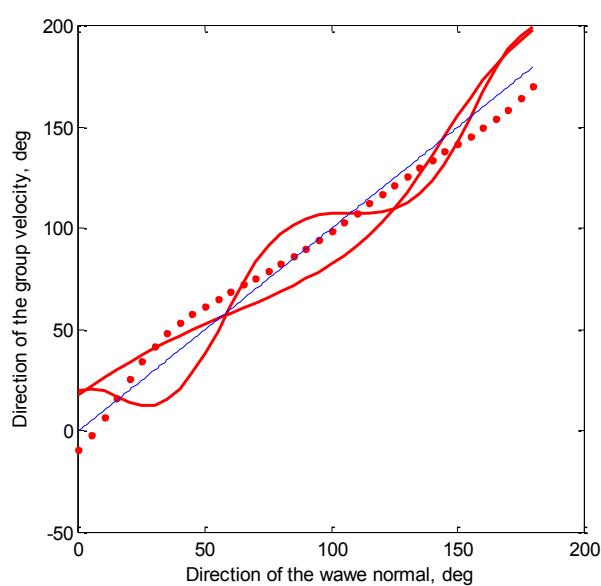


Рис. 2.30. Диаграмма зависимости направления распространения групповой скорости от направления волновой нормали. ЛГТ, плоскость YZ.

Макросимметрию кристаллов Ge и Si описывает точечная группа симметрии $t\bar{3}m$. За упругие свойства кристаллов этой группы симметрии отвечают тремя независимыми значениями упругих модулей c_{ik} .

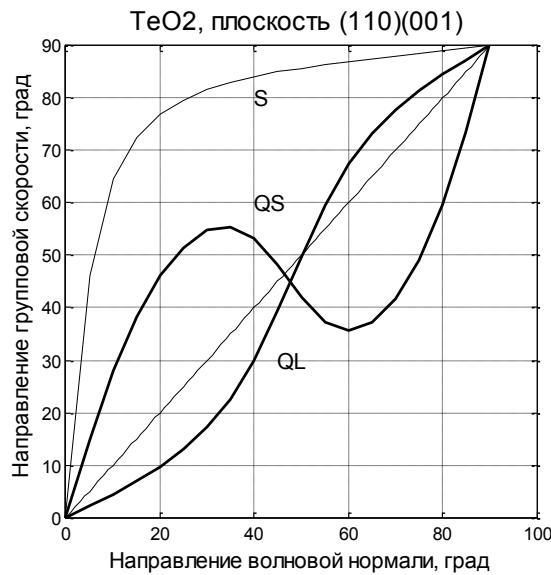


Рис. 2.31. Диаграмма зависимости направления распространения групповой скорости от направления волновой нормали. TeO_2 , плоскость YZ .

Фазовые и групповые скорости, а также отклонения потока энергии от волновой нормали k и поляризации были рассчитаны для (110), (010) и (001) - основных кристаллографических плоскостей. На рис. 2.32 а, б и в приведены результаты расчетов диаграммы фазовых скоростей в плоскостях - (001), (010) и (110) для кристалла германий.

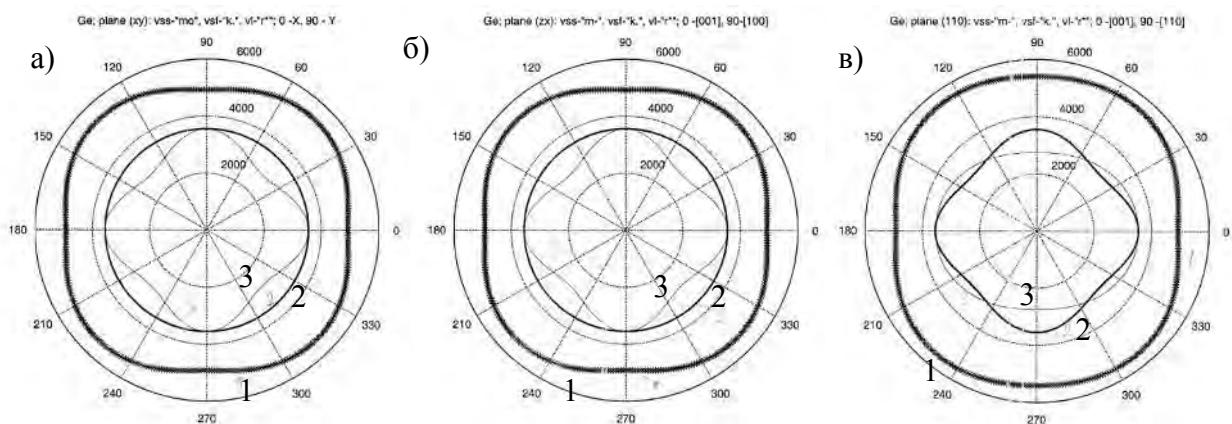


Рис. 2.32. Диаграмма поверхности фазовых скоростей для Ge в плоскостях а - (001), б - (010), в - (110); на а, б: волна квазипродольная (1), чистая поперечная (2), квазипоперечная (3); на в: волна квазипродольная (1), квазипоперечная (2,3).

Результаты расчета диаграмм фазовых скоростей в плоскостях (010) и (110) кристалла Si приведены на рис. 2.33 а и б.

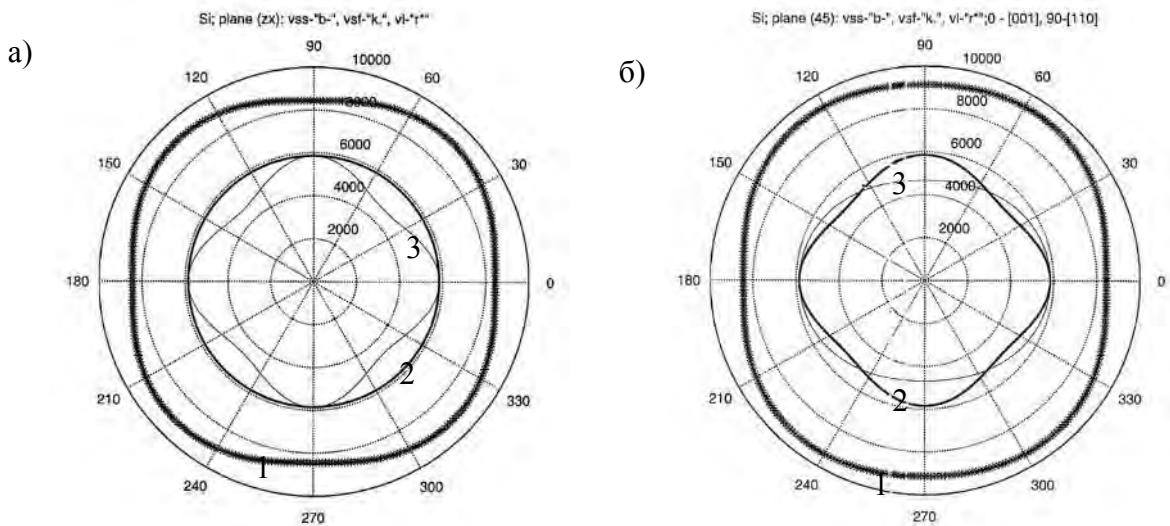


Рис. 2.33. Диаграмма поверхности фазовых скоростей
а) Si(010), волна квазипродольная(1), чистая поперечная (2),
квазипоперечная (3); б) Si(110) квазипродольная(1), квазипоперечная (2 ,3).

Расчетные зависимости направления групповых скоростей (звукового луча) от направления волновой нормали для тех же плоскостей кристалла германия представлены на рис. 2.34 а, б. А на рис. 2.35 а и б такие же зависимости приведены для кристалла кремния. Рисунки наглядно демонстрируют максимальную анизотропию квазипоперечной волны,

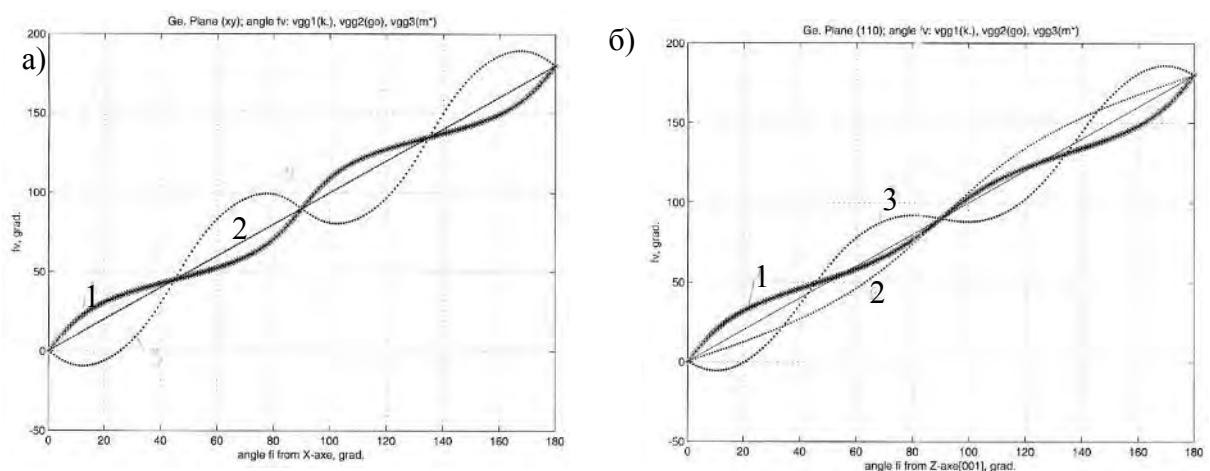


Рис. 2.34. Зависимости направления групповых скоростей от
направления волновой нормали, а) Ge (001), волна квазипродольная (1),
чистая поперечная(2) и квазипоперечная (3); б) Ge (110),
квазипродольная (1), квазипоперечная (2,3).

которая соответствует быстрой сдвиговой волне, распространяющейся в плоскости (110). Поток энергии отклонен на $19,1^\circ$ от направления, заданного углом 66° относительно оси Z в плоскости (110). В кристалле кремния отклонение потока энергии для направления 66° относительно оси Z будет $17,1^\circ$. Важно отметить, что и в кремнии и в германии распространяющаяся в плоскостях (001) и (010) быстрая сдвиговая волна, представляет собой чисто поперечную волну, т.к. угол между направлением смещения и направлением распространения равен всегда 90° . Данные диаграммы угловой зависимости фазовых скоростей, показывающие неоднородность, т.е. анизотропию упругих свойств кристалла, являются отражением кристаллической симметрии. Германий и кремний относятся к кристаллам кубической симметрии, и для них в плоскости (100) имеются направления с равными скоростями поперечных волн. Это особые направления [100] и [010], которые носят название акустических осей. Вдоль этих направлений могут свободно распространяться поперечные волны с произвольной поляризацией.

Если рассматривать медленную сдвиговую волну, то в плоскости (001) поток энергии максимально отклоняется на угол $26,4^\circ$ в германии для направления, 68° относительно оси X. Отклонение потока энергии в кремни для этого же направления составит угол $23,7^\circ$ в той же плоскости (001).

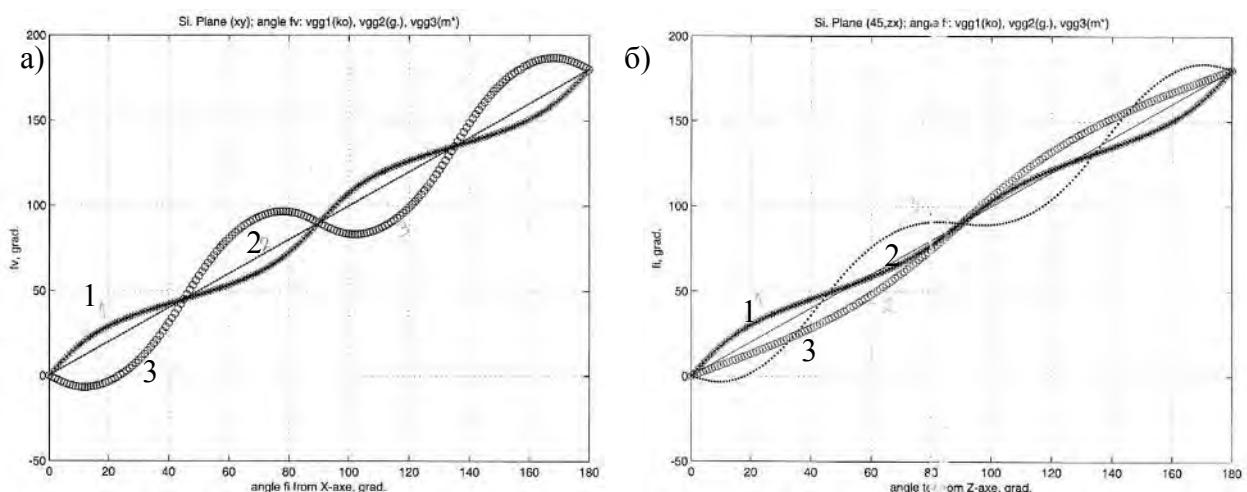


Рис. 2.35. Зависимости направления групповых скоростей от направления волновой нормали, а) Si (001), волна квазипродольная (1), чистая поперечная (2) и квазипоперечная (3); б) Si (110), квазипродольная (1), квазипоперечная (2,3).

Проведенные исследования и построенные диаграммы анизотропии упругих свойств позволяют провести расчет и выбрать оптимальное направление для возбуждения длинноволновых колебаний в различных кристаллах, которые предполагается в дальнейшем использовать в качестве рентгеноакустических резонаторов.

Для работ по созданию рентгеноакустических резонаторов были выбраны наиболее исследованные материалы – кристаллы кварца, лангасита, парателлурита, германия и кремния.

В соответствии с проведенными расчетами были изготовлены кристаллические пластины требуемых размеров и ориентации, представляющие собой ультразвуковые резонаторы. Они должны были обеспечивать возбуждение чистой моды при резонансе продольных по длине ультразвуковых колебаний на основной частоте, что позволяет в дальнейшем их использовать для создания рентгеноакустических элементов.

2.6. Резонаторы: изгибный резонатор, продольный резонатор, составной и монолитный резонаторы

Возбуждение длинноволновых колебаний в кристаллах

При распространении упругих волн в ограниченной среде возникают стоячие волны. Приложение в определенном направлении электрического поля к пьезоэлектрическому кристаллу, приводит к возникновению механических деформаций также в определенных направлениях. В случае приложения переменного электрического поля с частотой, равной частоте собственных колебаний (механического резонанса) пластины пьезоэлектрического кристалла, в ней возникают достаточно интенсивные колебания. При резонансе амплитуда деформации может быть увеличена на несколько порядков (величина добротности резонатора) по сравнению с бегущей волной, когда частота внешнего поля не равна собственной частоте колебаний кристаллической пластины.

Для реализации сильных рентгеноакустических взаимодействий в длинноволновой области т.е. для достижения максимальной чувствительности рентгеновской дифракции к ультразвуковым искажениям необходимо создание условий, при которых деформация кристаллической решетки, вызванная ультразвуковой волной, будет наибольшей в направлении дифракционного вектора рентгеновской волны.

При дифракции рентгеновских лучей в геометрии Брэгга (на отражение) необходимо возбуждение ультразвуковой волны, деформация которой нормальна поверхности, отражающей рентгеновский луч. Здесь наиболее эффективными являются колебания изгиба или толщинные колебания.

При дифракции рентгеновских лучей в геометрии Лауэ (на просвет) кристаллографические плоскости, на которых происходит дифракция рентгеновских лучей, перпендикулярны поверхности рабочей пластины. Здесь весьма эффективны продольные колебания вдоль поверхности пластины.

Резонаторы продольных длинноволновых ультразвуковых колебаний.

Рассмотрим очень тонкий и очень узкий стержень, когда влияниями деформаций, возникающими при колебаниях, в направлении ширины и толщины можно пренебречь, и рассматривать простую одномерную задачу для продольных колебаний. Также для удобства дальнейшего решения предполагаем, что пьезоэлектрические свойства стержня малы и пренебрегаем ими. Обозначим S_{ii} деформацию в направлении длины, а T_{ii} обозначим упругое напряжение и предположим его монопольное действие на стержень. Выразим упругое напряжение T_{ii} с помощью деформации S_{ii} :

$$T_{ij} = c_{ijkl} S_{kl}, \quad (i, j, k, l = 1, 2, 3),$$

А деформацию определим из уравнения:

$$S_{ij} = \frac{1}{2} (\partial u_i / \partial x_j + \partial u_j / \partial x_i),$$

как функцию смещения u_i . Уравнение движения, описывающие продольные колебания стержня, с учетом, что $T_{ij} + f_j = \rho (dv_j / dt)$ будет иметь вид:

$$u_{i,ii} - 1/c_i^2 (\partial^2 u_i / \partial t^2) = \mu(x_i, t), \quad (2.51)$$

где $\mu(x_i, t)$ – сила, которая вызывает вынужденные колебания, c_i – скорость упругой волны по длине стержня (в направлении длины). Введем следующее обозначение в уравнение (2.51):

$$u_{i,ii} = \partial^2 u_i / \partial x_i^2.$$

И запишем область пространства и времени, для которой определено дифференциальное уравнение (2.51):

$$d_1 < x_i < d_2, \quad t > 0.$$

Величины d_1 и d_2 в рассматриваемом случае, когда стержень совершает продольные колебания, являются координатами плоскостей x_i ограничивающих стержень. Определим граничные условия по краям сформированного выше пространства (когда $x_i = d_1$ и $x_i = d_2$), к примеру, значения скалярной частных производных $\partial u_i / \partial x_i$ величины и саму величину u_i и т. д. определим, как независящие от времени величины. Тогда, в общем

случае, определенные таким образом граничные условия можно представить в следующем виде:

$$\begin{aligned} m_1 u_i + n_1 u_{i,t} &= f_1(t) \text{ при } x_i = d_1 \text{ и } t > 0, \\ m_2 u_i + n_2 u_{i,t} &= f_2(t) \text{ при } x_i = d_2 \text{ и } t > 0. \end{aligned} \quad (2.52)$$

m_1 и m_2 – это константы.

Далее необходимо определить те условия, которые описывают рассматриваемую систему в начальном состоянии в определенный момент времени:

$$\begin{aligned} u_i &= g(x_i) \text{ при } t = 0; d_1 < x_i < d_2; \\ \partial u_i / \partial t &= h(x_i) \text{ при } t = 0; d_1 < x_i < d_2. \end{aligned} \quad (2.53)$$

В общем случае функция $\mu(x_i, t)$ вместе с функциями $f_1(t), f_2(t), g(x_i), h(x_i)$ описывают силы, вызывающие колебание системы. Причиной появления свободных колебаний являются начальные условия $g(x_i), h(x_i)$, а функция $\mu(x_i, t)$ вместе с граничными условиями $f_1(t), f_2(t)$ определяет режим установившихся вынужденных колебаний системы.

Теперь рассмотрим случай, свободного от внешних сил стержня, т.е. $f_1(t) = f_2(t) = \mu(x_i, t) = 0$. При этом задача определения колебаний стержня в продольном направлении может быть заменена задачей по определению собственных колебаний стержня, и дифференциальное волновое уравнение, соответствующее (2.51), в этом случае принимает более простой вид:

$$u_{i,ii} - 1/c_i^2 (\partial^2 u_i / \partial t^2) = 0. \quad (2.54)$$

Рассмотрим теперь бесконечно длинный стержень: граничные условия в этом случае не имеют никакого смысла, и, следовательно, поступательную волну, которая распространяется по стержню в направлении оси x_i , можно представить следующим выражением:

$$u_i = A \cos(\xi_i x_i - \omega t),$$

где ω и волновое число ξ_i (вдоль оси x_i) представляют собой положительные величины и $\omega = c_i \xi_i$ или что $\xi_i^2 = \omega^2/c_i^2$.

Дисперсионная кривая представляет собой графическое изображение, показывающее соотношения между циклической частотой ω и волновым

числом ξ ; крутизну кривой выражает соответствующая скорости распространения волны константа c_i . Для нашего случая кривая зависимости ω от ξ представляет собой линейную зависимость, и демонстрирует, что зависимость скорости распространения волны от частоты отсутствует.

Границные условия принимают следующий вид, если стержень жестко закреплен в середине, а края остаются абсолютно свободными:

$$[u_{1,1}]_{x_1=\pm l} = 0. \quad (2.55)$$

Алгоритмы метод Бернулли в данном случае оказываются очень удобными для решения (2.51) - уравнения движения. В первую очередь надо найти решение, которое удовлетворяет граничным условиям, а начальные условия надо принимать только из найденного решения. Дальнейшие предположения основываются на том, что функция $u_1(x_1, t)$ представлена в виде произведения двух функций: функции координаты x_1 и функции времени.

$$u_1(x_1, t) = w(x_1)\tau(t), \quad (2.56)$$

Подставляя в волновое уравнение (2.54) выражение (2.56) получаем в результате систему из двух дифференциальных линейных уравнения:

$$\partial^2 w / \partial t^2 + (\omega^2 / c_i^2)w = 0, \quad (2.57)$$

$$\partial^2 \tau / \partial t^2 + \omega^2 \tau = 0. \quad (2.58)$$

Решение (2.57) будем искать в виде двух характеристических функций:

$$w_h^{(a)}(x_1) = B_h \sin \xi_h x_1, \quad (2.59)$$

$$w_h^{(s)}(x_1) = A_h \cos \xi_h x_1, \quad (2.60)$$

Здесь ξ_h – волновые числа, а A_h и B_h – константы, определяющие амплитуды колебаний. Первое решение отвечает асимметричным колебаниям, а второе – симметричным.

Результаты основаны на предположении о закреплении стержня в центре, и тогда справедливо что $[w_h(x_i)]_{x_i=0} = 0$. Такому условию может удовлетворять только решение уравнения (2.19), которое и будет рассмотрено далее.

Учитывая граничные условия (2.55) получим следующее соотношение, описывающее волновое число ξ_h :

$$\xi_h^2 = h^2 \pi^2 / 4l^2 = \omega_h^2/c_i^2, \quad (2.61)$$

где h - целое число, отвечающее за гармонику колебания (1, 3, 5,) а ω_h – циклическая частота для гармоники h -го порядка.

Тогда частота собственных колебаний для гармоники h -го порядка:

$$f_h = \omega_h / 2\pi = \xi_h c_i / 2\pi = h c_i / 4l. \quad (2.62)$$

Также было предположено, что резонатор совершает чисто упругие колебания. Перейдем теперь от упругого тела к пьезоэлектрическому материалу. Для этого в уравнении движения $T_{ij,i} + f_f = \rho dv_j/dt$ выразим линейное приближение ускорения dv_j/dt , в виде функции смещения:

$$dv_j/dt = \partial v / \partial t = \partial^2 u_j / \partial t^2 = \ddot{u}_j$$

пусть при этом, стержень остается свободным от действия объемных сил т.е. ($f_f = 0$). Тогда уравнение движения принимает следующий вид:

$$T_{ij,i} = \rho \ddot{u}_j \quad (2.63)$$

В декартовой (прямоугольной) системе координат для стержня, совершающего продольные колебания, в направлении его длины существуют только силы, вызывающие упругое напряжение T_{11} , а по остальным направлениям составляющие тензора напряжения равны 0. Колебания стержня в продольном направлении могут быть возбуждены приложении синусоидального напряжения, которое подается на электроды, покрывающие перпендикулярные оси x_3 поверхности стержня, (тогда $E_3 \neq 0, E_1 = E_2 = 0$), или перпендикулярные оси x_1 ($E_1 \neq 0, E_2 = E_3 = 0$).

Рассмотрим первую конфигурацию, в этом случае продольные колебания возникают приложении электрического поля по оси x_3 (в направлении толщины стержня). Если уравнение состояния представить в следующем виде:

$$D_k = d_{kij} T_{ij} + \epsilon_{ki}^T E_i, \quad (2.64)$$

$$S_{kl} = s_{klji} T_{ij} + d_{ikl} E_i, \quad (2.65)$$

то используя выражение (2.65) и сокращенное обозначение тензоров второго, третьего и четвертого рангов можно определить упругое напряжение в стержне в направлении его длины:

$$T_1 = S_{11} / s_{11}^E - d_{31} E_3 / s_{11}^E = u_{111} / s_{11}^E - d_{31} E_3 / s_{11}^E. \quad (2.66)$$

Также для продольных колебаний запишем уравнение движения:

$$u_{111} / s_{11}^E - d_{31} E_{31} / s_{11}^E = \rho \ddot{u}_1 \quad (2.67)$$

Нанесенные на боковые поверхности перпендикулярно оси x_3 электроды, представляют собой, эквипотенциальные поверхности, для которых напряженность электрического поля одинакова по всей поверхности независимо от координаты x_1 . Т.е. производная E_{31} равна нулю и уравнение движения (2.67) приводится к виду:

$u_{111} / s_{11}^E = \rho \ddot{u}_1, \quad (2.68)$ соответствующему уравнению (2.54). Тогда резонансная частота определяется выражением

$$f_h = h / 4l (1 / \rho s_{11}^E)^{1/2}. \quad (2.69)$$

Запишем уравнение состояния для случая, приложения электрического поля вдоль оси x_1 т.е. по длине стержня, для возбуждения продольных колебаний, за исходные можно взять:

$$E_1 = -g_{11} T_1 + \beta_{11}^T D_1. \quad (2.70)$$

$$S_1 = s_{11}^D T_1 + g_{11} D_1, \quad (2.71)$$

из уравнения (2.30) следует:

$$T_1 = S_1 / s_{11}^D - g_{11} D_1 / s_{11}^D = u_{111} / s_{11}^D - g_{11} D_1 / s_{11}^D, \quad (2.72)$$

Тогда уравнение движения можно представить в следующем виде

$$u_{111} / s_{11}^D - g_{11} D_{11} / s_{11}^D = \rho \ddot{u}_1. \quad (2.73)$$

Так как выполняются равенства:

$$D_{11} = 0 \text{ и } u_{111} / s_{11}^D = \rho \ddot{u}_1. \quad (2.74)$$

то выражение:

$$f_h = h / 4l (1 / \rho s_{11}^D)^{1/2}. \quad (2.75)$$

будет определять резонансную частоту.

Напряжение на электродах можно записать как

$$V = \int_{-l}^l E_1 dx_1. \quad (2.76)$$

Если электроды закорочены, то $E_1 = 0$ в (2.71), и

$$-g_{11} T_1 + \beta_{11}^T D_1 = 0 \quad (2.77)$$

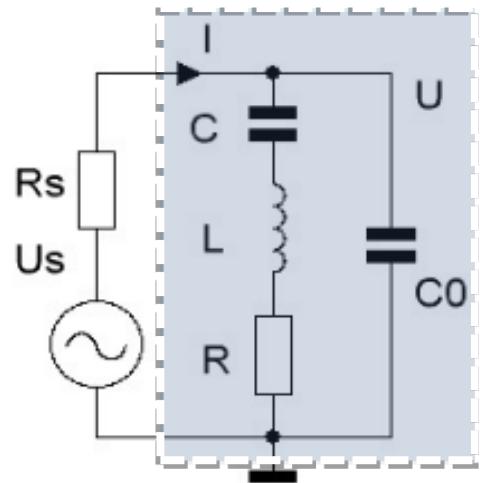
Подставляя D_1 из (2.77) в (2.70) получим

$$S_1 = s_{11}^D T_1 + g_{11}^2 T_1 / \beta_{11}^T = T_1 (s_{11}^D + g_{11}^2 / \beta_{11}^T). \quad (2.78)$$

Исходя из соотношений $s_{11}^D + g_{11}^2 / \beta_{11}^T = s_{11}^E$, так что $T_1 = S_1 / s_{11}^E = u_{1,1} / s_{11}^E$; уравнение движения при этом будет аналогично (2.68), а резонансная частота будет определяться формулой (2.69).

Здесь при выводе формулы частоты резонанса пьезоэлектрических стержней для случая продольных колебаний, предполагалось, что колебания не затухают т.е. отсутствуют какие-либо потери из-за внутреннего трения и т.д, и можно пренебречь влиянием массы электродов и их упругими свойствами.

Продольные колебания являются простейшим типом колебаний, которые можно получить в кварцевой пластинке. Для этого из кристалла вырезают пластинку в таком направлении, чтобы пьезоэлектрический эффект для нее определялся эффективной пьезоэлектрической постоянной d_{21} , и покрывают обе главные грани пластинки металлическими электродами. На практике такие пластинки обычно подвешиваются с помощью проволочек, припаянных к металлизированным поверхностям. Эти же проволочки служат также в качестве электрических контактов с поверхностью кристалла. Если пластинка длинная и тонкая (стержень), то основная резонансная частота ее выражается формулой $f = 2l^{-1}(\rho s_{11}^E)^{-0.5}$, где l – длина кристаллического стержня, ρ – плотность и s_{11}^E – модуль упругой податливости, обратный модулю Юнга вдоль длины кристаллического стержня. Резонансная частота – это частота, соответствующая самому



*Рис. 2.36. Эквивалентная
электрическая схема
пьезокристалла.*

низкому импедансу. Импеданс такого стержня эквивалентен импедансу цепи, состоящей из двух емкостей, индуктивности и сопротивления (рис. 2.36). Импеданс такой цепи, если пренебречь активным сопротивлением, является чисто реактивным. Эта цепь имеет резонансную частоту f_R , антрезонансную частоту f_A и представляет собой практически емкостную нагрузку. Резонансная и антрезонансная частоты выражаются формулами

$$f_R = (2\pi)^{-1}(L_1 C_1)^{-0.5}, f_A = (2\pi)^{-1}(L_1 C_1)^{-0.5}$$

$$\text{Полагая, } f_A^2 / f_R^2 = (C_0 + C_1) / C_0 \text{ или } (f_A^2 - f_R^2) / f_R^2 = C_1 / C_0 = 1/r$$

где r – отношение емкости C_0 , обусловленной диэлектрической проницаемостью продольно зажатого кристалла, к емкости C_1 , обусловленной реакцией движения кристалла. При измерениях на низких частотах получается сумма емкостей $C_0 + C_1$.

Определив величину $\Delta f = f_A - f_R$ по формулам:

$$k = d_{31} / (\epsilon_{33}^T s_{11}^E / 4\pi)^{1/2} \text{ и}$$

$$k^2 = (\pi^2 \Delta f / 4 f_R) [1 + (4 - \pi^2)/4 \cdot (\Delta f / f_R) + (\pi^2 - 4)/4 \cdot (\pi^2/4) \cdot (\Delta f / f_R)^2 + \dots],$$

мы можем выразить все элементы эквивалентной схемы через пьезоэлектрическую постоянную d_{31}' , диэлектрическую проницаемость свободного кристалла ϵ_{33}^T , постоянную гибкости s_{11}^E (обратную модулю Юнга вдоль длины стержня) и его геометрические размеры:

$$C_0 = \epsilon_{33}^{LC} l l_w \cdot 1,11 \cdot 10^{-12} / 4\pi l_t \Phi,$$

$$C_1 = (8d_{31}'^2 / \pi^2 s_{11}^E) (l l_w / l_t) \cdot 1,11 \cdot 10^{-12} \Phi,$$

$$L_1 = (\rho l_t l_w l / 8) (s_{11}^E / l_w d_{31})^2 \cdot 9 \cdot 10^{11} \text{ Гн},$$

где

$$\epsilon_{33}^{LC} = \epsilon_{33}^T (1 - k^2) = \epsilon_{33}^T - 4\pi d_{21}'^2 / s_{11}^E,$$

l , l_w и l_t – соответственно длина, ширина и толщина кристаллического стержня в сантиметрах и ρ – плотность.

По мере увеличения ширины кристаллического стержня собственная частота его становится ниже вследствие влияния связи с поперечными колебаниями; эта связь определяется через коэффициент Пуассона для кристалла. Для такого кристаллического материала, как кварц, связь с

колебаниями сдвига вдоль грани может осуществляться также через постоянную гибкости s_{24} (для пластинки X-реза с длиной, направленной вдоль оси y); благодаря этому растяжение (сжатие) по длине приводит к сдвигу, деформирующему грань пластинки из прямоугольника в ромб. Колебания сдвига вдоль грани связаны с колебаниями изгиба. Это видно из зависимости резонансной частоты от отношения ширины пластинки к ее длине для пластинки 0° X-реза с длиной, направленной вдоль оси y (см. рис. 2.37). Кривая частоты основного резонанса продольных колебаний по длине обозначена 1, кривая частоты резонанса продольных колебаний по ширине – 4, кривая частоты резонанса колебаний сдвига вдоль грани – 3. При отношении ширины к длине от 0,8 до 1,0 частота колебаний сдвига вдоль грани расщепляется на две частоты вследствие связи с какими-то другими колебаниями, по-видимому, с колебаниями изгиба по толщине. Кривая 2 на рис. 2.58 показывает, что колебания сдвига вдоль грани могут только слабо возбуждать вторую гармонику изгиба, но когда частота совпадает с частотой продольных колебаний, связь становится сравнительно сильной.

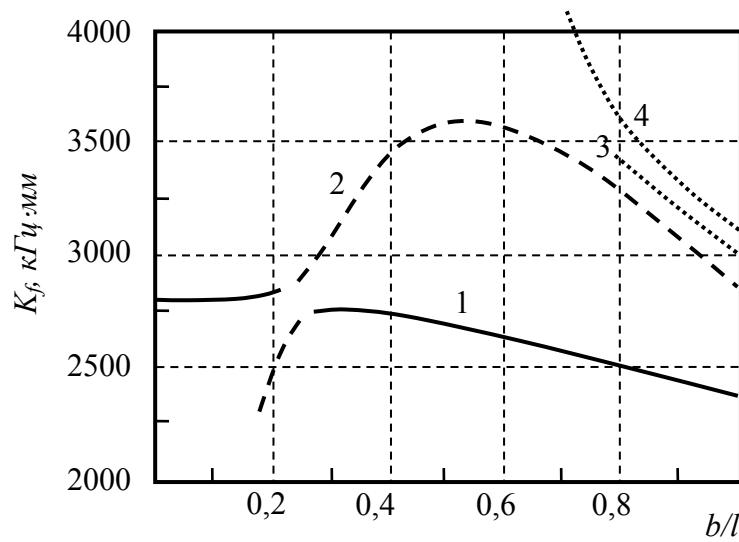


Рис. 2.37. Резонансные частоты пластинок 0° X-реза с длиной, направленной вдоль оси y , в зависимости от отношения ширины пластинки к длине.

Если ориентировать пластинку таким образом, чтобы длина ее составляла угол $-18,5^\circ$ с осью y , что отвечает направлению минимального значения модуля Юнга, то можно показать, что для такой пластинки

постоянная гибкости s'_{24} исчезает. Спектр частоты такой пластинки, получившей обозначение $-18,5^\circ X$ -среза показан на рис. 2.38. Как можно видеть, колебания сдвига и вторая гармоника изгиба возбуждаются очень слабо и не мешают применению такой пластинки в фильтрах.

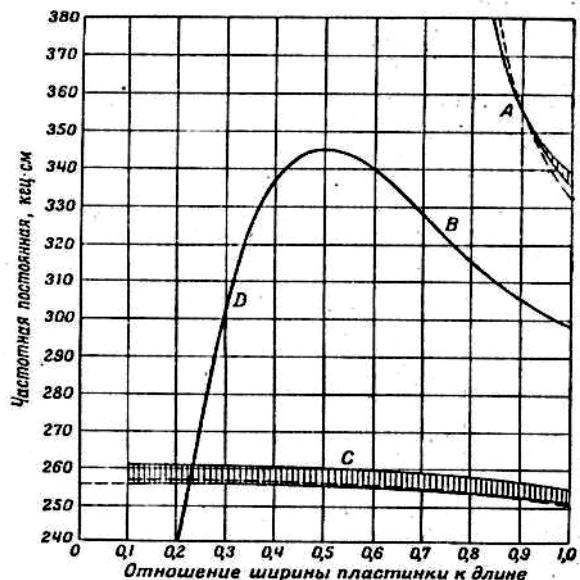


Рис. 2.38. Резонансные частоты пластинок $-18,5^\circ X$ -среза в зависимости от отношения ширины пластины к длине.

Продольно колеблющиеся пластинки обычно монтируются путем припаивания в узловых линиях проводников к серебряным электродам, нанесенным на поверхность пластиинки рис. 2.39. Эти выводы служат и для крепления и для электрического контакта.



Рис. 2.39. Схема резонатора продольных колебаний, электродов и направления электрического поля. Границы A и B плоскопараллельны.

Используя результаты настоящего раздела можно, например, вычислить частотные постоянные для пьезоэлектрических резонаторов из кварца, при возбуждении продольных колебаний по длине пластины. Они составляют 2720 кГц/мм для пластинок 0° X-среза с длиной, направленной вдоль оси у и 2554 кГц/мм для пластинок – $18,5^\circ$ X-среза. Представляют интерес также пластины $+5^\circ$ -среза ввиду особо высокой термостабильности. Частотная постоянная для этих пластин равна 2815 кГц/мм.

Резонаторы изгибных колебаний.

Другой простой тип колебаний, который применяется в низкочастотном диапазоне, это колебания изгиба. В этом случае применяются два типа этих колебаний: колебания изгиба по ширине пластинки и колебания изгиба по толщине пластинки (используются биморфные кристаллические элементы). Колебания изгиба по ширине возбуждаются при помощи двух пар электродов. Частота колебаний длинной тонкой пластинки определяется соотношением

$$f = m^2 l_w / (2\pi(12l^2)^{1/2} (s'_{22}\rho)^{1/2}),$$

где l и l_w – соответствующие длина и ширина пластинки в сантиметрах, s'_{22} – постоянная гибкости, обратная модулю Юнга и направлении длины пластинки, ρ – плотность и m – корень трансцендентного уравнения. Для длинной, тонкой и узкой пластинки, свободной с обоих концов, как это обычно и бывает, величины m для первых гармоник следующие: $m_1 = 4,73$; $m_2 = 7,85$; $m_3 = 11,00$. По мере увеличения отношения ширины к длине вращательная энергия начинает играть более важную роль и изменяет величину m . В работе Мэзона [321] было показано, что влияние вращательной инерции приводит к изменению величины m . Для пластинок различных срезов кварца, работающих на изгиб, по мере увеличения отношения ширины пластинки к ее длине, частота асимптотически приближается к частоте пластинки, приведенной в сдвиговые колебания.

Для получения колебаний изгиба пластинки включаются в схему с помощью четырех проводов, присоединенных в узловых точках пластинки

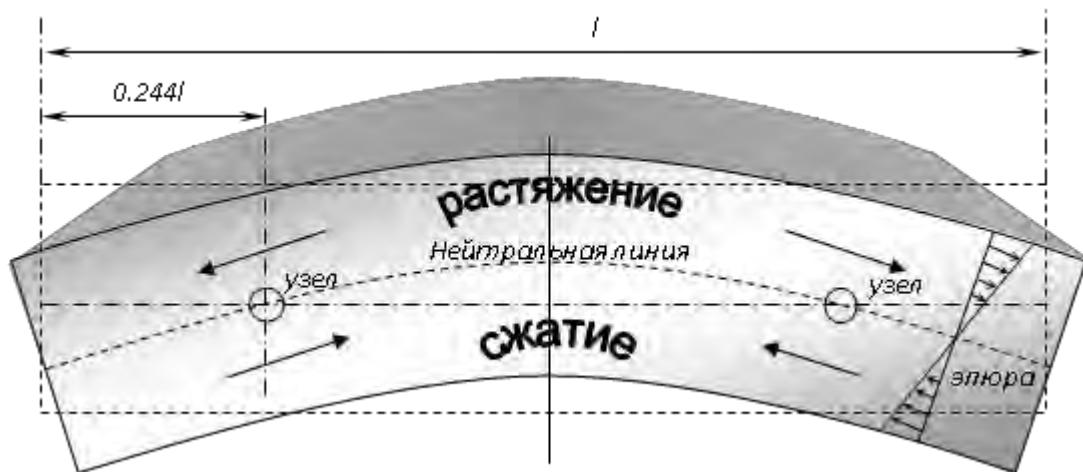


Рис. 2.40. Схематичное изображение изогнутого кристалла.

на расстоянии от каждого конца, равном $0,224$ ее длины (рис. 2.40). Отношение емкостей оказывается в $128/9\pi^2$ раз больше, чем для той же пластиинки, совершающей продольные колебания по длине. Описанные пластиинки применяются в диапазоне частот от 10 до 50 кГц.

Для получения колебаний изгиба по толщине применяются две тонкие пластиинки, соединенные вместе для образования биморфного элемента (рис. 2.41). Они применяются для получения самых низких частот вплоть до 900 Гц и используются для стабилизации врачающихся механизмов.

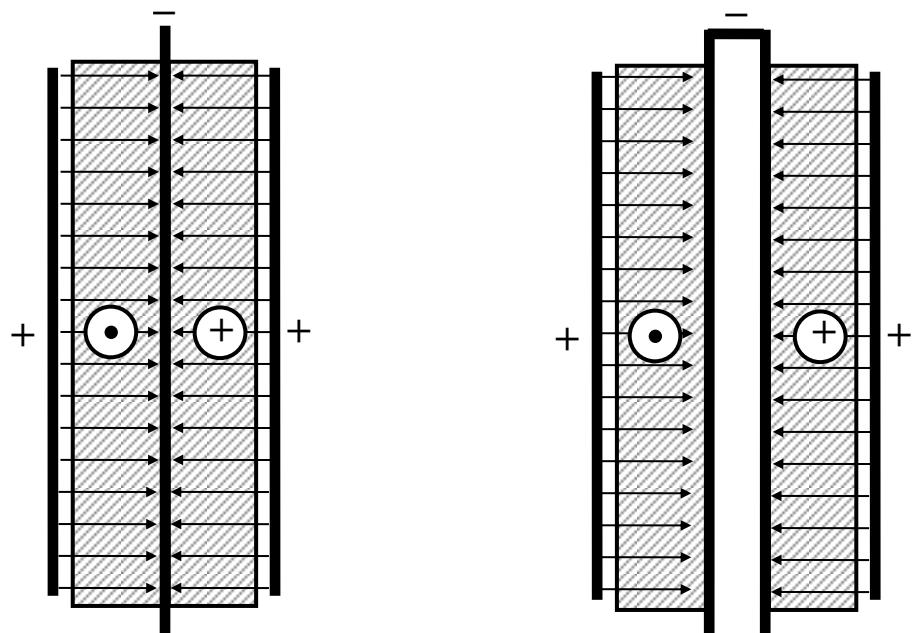


Рис. 2.41. Расположение электродов для возбуждения колебаний изгиба (поперечные сечения пластины и стержня) а – в биморфном, б – в щелевом пьезоэлементах.

Основы поиска оптимальных параметров рентгеноакустического резонатора

Вследствие того, что кристаллы, традиционно используемые в рентгеновской оптике, не обладают пьезоэлектрическим эффектом, а пьезоэлектрические кристаллы не всегда способны обеспечить высокое совершенство структуры по всей поверхности кристаллической пластинки, применяемой в качестве акустического резонатора, т.е. для использования указанных рентгенооптических кристаллов для реализации рентгеноакустического взаимодействия наиболее рационально использование составного резонатора, представляющего акустически связанные пластины пьезоэлектрического кристалла преобразователя и рентгенооптического кристалла. При этом возможно также и применение монолитного резонатора, состоящего целиком из кристалла-пьезоэлектрика (например, из кварца, лангасита или лангатата). Схемы составного и монолитного резонаторов представлены на рис. 2.42.

При проведении исследований в качестве пьезоэлектрического кристалла преобразователя были выбраны кристаллы кварца, также в некоторых случаях применялись кристаллы ниобата лития, лангасита и лангатата, а в качестве рентгенооптических кристаллов – кристаллы кварца, парателлурита, ниобата лития, германия и кремния. Составные рентгеноакустические резонаторы имели вид двух склеенных торцами кристаллических пластин, монолитный резонатор представлял единую пластину, с частично нанесенными электродами.

На первом этапе работ качестве рентгенооптической части рентгеноакустического резонатора были выбраны пластины германия и кремния. Далее на их примере изложены основные подходы, применяемые для создания рентгеноакустических элементов с применением более широкого спектра кристаллов (парателлурит, лангатат, ниобат лития и т.д) Сначала параметры пластин выбирались, исходя из рентгеновских параметров – выбирались яркие рефлексы. Таковыми для германия и кремния являются

кристаллографические плоскости (111) и (220). Поэтому была выбрана конфигурация пластин с длиной вдоль [110] и нормалью к плоскости пластин вдоль [111].

Дальнейшие размеры пластин определялись исходя из размеров лабораторных рентгеновских пучков после монохроматора 0.1-1 мм шириной и 1-12 мм высотой. Последний параметр определял ширину пластин, а длины пластин выбиралась не менее чем 10 раз больше ширины проекции рентгеновского пучка. Зная длину кристаллов, упругие постоянные кремния и германия и используя с учетом выбора направления эффективного распространения ультразвука, были определены длины и резонансные частоты рентгенооптических пластин. Были выбраны 2 частоты – 130 кГц и 160 кГц.

Толщины пластин выбирались, исходя из возможности работать в режиме Лауэ. Если ограничиться значением $\mu t < 10$, то толщина германиевой

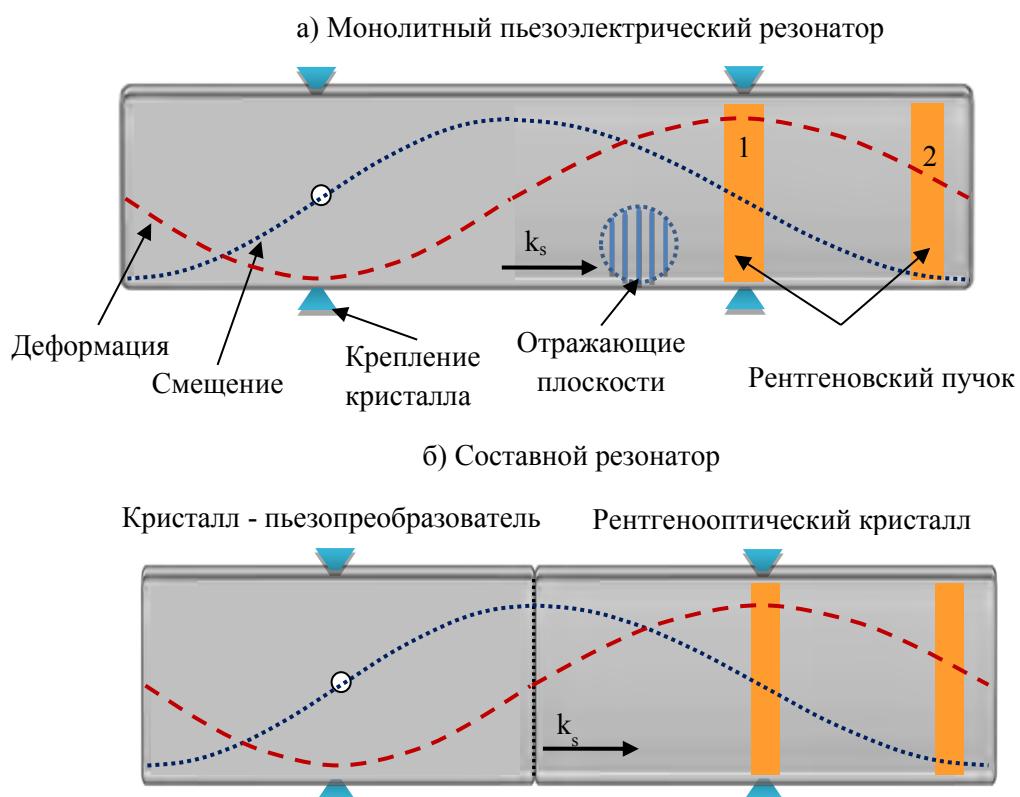


Рис. 2.42. а) схема монолитного резонатора и **б)** составного резонатора для Лауэ дифракции. 1-рентгеновский пучок в области 1) постоянной и 2) градиентной деформации кристаллической решетки

пластины должна быть менее 0.4 мм. При выборе длины пластин необходимо руководствоваться изложенным выше подходом: соотношения размеров связываются с возбуждением дополнительных мод колебаний. Обычно эти дополнительные моды являются паразитными. Исключение составляет изгибная мода, которую можно использовать в режиме дифракции Брэгга с использованием рефлекса (111).

Выбор рабочих параметров пьезоэлектрического кристалла-преобразователя и составного рентгеноакустического кристалла

На основе проведенных расчетов определялись параметры пьезоэлектрического кристалла-преобразователя. Ширина и толщина пластины пьезоэлектрического кристалла-преобразователя выбирались близким к соответствующим размерам рентгенооптического кристалла. Толщина составляла величину 0,5-1 мм, ширина 8-15 мм. Длина кристалла-преобразователя рассчитывалась, исходя из условия совпадения собственных (резонансных) частот рентгенооптического кристалла и кристалла-преобразователя. Для расчета длины были использованы табличные значения частотных постоянных [322]. Торцы пластин изготавливались плоскопараллельными с точностью 0,1 мкм.

Поверхности пластин пьезоэлектрических кристаллов подвергались предварительной механической обработке - мелкая шлифовка с применением порошков до 10 мкм. Следующим этапом было напыление электродов на боковые поверхности: методом магнетронного или вакуумного распыления наносился проводящий слой серебра с предварительным нанесением хромового подслоя для обеспечения наибольшей адгезии.

Электроды должны обладать высокой проводимостью и обеспечивать хороший контакт с поверхностью образца, быть устойчивый к внешним воздействиям. В качестве материала для напыления электродов вполне можно годятся металлы с низким удельным сопротивлением, например, благородные металлы: серебро, золото, платина или неблагородные: никель,

хром (в качестве адгезионного подслоя) и др. Также существуют специальные проводящие пасты на основе серебра, позволяющие достаточно просто нанести электроды при нормальных условиях, без нагрева кристалла и применения специального оборудования. В целом поверхностное сопротивление электродов должно быть не более 10 Ом.

После распиловки поверхности рентгенооптических элементов подвергались тщательной химико-механической обработке. В первую очередь поверхности шлифовались. После шлифовки проводилась асимптотическая обработка – последовательная полировка набором порошков с разными размерами зерна (величина снятого слоя должна двукратно превосходить размер зерна используемого порошка). На завершающей стадии проводилось химическое травление, обеспечивающее полное удаление приповерхностного нарушенного слоя. После подготовки поверхности защищались лаком, несколько пластин с обработанной поверхностью склеивались в бруск, и проводилась обработка торцов пластин, плоскопараллельность которых выдерживалась с точностью 0,1 микрон. В качестве финишной обработки поверхностей торцов применялась полировка.

Кристалл-преобразователь специальным kleem, предающим ультразвуковые колебания, торцевой поверхностью приклеивался к торцевой поверхности рентгенооптического кристалла. После склейки с рентгенооптическим элементом проводились измерения сдвига резонансной частоты резонатора. При сильном уходе частоты (более 5%) после склейки с применением шлифовки торцевой поверхности проводилась коррекция длины одного из элементов. При совпадении собственных частот продольных колебаний (растяжения–сжатия) элементов рентгеноакустического резонатора существенно возрастила амплитуда упругих деформаций.

В таблице 3.1. представлены размеры пластин пьезоэлектрических пьезопреобразователей и размеры пластин рентгенооптических элементов, изготовленных для двух частот 130 кГц и 160 кГц.

Таблица 3.1. Размеры кристаллических пластин пьезопреобразователей и рентгенооптических элементов.

Частота	Размеры	Германий	Кремний	LGT	TeO ₂	LiNbO ₃	Кварц
130 кГц	Длина	18,9	35,1	19,8	22,9	23,3	19,2
	Ширина	8	12	7	9	9,6	10
	Толщина	0,4	0,5	0,5	0,5	1,53	0,5 1
160 кГц	Длина	15,4	28,5	16,1	18,7	19	15,6
	Ширина	8	12	7	8	9,3	8
	Толщина	0,4	0,5	0,5	0,4	1,58	0,5 1

На основе проведенных расчетов параметров рентгенооптических элементов и пьезокристаллических преобразователей разработаны и изготовлены рентгеноакустические резонаторы, рис. 2.42, обеспечивающие эффективное возбуждение продольных по длине колебаний растяжения-сжатия и формирование стоячей ультразвуковой волны.

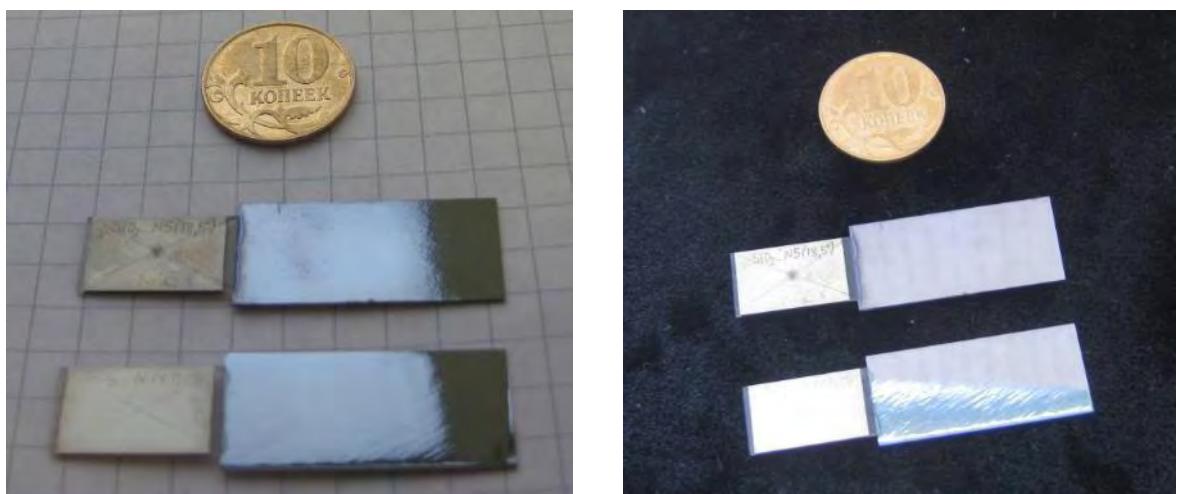


Рис. 2.43. Составной резонатор.

2.7. Электромеханические и рентгеновские исследования резонаторов. Распределение деформации, сопоставление расчетов и дифракционных экспериментов, дифракция, топография

Электроакустический метод измерения

Исследования и тестирование созданных резонаторов на соответствие требуемым характеристикам проводилось с применением методов импедансной спектроскопии. Подобные резонаторы широко применяются в пьезотехнике, и хорошо известно, что главными характеристиками их работы являются добротность, стабильность резонансной частоты и чистота частотного спектра колебаний. Для измерения и контроля указанных параметров традиционно применяется электроакустический метод, который позволяет измерять амплитудно-частотные характеристики в широком диапазоне амплитуд, обеспечивая высокое разрешение и стабильность по частоте. Принципиальная схема установки для измерения АЧХ разработанных в работе резонаторов представлена на рис. 2.44.

Качественно методика измерения амплитудо-частотной характеристики выглядит следующим образом: синусоидальный сигнал от высокочастотного стабильного генератора подается на последовательно соединенную цепь из кристаллической пластины с электродами и нагрузочным сопротивлением.

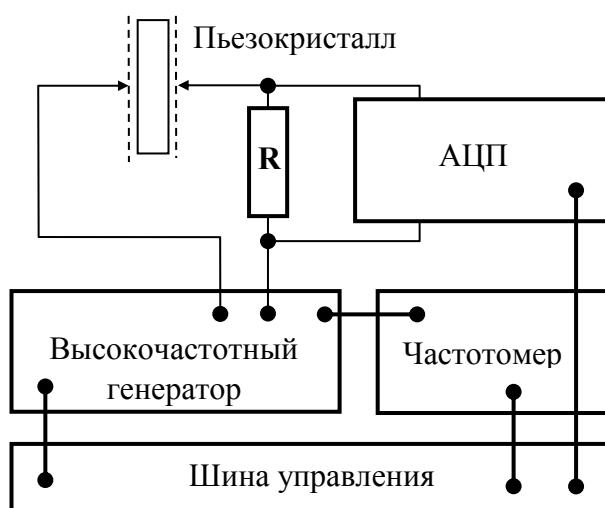


Рис. 2.44. Электрическая схема установки по измерению импедансных характеристик кристаллов.

При этом фиксируется напряжение на нагрузочном сопротивлении R . Частота переменного сигнала с генератора изменяется в установленных пределах. При формировании стоячей волны в кристалле на кривой АЧХ наблюдаются два резонанса: последовательный и параллельный как показано на рисунке 2.45.

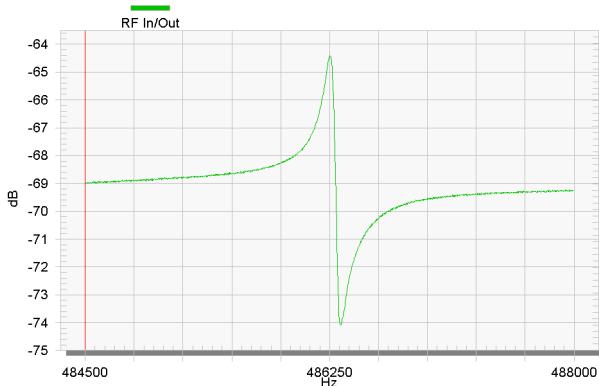


Рис. 2.45. Амплитудно-частотная характеристика резонатора.

Частота максимальной амплитуды представляет собой частоту последовательного резонанса (частоту резонанса) f_r , а частота минимальной амплитуды – частоту параллельного резонанса (частоту антрезонанса) f_{ar} .

Установка измерения АЧХ (рис. 2.46) состоит из трех основных узлов:

1. ПК - Персональный компьютер;
2. Синтезатор частоты Saunders Roditi 250B-1 (точность 1 ppm, выходным сигналом от 100 нв - 0,1 в) установлен внутри системного блока промышленного компьютера.
3. – Кристаллодержатель - держатель образцов с системой согласования в измеряемом интервале частот.

Установка снабжена печкой с терmostатом с двумя термодатчиками. Термодатчик 1 – это регулятор температуры (температура задается с помощью управляющего компьютера), а термодатчик 2 – измеритель температуры на образце. Процесс установления температуры на образце максимально приближенной к заданной занимает значительное время: 1,5 - 2 часа. Точность установления температур на обоих термодатчиках $\sim 0,02^\circ\text{C}$. Установка способна поддерживать температуру максимум до 250°C .

Измерительные электроды представляют собой проводники определенной формы, контактирующие с испытуемым образцом, которые дают малую вносимую емкость. Перед нанесением электродов образцы тщательно очищаются и обезжириваются. Как было отмечено выше, необходим хороший контакт электрода с поверхностью образца и высокая проводимость материала электрода. В качестве материала для электродов в работе в основном использовалось серебро.

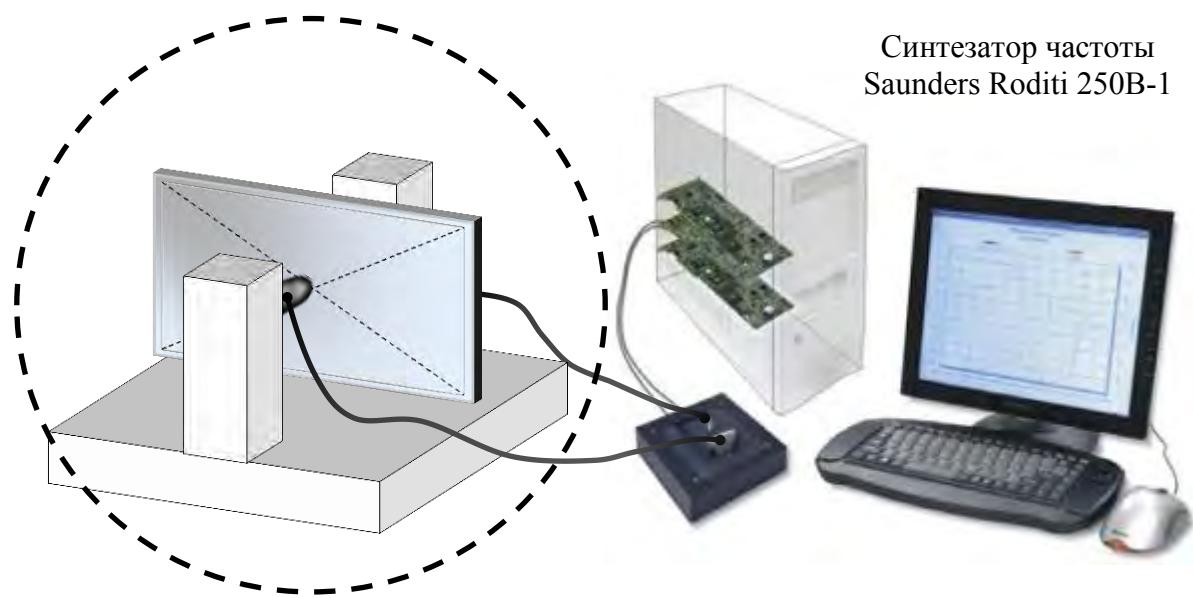


Рис. 2.46. Схема установки для измерения АЧХ и кристаллодержатель для крепления кристалла-преобразователя.

При проведении измерений АЧХ необходимо уделить должное внимание настройке электрической схемы и механической части. Существует несколько важных особенностей метода, которые необходимо учесть, чтобы избежать наводок и появления паразитных резонансов: оптимальное положение и крепление кристалла, длина и согласованность проводов.

Образец должен быть закреплен жестко, но не должен быть деформирован, так как это влечет за собой дополнительные нагрузки, при этом уменьшается добротность и смещается резонансная частота. Поэтому для держателя был разработан механизм регулировки жесткости закрепления (в данном случае пружина с поджимом) во избежание сильного зажатия образца. С другой стороны, слишком слабое зажатие может также

отрицательно сказаться на точности измерений и привести к выпадению кристалла. Закрепление составного резонатора осуществляется по двум осям (рис. 2.47) и также слишком жесткое фиксирование рентгенооптического кристалла может привести к изменению электромеханических и рентгенооптических характеристик резонатора, поэтому важен тщательный подбор усилия при закреплении элементов.

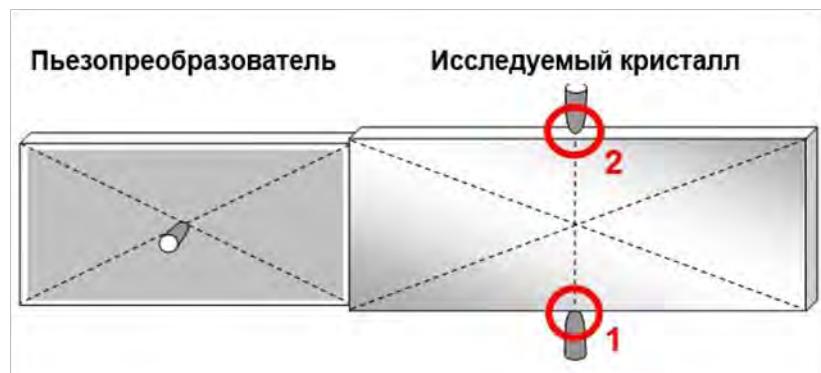


Рис. 2.47. Схематическое изображение используемого держателя для

Используемая в настоящей работе для измерения импедансных характеристик кристалла и поиска резонансных частот установка позволяла, выбрав широкий диапазон сканирования, измерить значения всех значимых резонансах и их частот, а потом измерить отдельно выбранный резонанс рентгеноакустического кристалла с высоким разрешением по частоте. По форме АЧХ – по моночастотности спектра, отсутствию паразитных резонансов, добротности и т.д. также можно сделать выводы о колебаниях в исследуемом резонаторе.

Измерения АЧХ пьезоэлектрических преобразователей, колеблющихся без нагрузки и в системе составного резонатора: пьезоэлектрический резонатор - рентгенооптический кристалл

При изготовлении рентгеноакустических образцов проводились измерения АЧХ, позволяющие анализировать спектры, определять резонансные частоты и уходы их от расчетных значений. Измерения АЧХ проводились вблизи основной частоты и в районе частоты третьей гармоники.

Из рисунков 2.48 - 2.49 видно, что спектры колебаний кварцевых пьезокристаллических резонаторов на основной частоте практически не искажены, резонансные частоты и амплитуды колебаний всех измеренных резонаторов близки друг к другу. Тонкая структура (немоночастотность спектра) слабо проявляется вблизи частоты антирезонанса третьей гармоники.

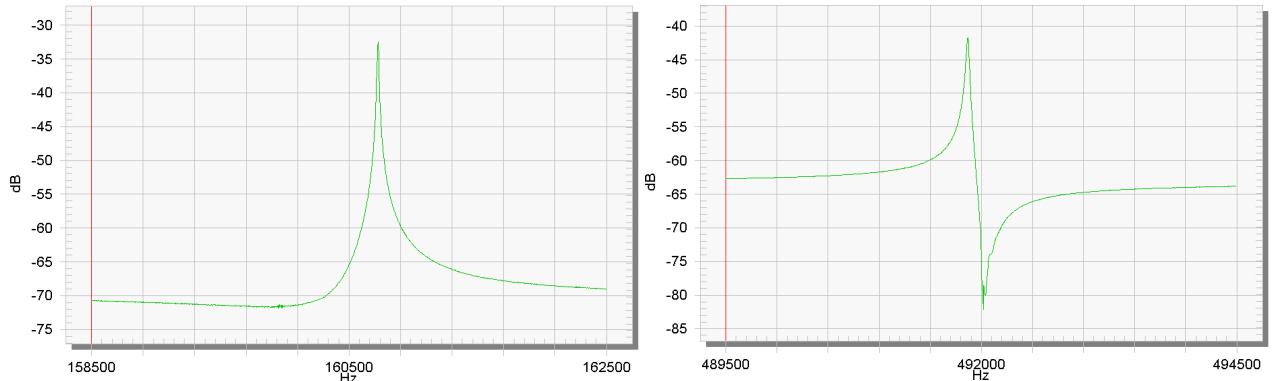


Рис. 2.48. Резонатор № SiO_2 _N6(18.5), кварц ($XYtwl-18.5\%0\%0\%$)-среза; а) первая гармоника, резонансная частота $f = 160.73 \text{ kHz}$, амплитуда колебаний $A = -32.5 \text{ dB}$; б) третья гармоника, резонансная частота $f = 491.87 \text{ kHz}$, амплитуда колебаний $A = -41.7 \text{ dB}$.

Следует отметить, что при температурных измерениях все резонаторы показали, как и следовало из теории, слабую зависимость от температуры основной резонансной частоты. Аналогично вышеприведенным измерениям по описанной методике были измерены составные резонаторы.

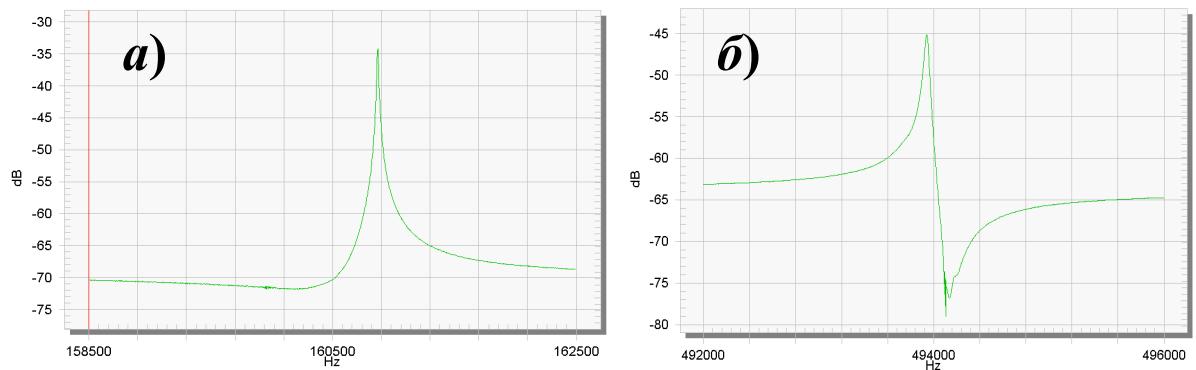


Рис. 2.49. Резонатор № SiO_2 _N2(18.5), кварц ($XYtwl-18.5\%0\%0\%$)-среза; а) первая гармоника, резонансная частота $f = 160.87 \text{ kHz}$, амплитуда колебаний $A = -34.2 \text{ dB}$; б) третья гармоника, резонансная частота $f = 493.94 \text{ kHz}$, амплитуда колебаний $A = -45.1 \text{ dB}$.

Точное значение скорости звука в бесконечной среде несколько отличается от скорости звука в ограниченной среде, параметры которой определяются параметрами кристаллического материала. Поэтому при изготовлении составного резонатора использовался следующий метод. Измерялась длина рентгенооптического кристалла и рассчитывалась его собственная частота колебаний, причем за скорость звука принималось значения скорости звука в бесконечной среде. Для кристалла преобразователя точное значение скорости звука рассчитывалось по данным амплитудно-частотных характеристик, и изготавливались кристаллы с собственной частотой колебаний равной расчетной частоте собственных колебаний рентгенооптического кристалла. После этого кристаллы склеивались и измерялись амплитудно-частотные характеристики уже для составного резонатора. По изменению резонансной частоты после производился пересчет значения скорости звука в нем, и коррекция длины либо кристалл-преобразователя, либо рентгенооптический кристалла.

На рис. 2.50 представлены экспериментальные результаты измерения амплитудно-частотных характеристик (АЧХ) рентгеноакустических резонаторов. Как видно из рис. 2.50, изготовленные в процессе выполнения работы рентгеноакустические резонаторы обладали моночастотностью спектра, что свидетельствовало о чистой моде колебаний резонатора.

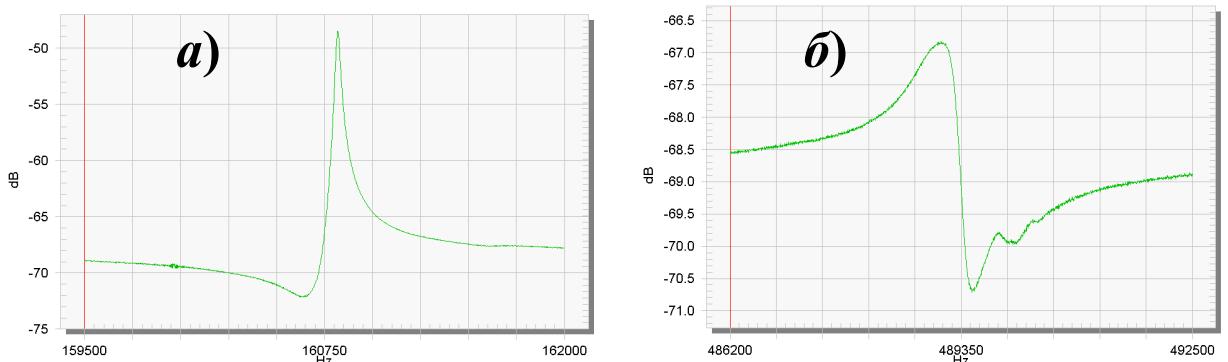


Рис. 2.50. Составной резонатор № SiO₂-N9(18.5)+Si, пьезопреобразователь – кварц (XYtwl-18.5%0%0°)-среза, рентгенооптический кристалл – кремний; а) первая гармоника, резонансная частота $f = 160.82 \text{ kHz}$, амплитуда колебаний $A = -48.5 \text{ dB}$; б) третья гармоника, резонансная частота $f = 489.08 \text{ kHz}$, амплитуда колебаний $A = -66.8 \text{ dB}$.

Из рисунков 2.51-2.52 видно, что спектры колебаний на основной частоте практически не искажены, резонансные частоты и амплитуды колебаний всех измеренных резонаторов близки друг к другу. Незначительный уход от моночастотности спектра проявляется вблизи частоты антирезонанса третьей гармоники, что может быть связано с качеством склейки образцов и также неоптимальным закреплением в кристаллодержателе.

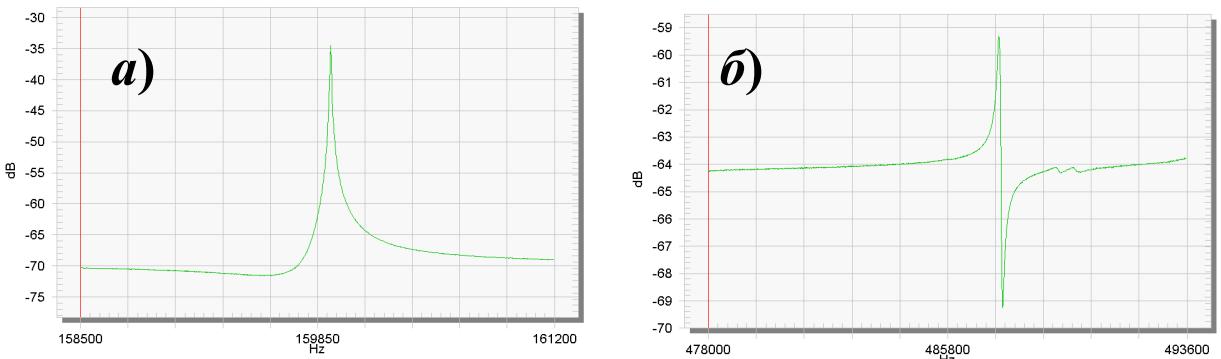


Рис. 2.51. Составной резонатор № SiO_2 _N11(18.5)+Si, пьезопреобразователь – кварц ($XYtwl-18.5\%0\%0^{\circ}$)-среза, рентгенооптический кристалл – кремний; а) первая гармоника, резонансная частота $f = 159.93$ kHz, амплитуда колебаний $A = -34.5$ dB; б) третья гармоника, резонансная частота $f = 487.47$ kHz, амплитуда колебаний $A = -59.3$ dB.

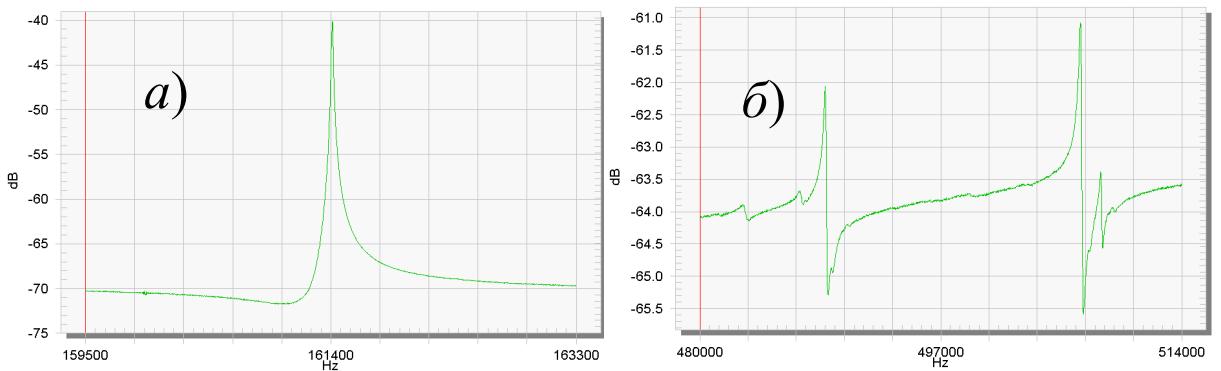


Рис. 2.52. Составной резонатор № SiO_2 _N4(18.5)+Ge, пьезопреобразователь – кварц ($XYtwl-18.5\%0\%0^{\circ}$)-среза, рентгенооптический кристалл – германий; а) первая гармоника, резонансная частота $f = 161.41$ кГц, амплитуда колебаний $A = -40.1$ dB; б) $f1 = 488.84$ кГц, $A1 = -62.1$ dB; $f2 = 506.86$ кГц, $A2 = -61.1$ dB

Все резонаторы, установленные в узлы рентгеноакустических резонаторов, показали, как и следовало из теории, слабую зависимость от температуры основной резонансной частоты.

Типичные результаты измерений АЧХ составных резонаторов в широком диапазоне частот приведены на рис. 2.52. На рис. 2.53 приведена АЧХ кристалла германия, имеющая наиболее чистый спектр, полученный в результате доводки образца: качественной склейки и точного соблюдения как геометрии резонатора и рентгенооптического элемента, так и условий качественного закрепления в кристаллодержателе.

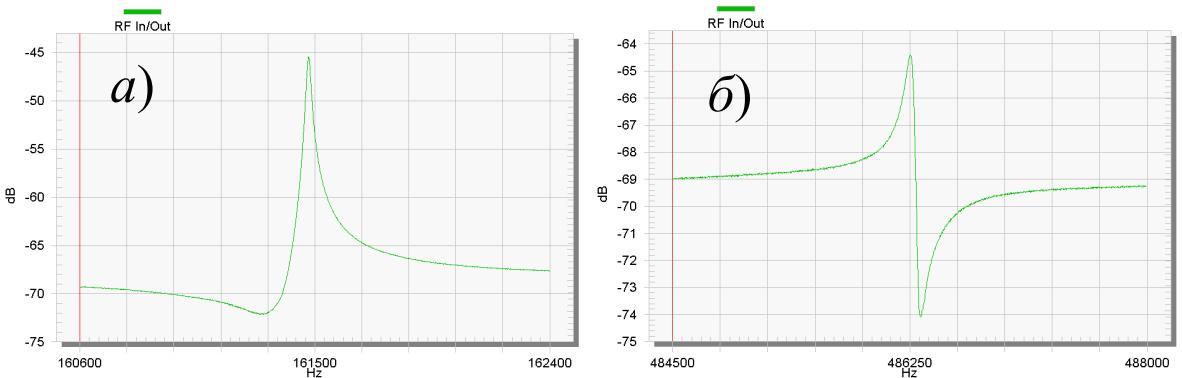


Рис. 2.53. Узел рентгеноакустического кристалла с установленным составной резонатор № SiO₂ N7(18.5)+Ge, пьезопреобразователь – кварц (XYtwl-18.5%0%0%-среза, рентгенооптический кристалл – германий; а) первая гармоника, резонансная частота $f = 161.48 \text{ kHz}$, амплитуда колебаний $A = -45.4 \text{ dB}$; б) третья гармоника, резонансная частота $f = 486.25 \text{ kHz}$, амплитуда колебаний $A = -64.4 \text{ dB}$.

Результаты измерений АЧХ показывают, что основные резонансные частоты колебаний составных резонаторов, установленных в узел рентгеноакустического резонатора весьма близки к резонансным частотам возбуждающих кварцевых резонаторов. Это указывает на точность изготовления рентгеноакустических резонаторов. При этом амплитуды колебаний имеют заметный разброс, определяемый по нашему мнению качеством акустической склейки.

Спектры третьих гармоник отдельных резонаторов, установленных в узел рентгеноакустического резонатора, имеют более сложный характер и показывают наличие дополнительных резонансов. При этом тщательно

подготовленные образцы, прошедшие доработку, показали практически безупречный спектр колебаний. Полученные в экспериментах АЧХ показывают моночастотный характер колебаний, характерный для чистой моды. Таким образом, в соответствии с проведенными теоретическими расчетами и электромеханическими измерениями распределение амплитуды деформаций по длине пластины должно описываться синусоидальным распределением в пределах от 0 до π .

Рентгенодифракционный метод исследования резонаторов

Анализируя теоретическую кривую распределения ультразвуковой деформации в составном рентгеноакустическом кристалле можно заключить, что наибольший интерес здесь представляют два участка рис 2.54а. Первый - это центр кристалла, где пространственное распределение деформации почти постоянно (точнее сказать, на этом участке пространственная зависимость деформации близка к квадратичной параболе). В частности, для рентгеновских пучков шириной 0,1 - 1мм неоднородность деформации по ширине пучка не превышает 1%.

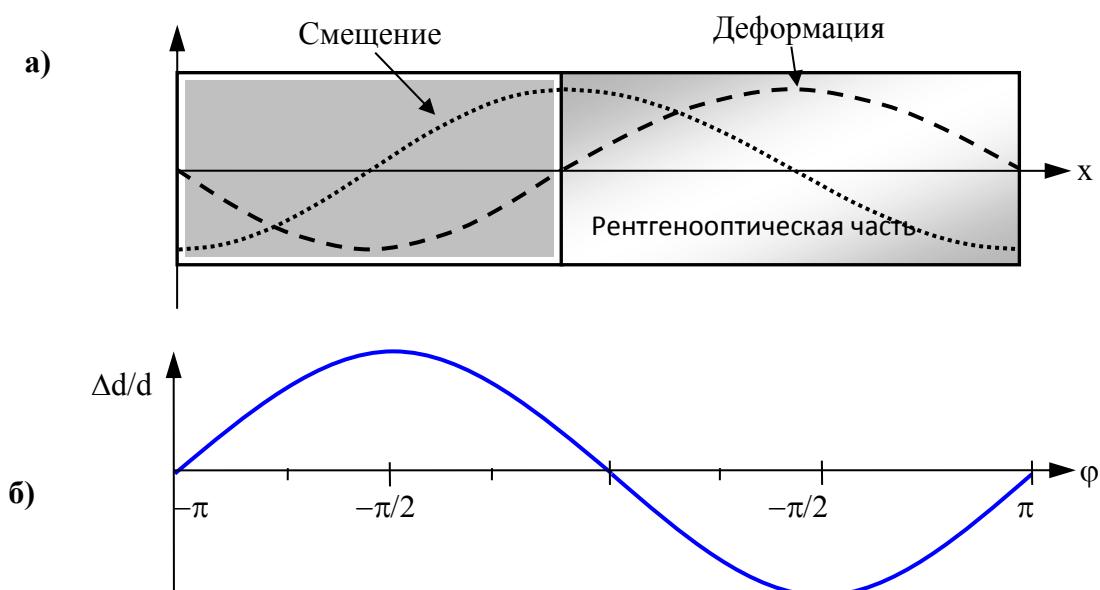


Рис. 2.54. Пространственное (а) и временное (б) распределение амплитуды деформации и смещения.

Вторая интересная область – участки близкие к краям кристалла, где распределение деформации описывается практически постоянным градиентом деформации, что аналогично деформациям, создаваемым в градиентных кристаллах. При этом в каждой точке деформация и смещение синусоидально меняются во времени (рис. 2.55б).

Для контроля качества кристаллической структуры традиционно применяется метод, основанный на измерении кривых дифракционного отражения – зависимости интенсивности рентгеновского пучка, дифрагированного образцом, от угла его падения на исследуемый кристалл в окрестности точного брэгговского положения. Кривая дифракционного отражения позволяет характеризовать структурное совершенство кристалла и проводить локальный анализ деформации кристаллической решетки.

Изучение рентгеноакустических резонаторов проводилось на разработанном рентгеноакустическом дифрактометре. Установка позволяет проводить измерения КДО с высоким угловым разрешением ($0,2''$), образец при этом может быть расположен и в геометрии дифракции по Брэггу (на отражение), и в Лауз – геометрии (на просвет) рис. 2.56. Система подвижек дифрактометра позволяет направлять рентгеновский пучок на различные участки рентгенооптического элемента и изучать вариацию параметра кристаллической решетки и деформацию по длине образца.

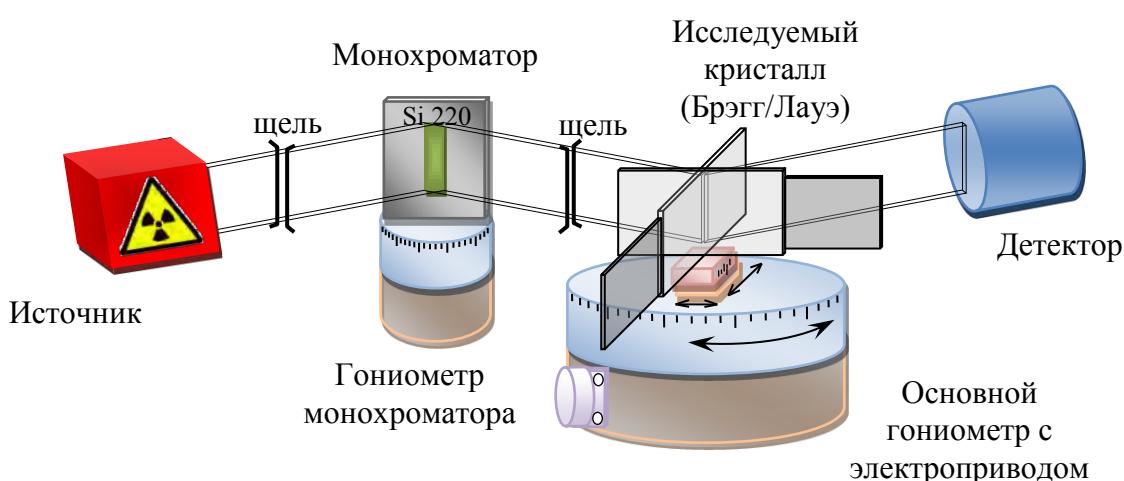


Рис. 2.55. Схема установки для рентгенодифракционного исследования резонаторов

На первом этапе проводились исследования однородности и качества структуры кристаллических элементов при отсутствии ультразвуковых колебаний. Измерение кривых дифракционного отражения проводилось в геометрии Брэга и Лауэ с использованием двухкристальной схемы при параллельном расположении кристаллов. Кристаллом-монохроматором является Si [220], кристаллом-образцом являлся Ge или Si с ориентацией поверхности [-110].

Напряжение и ток в рентгеновской трубке имели значения 40 кВ и 20 мА соответственно. Рентгеновский пучок представлял собой излучение характеристической линии $K_{\alpha 1}$ с $\lambda = 0,07093$ нм, линия $K_{\alpha 2}$ отсекалась выходной коллимационной щелью спектрометра. На рис. 2.56 представлены кривые дифракционного отражения, измеренные для кристаллов кремния и германия с использованием монохроматора Si(220).

а)

б)

в)

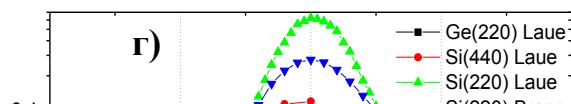


Рис 2.56. а, б) Кривые дифракционного отражения Si(440) и (200) измеренные в бездисперсионной схеме в геометрии Лауэ, в) (200) в геометрии Брэгга и г) сравнение кривых в логарифмическом масштабе.

На основе измерения кривых дифракционного отражения для разных рефлексов были определены оптимальные условия для измерения однородности кристаллической структуры по длине рентгеноакустического элемента. На рис. 2.57 представлены результаты измерения кривых дифракционного отражения по длине рентгенооптического элемента, изготовленного из кристалла кремния. Измерения показали высокое совершенство и однородность кристаллической структуры - полуширина кривых дифракционного отражения соответствовала расчётной кривой дифракционного отражения бездислокационного кристалла. Сильное увеличение полуширины КДО в месте контакта с пьезопреобразователем объясняется возникающими при склейке напряжениями.

Проведенная рентгенодифракционная диагностика рентгеноакустических резонаторов показала высокое совершенство кристаллов и отсутствие дислокаций и дефектов. Гомогенность образцов определялась с точностью до 10^{-4} . Таким образом, с точки зрения оптических свойств, качество разработанных рентгеноакустических резонаторов вполне удовлетворяют требованиям, предъявляемым к рентгенооптическим элементам.

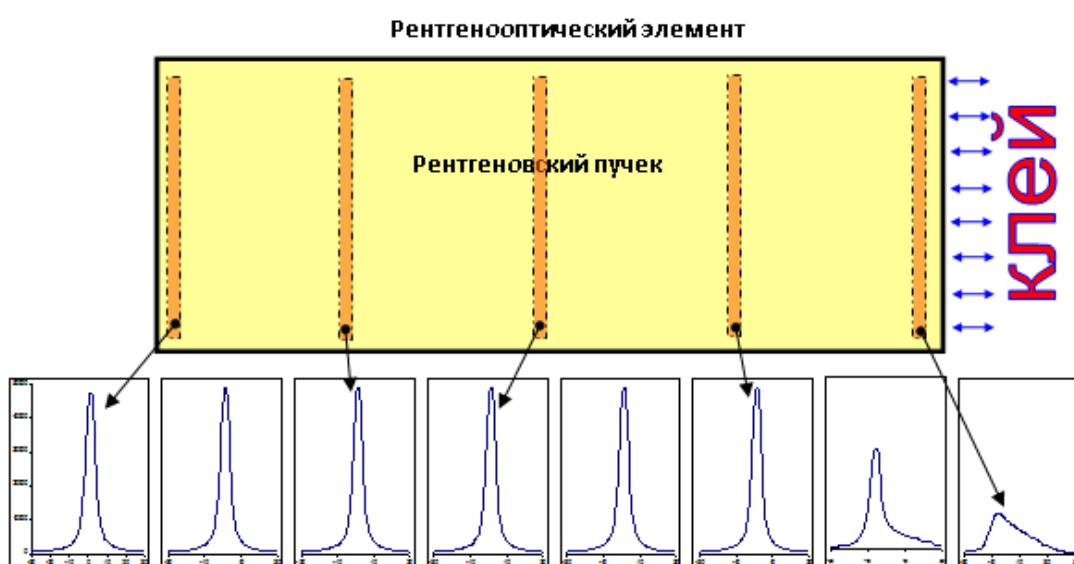


Рис. 2.57 Пример топограммы, представляющей собой серию КДО, полученных для кристалла германия.

Возбуждение ультразвуковых колебаний как составном, так и монолитном рентгеноакустическом резонаторе осуществляется путем подачи синусоидального сигнала на электроды пьезокристалла-возбудителя. При этом периодичность колебаний позволяет оперативно и в широких пределах управлять ультразвуковыми деформациями в исследуемом кристалле. Для эффективного возбуждения резонатора требуется высокая точность установки частоты сигнала, а для получения эффективных амплитуд модуляции параметра решетки кристалла-резонатора – высокая точность установки амплитуды сигнала и возможность варьирования ее значений в широких пределах.

На рис. 2.58 представлена электрическая схема возбуждения ультразвуковых колебаний в составном резонаторе.

С применением системы возбуждения и контроля ультразвука в рентгеноакустическом резонаторе на резонансной частоте возбуждались интенсивные ультразвуковые колебания, и формировалась стоячая акустическая волна. Ультразвуковые колебания приводили к изменению межплоскостного расстояния в направлении длины резонатора. При

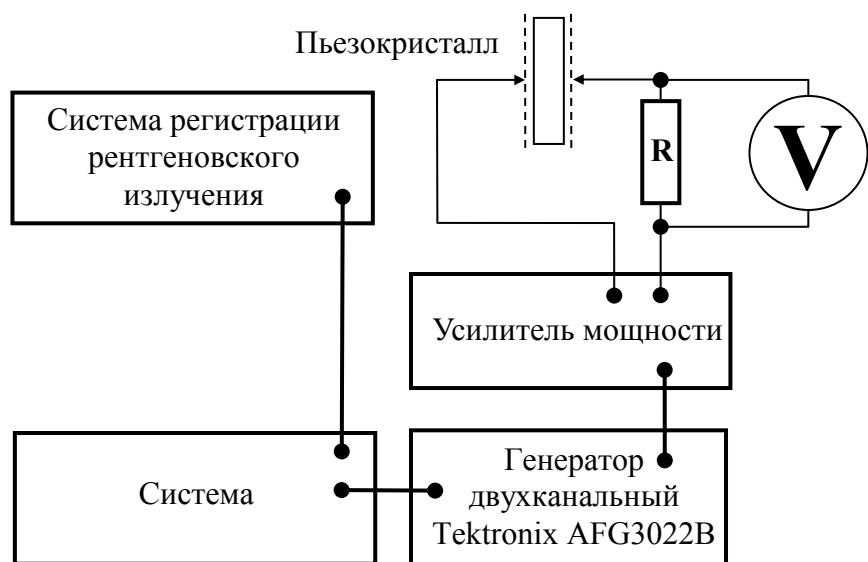


Рис. 2.58. Электрическая схема возбуждения ультразвуковых колебаний в составном резонаторе, и схема времязадающей системы регистрации рентгеновского излучения.

включении ультразвука КДО рентгеноакустического кристалла уширяется пропорционально с ростом амплитуды ультразвуковых колебаний (рис 2.59).

Так, как размеры области дифракции рентгеновского пучка в направлении ультразвуковых смещений много меньше длины упругой волны, то уширение КДО в различных точках рентгенооптического кристалла, позволяет рассчитать распределение амплитуды деформации ультразвуковых колебаний по длине кристалла [315].

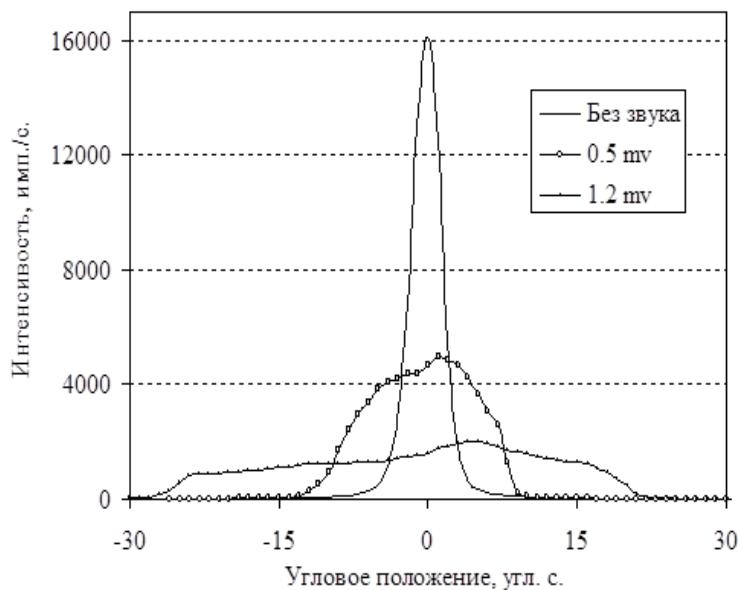


Рис. 2.59. Рентгенооптическая схема для изучения рентгеноакустических резонаторов.

Описанная выше одномерная модель предсказывает возбуждение в резонаторе только продольных колебаний, по направлению длины кристалла (ось y). При этом смещения не зависят от координаты по толщине или ширине пластины и описывается законом в направлении длины $u = A \cos(\pi y / L)$, L – длина пластины.

Это означает, при линейном перемещении рентгеновского пучка вдоль поверхности рентгенооптического элемента изменение полуширины КДО описывается синусоидальным «полуволновым» распределением. В большинстве случаев, эксперимент показывает наличие именно таких распределений (рис. 2.60а). Однако для многих резонаторов картина распределения ультразвуковых деформаций заметно отличается от

классического распределения, несмотря на моночастотные спектры АЧХ. На рис. 2.60б приведен пример - распределения амплитуды колебаний по длине рентгенооптического элемента (Ge) для составного резонатора германий (рентгенооптический элемент) – кварц (резонатор).

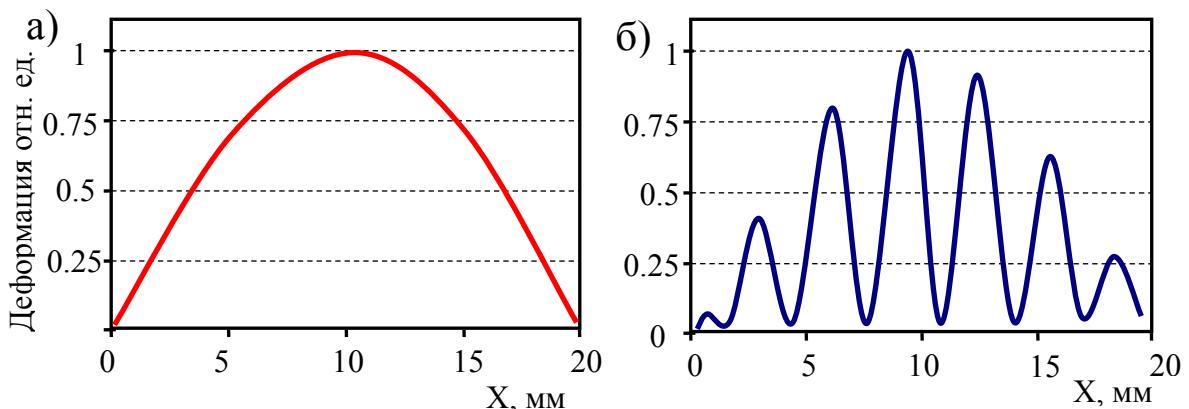


Рис. 2.60. Эволюция полуширины КДО при включенном ультразвуке, представляющая распределение амплитуды деформации по длине кристалла а) для резонатора LGS; б) для составного резонатора SiO_2+Ge .

Далее, на примере составных резонаторов на основе германия, показаны исследования распределения амплитуды ультразвуковой деформации в направлении длины и толщины пластины.

Рентгеноакустический резонатор $[\text{SiO}_2\text{-N}8(-18.5^\circ)] + [\text{Ge}]$, представляет собой две прямоугольные кристаллические пластины, пьезокристалл-возбудитель SiO_2 и исследуемый кристалл Ge, склеенные торцевой частью. В качестве пьезокристалла-возбудителя использовалась пластина SiO_2 с размерами $15.84 \times 8.80 \times 1.00$ мм и ориентацией [110] вдоль направления, повернутого на -18.5° от [-110]. В качестве исследуемого кристалла использовалась пластина Ge с размерами $15.54 \times 5.40 \times 0.40$ мм и ориентацией [111] вдоль [-110]. Пластины SiO_2 и Ge имеют различную толщину, 1.0 и 0.4 мм. Данный резонатор возбуждается на частоте резонанса 161.35 kHz. В результате чего, в каждой из кристаллических пластин формируется стоячая продольная ультразвуковая волна.

Пластины SiO_2 и Ge имеют различную толщину, 1.0 и 0.4 мм, вследствие чего распределение деформации может иметь несколько иную форму, отличную от классического полуволнового распределения.

На рис. 2.61 и рис. 2.62 представлено распределение амплитуды ультразвуковой деформации по длине кристалла кремния, получение, как при измерениях в геометрии дифракции Лауз, так и в геометрии дифракции по

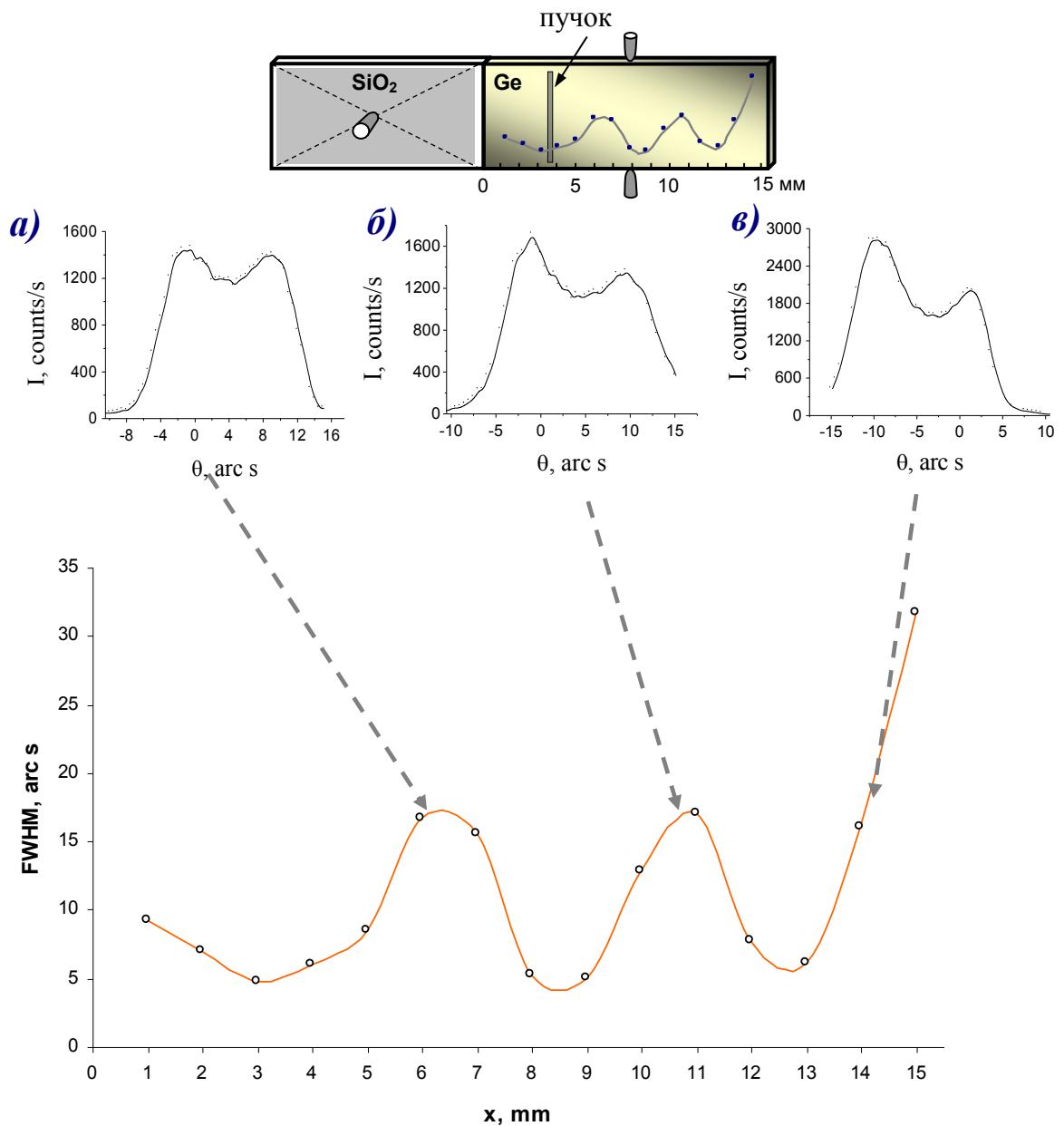


Рис. 2.61 . Распределение амплитуды ультразвуковой деформации в кристалле Ge составного резонатора $[\text{SiO}_2\text{-N}8(-18.5^\circ)] + [\text{Ge}]$, для геометрии Лауз. Представлены КДО Ge (220) в нескольких характерных точках исследуемого кристалла.

Брэггу. Рентгенодифракционный эксперимент проводился по двухкристальной параллельной бездисперсионной схеме в геометрии Лауз. В качестве монохроматора использовался кристалл Si и симметричное отражение (220). В ходе эксперимента измерялись кривые дифракционного отражения кристалла германия, рефлекса (220), при перемещении рентгеновского пучка по длине исследуемого кристалла Ge, подвергнутого

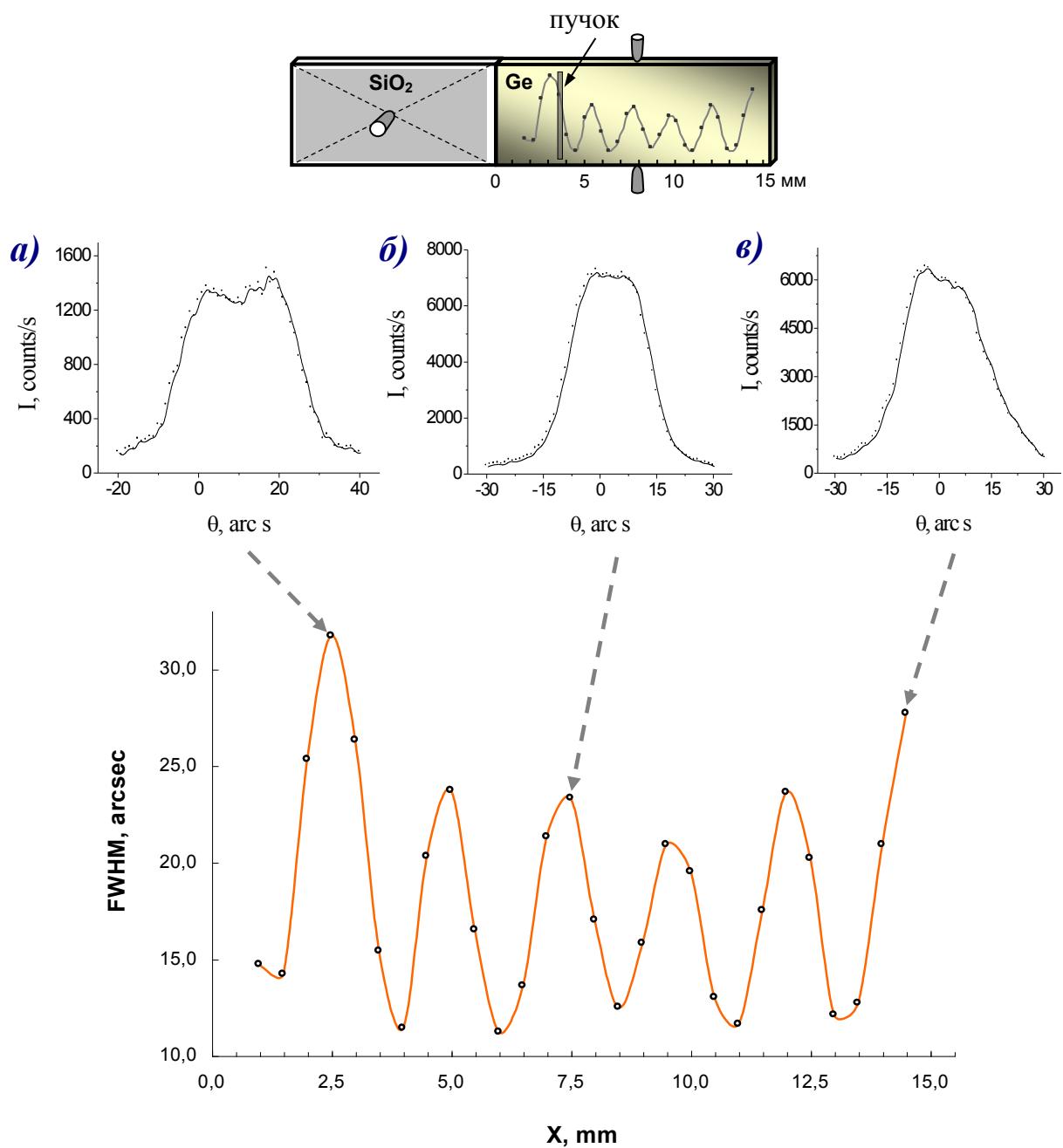


Рис. 2.62. Распределение амплитуды ультразвуковой деформации составного резонатора $[\text{SiO}_2\text{-N8}(-18.5^\circ)] + [\text{Ge}]$, для геометрии Брэгга. соответственно. Представлены КДО Ge (220) в нескольких характерных точках исследуемого кристалла.

длинноволновым колебаниям. Указанные измерения проводятся в интегральном по времени режиме и позволяют получить распределение амплитуды ультразвуковой деформации по длине исследуемого резонатора.

Численное моделирование рентгеноакустических резонаторов

Для объяснения наблюдаемых распределений ультразвуковой деформации были проведены численные расчеты (в соавторстве с А.Н. Даринским), основанные на методе конечных элементов [³²³]. Проведенные исследования позволили проанализировать смещения по всем трем направлениям в составных резонаторах при возбуждении смешанных колебаний. Как и следовало ожидать, продольные смещения обладают наибольшей амплитудой, причем зависимость от координаты Y продольных смещений достаточно точно описывается формулой $\cos(\pi y/L)$. Также в процессе колебаний пластины возникают смещения по осям X и Z, амплитуда которых достигает значений 10-15% от амплитуды продольных смещений. Распределение смещений в ряде случаев по толщине и ширине пластины носит крайне неоднородный характер. Результатом является формирование сложной картины распределения смещений (дисторсий) по всему объему пластины, которая значительно отличается от «половинового» распределения, предсказанного простой одномерной моделью. Точность проведенных расчетов подтверждает соответствие экспериментальным данным: для выбранных констант, частоты собственных колебаний резонаторов, полученные методом конечных элементов, отличающихся от экспериментальных частот менее чем на 1%.

Проведенное моделирование резонаторов различной конфигурации, позволяет сформулировать два основных критерия, определяющих формирование волнового поля в монолитных и составных рентгеноакустических резонаторах. Первый заключается в учете упругой анизотропии составных элементов, что требует выбора соответствующего направления распространения ультразвуковой волны в кристаллах, т.е.

выбора определенного среза и ориентации. Второй, не менее важный критерий, заключается в соотношении между толщиной и шириной пьезокристалла-преобразователя и рентгенооптического элемента. Определенное соответствие этих параметров обеспечивает требуемое распределение ультразвуковой деформации [324]. На рис. 2.63 представлено распределение смещений для резонатора LGT при оптимальном соотношении указанных параметров.

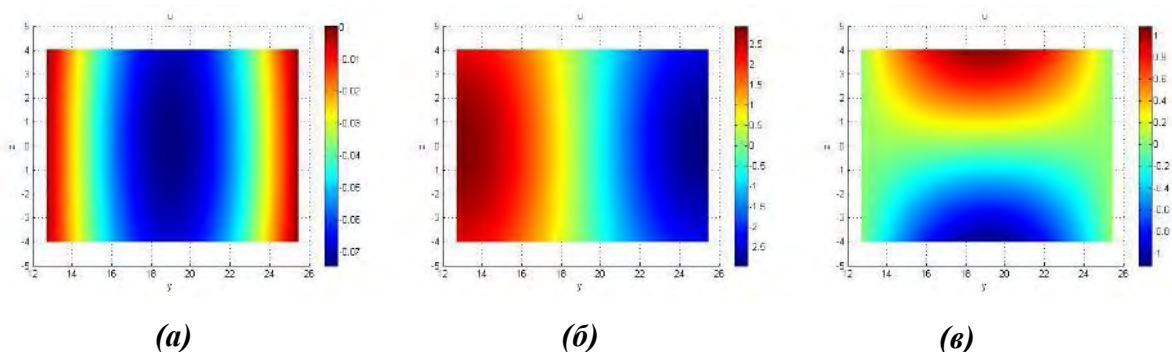


Рис. 2.63. Пример рассчитанных распределений амплитуды волнового поля ультразвуковых смещений для кристаллической пластины LGS в условиях резонанса на первой гармонике продольных колебаний в случае «чистой моды»

На рис. 2.64 приведены результаты расчетов распределения смещений для монолитных резонаторов кварца SiO_2

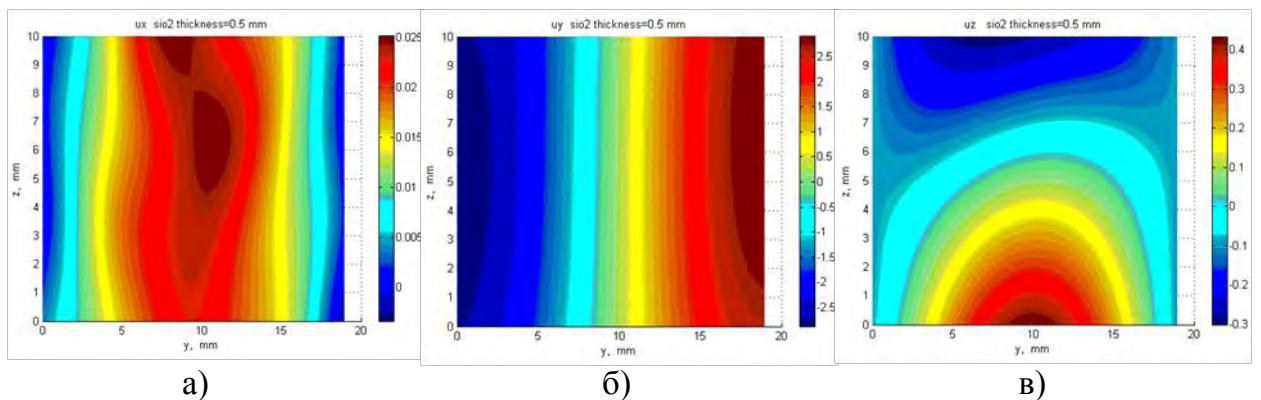


Рис. 2.64. Распределение амплитуды ультразвуковой смещений для монолитного резонатора кварца в условиях резонанса на первой гармонике. а – смещения по ux , б – смещения по uy , в – смещения по uz

Данный случай демонстрирует неидеальное распределение в направлении ux . Использование таких резонаторов представляется

возможным только в геометрии Лауз, когда распределение амплитуды деформации в направлении u_y близко к полуволновому.

Расчётное распределение ультразвуковых смещений для составного резонатора SiO_2+Ge по координате x на поверхности $X=0$ (yz), показано на рис. 2.65а. Результаты расчета показывают, что, даже с учетом упругой анизотропии, которое обеспечивает хорошее совпадение частот резонанса, полученное распределение может сильно отличаться от классического «полуволнового». Для экспериментальной проверки расчетов с использованием двумерного детектора была измерена двухкристальная топограмма составного резонатора SiO_2+Ge с параметрами, соответствующими расчетным рис. 2.65б. Условия эксперимента обеспечивали визуализацию смещений по координате x .

Сравнение результатов моделирования рентгеноакустических резонаторов с экспериментом показывает их качественное и количественное соответствие по таким важным параметрам как частота резонанса составного резонатора и его элементов по отдельности, карты распределения деформации и смещений.

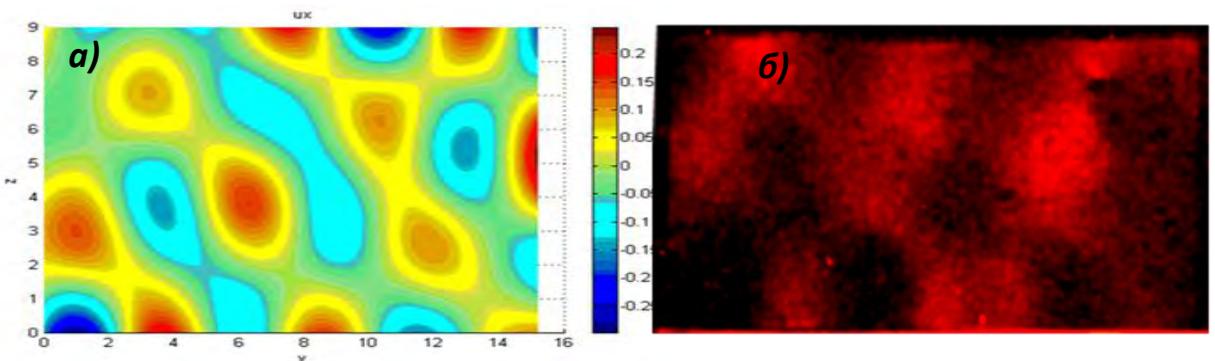


Рис. 2.65 Результаты расчета карты распределения ультразвуковой деформации в сравнении с экспериментальными результатами.
а) Карта распределения смещений рентгенооптического элемента (Ge) составного резонатора SiO_2+Ge , в направлении X поверхности ZY , рассчитанная методом, **б)** дифрактограмма этой же кристаллической пластины Ge составного резонатора SiO_2+Ge , измеренная в двухкристальной схеме в геометрии Брэгга с использованием двумерного детектора при возбуждении ультразвуковых колебаний.

В результате проведенного моделирования был предложен и апробирован на реальных кристаллических резонаторах метод визуализации ультразвуковых деформаций. На основе проведенного предварительного моделирования, были изготовлены составные и монолитные рентгеноакустические резонаторы с использованием кристаллов SiO_2 , LiF , Si , LGS , LGT , Ge , TeO_2 , которые применялись в дальнейших исследованиях.

Важным выводом, следующим из результатов моделирования и проведения рентгеновских экспериментов по исследования деформации, является то, что в отличие от первоначальных предположений об использовании изгибных колебаний в геометрии Брэгга, а продольных в геометрии Лауз возможно также эффективное применение продольных колебаний и в геометрии Лауз, и в геометрии Брэгга. Как показывают экспериментальные данные и проведенное моделирование, деформации создаются в различных направлениях по всем трем осям кристаллического образца. Подбор конфигурации рентгеноакустического резонатора позволяет усилить или уменьшить амплитуду ультразвуковых деформаций в различных направлениях. В связи с этим, в дальнейших исследованиях представляется эффективным использования представленной схемы возбуждения продольных колебаний с помощью составного или монолитного резонатора как в геометрии Лауз, так и в геометрии Брэгга.

2.8. Выводы к главе 1

В результате проведенных исследований созданы методические основы для решения задач, связанных с изучением кристаллов в условиях динамических воздействий с применением рентгеновских методов диагностики, прежде всего ультразвуковых нагрузок и воздействия электрического поля.

Разработаны методики создания рентгеноакустических кристаллов-резонаторов, элементов рентгеновской оптики с акустическим управлением. Решена задача эффективного возбуждения ультразвуковых колебаний в

кристаллах в условиях локализации рентгеновским пучком области смещений в определённом направлении: продольном или поперечном, необходимом для реализации различных рентгенооптических схем, с применением дифракции на просвет или на отражение, как для изучения рентгеноакустических взаимодействий, так и для управления рентгеновскими пучками. Разработаны методики изучения рентгеноакустических резонаторов электроизмерительными и рентгенодифракционными методами, проведено изучение рентгенооптических, импедансных и деформационных характеристик. Разработаны алгоритмы моделирования трехмерного поля деформации для различных кристаллов-резонаторов. На основе проведенного моделирования с применением рентгенооптических и пьезоэлектрических кристаллов созданы различные рентгеноакустические резонаторы, позволяющие эффективно возбуждать ультразвуковые колебания в кристаллах и реализовывать рентгеноакустические взаимодействия в длинноволновой области ультразвука. Проведены исследования и сравнения с теоретическими расчетами распределения амплитуды ультразвуковой деформации в кристаллических образцах, исследованы рентгенодифракционные характеристики кристаллов в условиях ультразвуковой нагрузки.

Создан рентгеноакустический дифрактометр, позволяющий проводить исследования колеблющихся кристаллов с разрешением по времени, разработаны методики изучения акустически нагруженных кристаллов, в том числе с разрешением по времени. Разработаны методические основы и необходимая экспериментальная техника для стробоскопической и многоканальной регистрации рентгеновского пучка при ультразвуковых воздействиях на кристаллическую решетку.

Разработаны методики расчета и анализа кривых дифракционного отражения при акустических воздействиях на кристаллическую решетку в условиях медленно меняющейся деформации по рентгеновскому пучку.

Таким образом, проведены все необходимые аппаратурно-методические работы, позволяющие проводить исследования рентгеноакустических взаимодействий в кристаллах и изучать влияние электрических полей, развивать методы изучения дефектной структуры кристаллов, включая методы исследования динамики кристаллической и дефектной структуры с временным разрешением, моделировать, анализировать и адекватно интерпретировать полученные экспериментальные результаты и обнаруженные эффекты.

Глава 3. Немеханическое отклонение рентгеновского пучка. Разработка рентгеноакустического дифрактометра для изучения динамики дефектной структуры кристаллических материалов. Исследование поведения различных кристаллов при высоких деформационных нагрузках.

3.1. Дифракционные эффекты в условиях воздействия длинноволнового ультразвука. Интегральное уширение КДО. Мгновенное смещение КДО в условиях однородной ультразвуковой деформации. Изменение формы КДО в условиях неоднородной деформации.

Для изучения дифракционных эффектов в условиях воздействия длинноволнового ультразвука на базе трёхкристального рентгеновского спектрометра ТРС [325 - 327] была разработана экспериментальная установка, позволяющая проводить измерения, как в интегральном, так и в стробоскопическом режиме с разрешением по времени, когда измерение интенсивности рентгеновского пучка проводится в определенной фазе колебаний (см. главу 2). Для изучения дифракционных эффектов в условиях рентгеноакустического взаимодействия были применены методы рентгеновской дифрактометрии, позволяющие изучать угловое распределение интенсивности рассеянного излучении в окрестности дифракционного пика. В представленных ниже экспериментах в интегральном режиме и с разрешением по времени измерялись кривые дифракционного отражения (зависимость интенсивности дифрагированного рентгеновского пучка при малом повороте образца относительно точного брэгговского положения). Изменение угла падения пучка на образце – изменение условий дифракции осуществлялось за счет поворота главного гониометра с установленным на нем исследуемым кристаллом. Для проведения экспериментов была дифракции рентгеновских лучей реализована в параллельной бездисперсионной схеме. Использовалась спектральная линия $\text{MoK}\alpha_1$ рентгеновской трубы. Монохроматор

представлял собой монокристалл бездислокационного кремния с ориентацией поверхности (110) и был установлен в положении дифракции по Брэггу для отражений Si (220), Si(440). Установка образца допускалась в геометрии дифракции Брэгга и Лауэ. Рентгенооптическая схема эксперимента представлена на рис. 3.1.

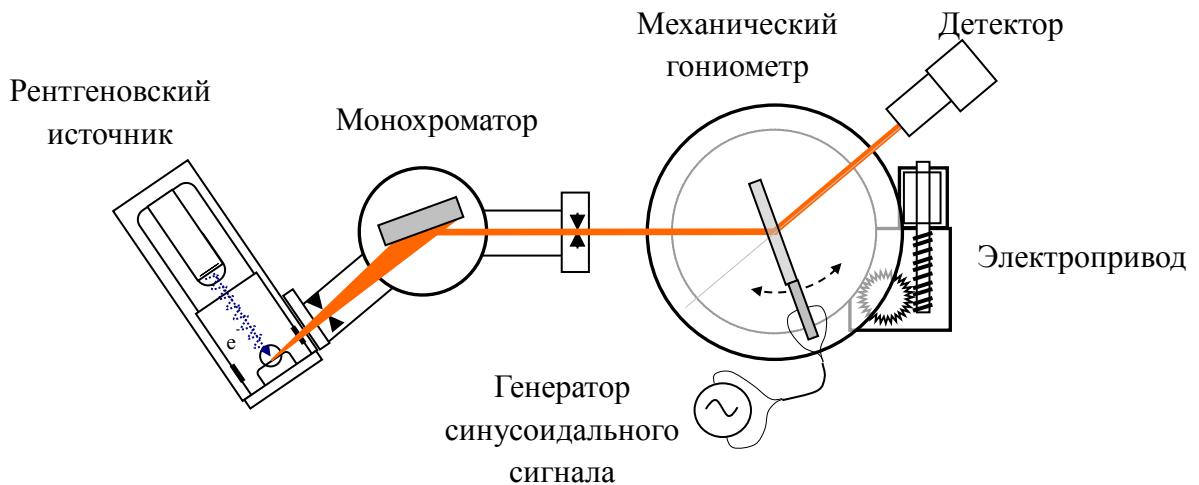


Рис. 3.1. Схема эксперимента для изучения дифракционных эффектов в рентгеноакустических кристаллах.

Для возбуждения и контроля ультразвука в кристаллическом элементе установка была снабжена системой контроля ультразвука, связанной с системой регистрации дифрагированного рентгеновского пучка.

Система возбуждения и контроля ультразвука состояла из генератора сигналов и усилителя (позволяющих подавать переменный электрический сигнал на электроды кристалла-преобразователя), высокочастотного милливольтметра (контролирующего интенсивность ультразвуковых колебаний в рентгеноакустическом резонаторе путем измерения падения напряжения в цепи) и рентгеноакустического резонатора. Резонатор крепился в специальном кристаллодержателе, который позволял жестко фиксировать кристалл на гониометре без явных потерь в интенсивности ультразвука и подводить к нему управляющий сигнал.

Система измерения интенсивности дифрагированного пучка представляла собой сцинтилляционный счетчик рентгеновских квантов, сигналы с которого поступали на систему стробоскопического синхронного детектирования (одноканальный режим, рис. 3.2).

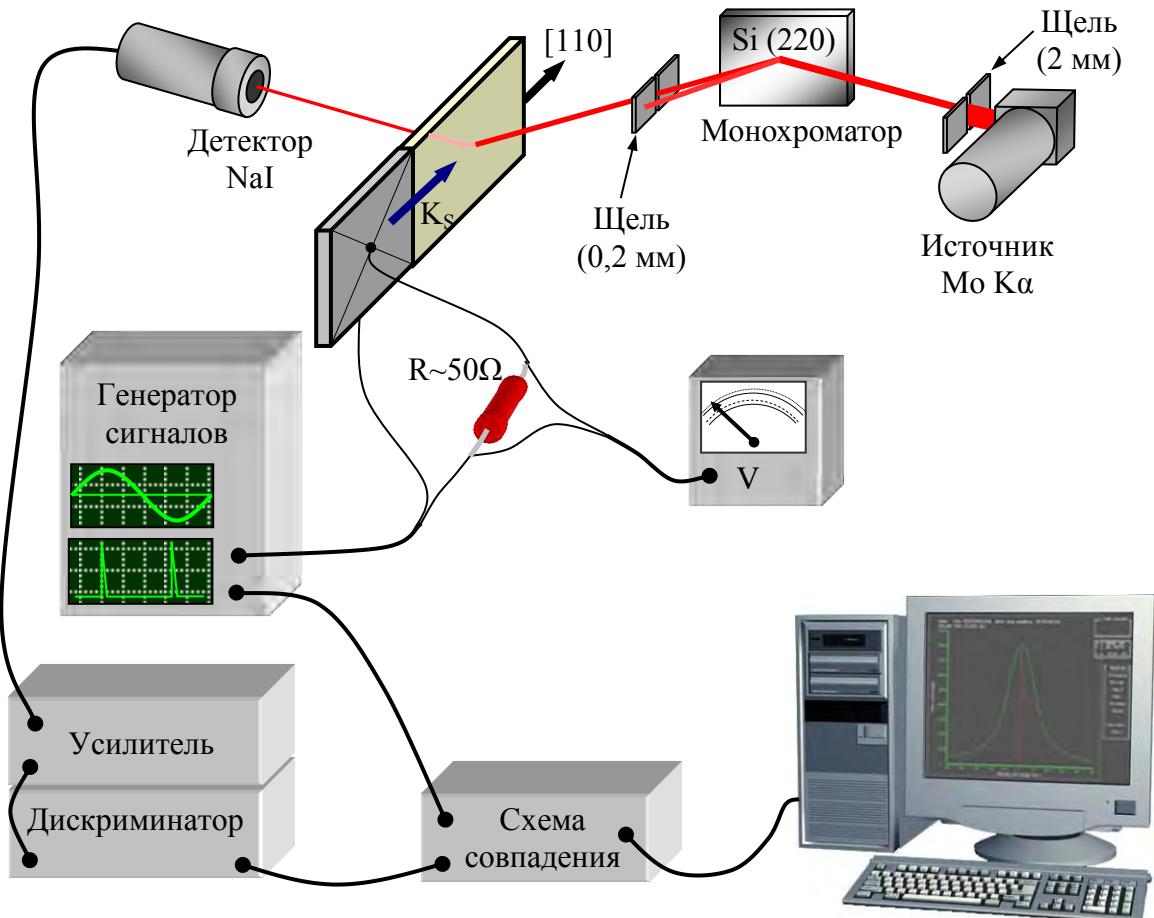


Рис. 3.2. Схема эксперимента для изучения рентгеноакустических взаимодействий в кристаллах и исследования деформационного поведения кристаллов с применением стробоскопии.

Параллельно синусоидальному сигналу генератора, выведенному на первый канал и возбуждающему колебания в кристалле, на второй канал генератора выводится импульсный сигнал с частотой повторения, равной частоте синусоидального сигнала и регулируемой фазой относительно нулевой фазы синусоиды. Эти импульсы подавались на схему синхронного детектирования и разрешали включать счет рентгеновских квантов, зарегистрированных сцинтилляционным детектором. Время регистрации

регулировалось длительностью импульса и не превышало одной двадцатой части от периода колебаний рентгеноакустического элемента (1-5 мкс).

На рис. 3.3. представлены кривые дифракционного отражения для различных образцов Ge(220) и Si(220), измеренные интегрально по времени при наличии ультразвуковых колебаний.

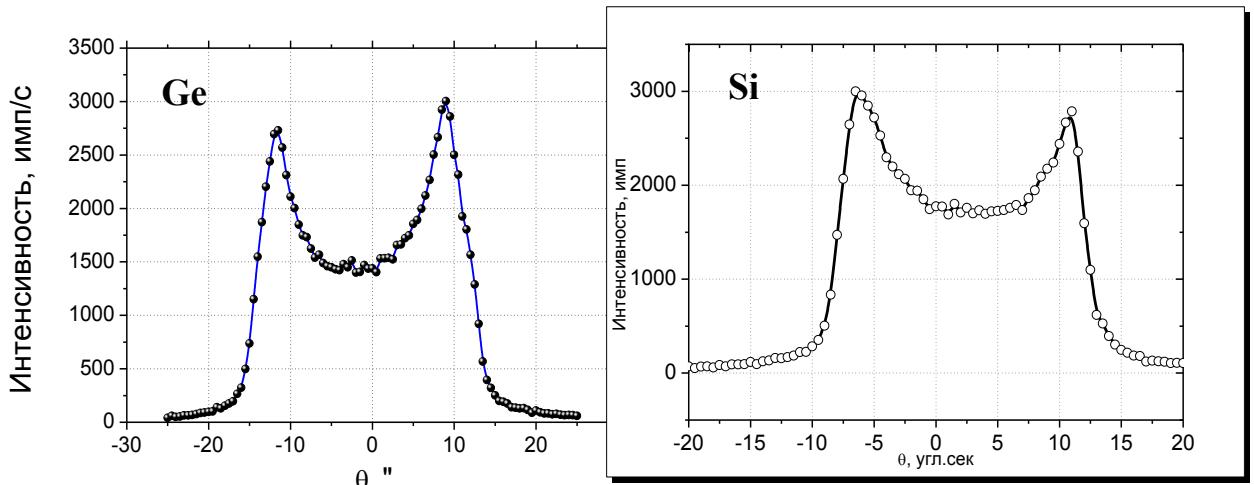


Рис. 3.3. КДО, измеренные интегрально по времени при включенном ультразвуке на участке с однородной ультразвуковой деформацией.

В процессе колебаний, возникающая ультразвуковая деформация, изменяет Брэгговское условие, и дифракция наблюдается в более широком диапазоне углов. При записи кривой дифракционного отражения в интегральном по времени режиме можно зарегистрировать воздействие ультразвуковой деформации сжатия-растяжения, что приводит к уширению (размазыванию) в некотором угловом диапазоне собственной кривой (кривой, измеренной в отсутствие ультразвуковых колебаний). Диапазон уширения кривой определяется локальным полем деформаций – пространственным распределением деформации и амплитудой колебаний кристалла в области, где в данный момент происходит дифракция рентгеновских лучей.

На рис. 3.4а показано изменение формы КДО при увеличении амплитуды переменного электрического сигнала, возбуждающего длинноволновые ультразвуковые колебания в кристалле для составного резонатора Ge+SiO₂.

Из рисунка видно, что с ростом амплитуды ультразвука уменьшается интенсивность и возрастает полуширина кривой, при этом в центре образуется характерный провал, вследствие синусоидального характера изменения деформации во времени. Анализ полученных результатов показал (рис. 3.4б), что уширение кривых пропорционально амплитуде ультразвука. Поскольку мы рассматриваем случай, когда ширина рентгеновского пучка много меньше длины волны ультразвука, измерение уширения дифракционных кривых в различных точках пластины (рентгенооптического кристалла), позволяет получить распределение амплитуды деформации упругих колебаний по длине кристалла.

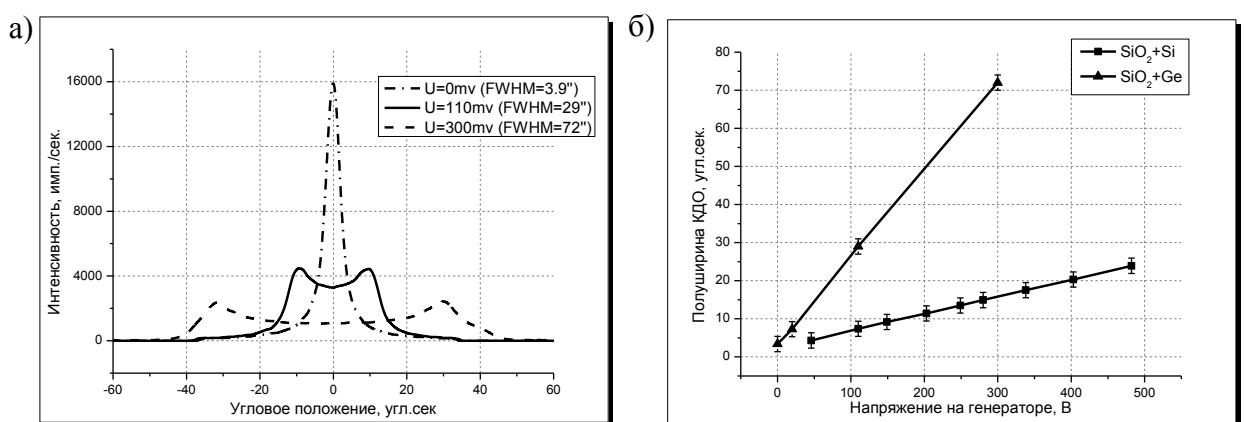


Рис. 3.4. (а) - Уширение КДО рентгеноакустического резонатора при увеличении амплитуды подаваемого на пьезопреобразователь сигнала резонансной частоты (~160 кГц). Si (220) в геометрии Лауэ. (б) - Линейная зависимость полуширины КДО от мощности.

Напомним, что в соответствии с рассмотренной в главе 2 одномерной моделью в резонаторах должны фактически возбуждаться колебания только в продольном направлении по оси Y резонатора. Т.е. для смещений по длине (вдоль оси Y) справедливо выражение $u = A \cos(\pi y / L)$, т.е. они должны не зависеть от координаты по толщине и ширине (L – длина пластины). Однако, из экспериментов следует (глава 2, раздел 6), что распределение смещений и, соответственно, упругих деформаций может в существенной мере отличаться от классического однородного, так называемого, «полуволнового» случая. На рис. 3.5 в качестве еще одного примера представлено распределение

амплитуды деформации по длине рентгенооптического элемента для составного резонатора $\text{Ge} + \text{SiO}_2$. На «половиновую» огибающую, как видно из рисунка, накладывается пространственная модуляция с более коротким периодом.

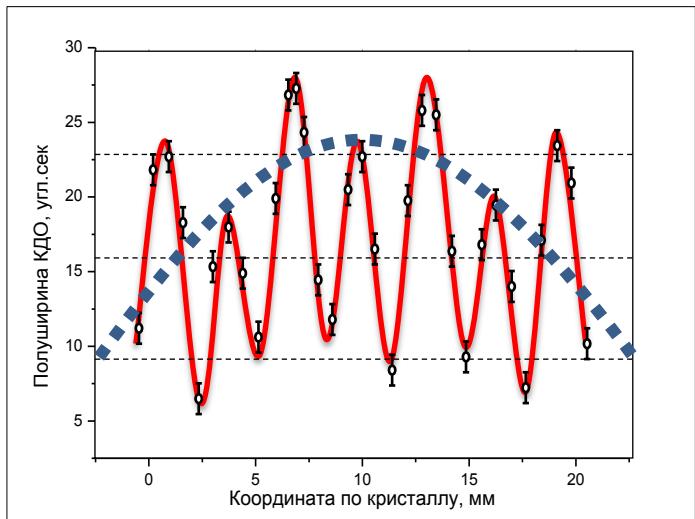


Рис. 3.5. Эволюция полуширины КДО по длине кристалла Ge при включенном ультразвуке, показывающее распределение амплитуды ультразвуковой деформации для составного резонатора $\text{SiO}_2 + \text{Ge}$.

Одним из важных результатов интегральных по времени измерений является сравнительно простая возможность определения профиля деформации создаваемого ультразвуковой волной по длине кристалла и выявления участков кристалла, где деформация имеет однородный характер (в области дифракции рентгеновского пучка) или градиентный.

Это важно для дальнейших измерений, когда нужно четко понимать характер деформации, локализованной рентгеновским пучком. Как было показано в предыдущей главе ультразвуковые деформации носят более сложный многомерный характер, но для предварительной оценки вполне достаточно и одномерной интерпретации.

Из полученных экспериментальных результатов следует, что ультразвуковая деформация в существенной степени влияет как на форму, так и на интенсивность дифракционных пиков интегрально измеренных кривых, и следующая важная задача при анализе дифракционных явлений,

возникающих при ультразвуковых взаимодействиях, – исследование характера изменения ультразвуковой деформации во времени.

Для изучения мгновенных деформаций, создаваемых ультразвуком в разработанных рентгеноакустических резонаторах и макетов узлов рентгеноакустических резонаторов, были проведены серии рентгенодифракционных экспериментов. Эксперименты проводились по двухкристальной бездисперсионной схеме дифракции рентгеновских лучей в геометрии Лауз.

Предварительные измерения кривых дифракционного отражения кристалла рентгеноакустических резонаторов, подвергнутых длинноволновым колебаниям, основная цель которых заключалась в настройке стrobоскопической аппаратуры и отработке техники эксперимента, проводились с в бездисперсионной двухкристальной схеме. Образец составного резонатора кварц+германий был установлен геометрии дифракции по Лауз. В экспериментах по исследованию распределения амплитуды ультразвуковой деформации (профиля ультразвуковой деформации) измерение интенсивности дифрагированного рентгеновского пучка проводилось интегрально во времени (т.е. усреднено по периоду

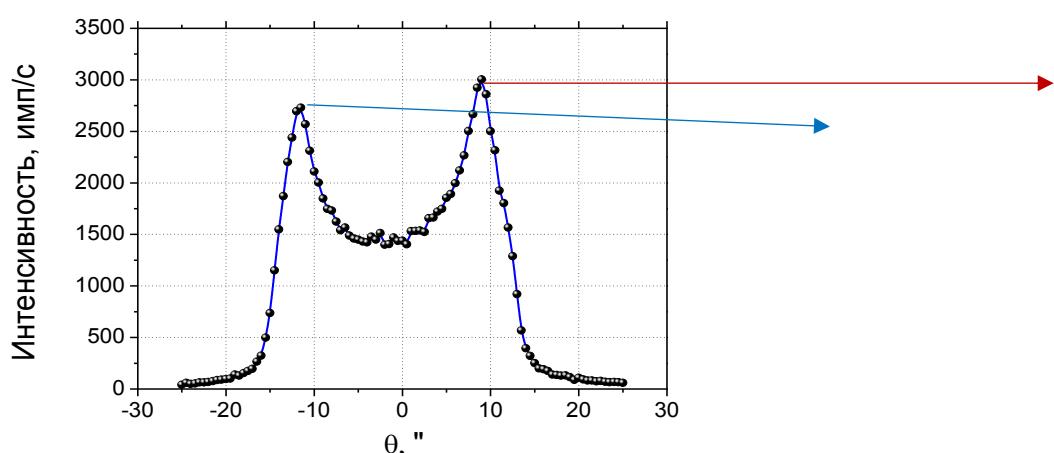


Рис. 3.6. КДО, измеренная интегрально по времени при включенном ультразвуке (слева) и КДО (справа), измеренные разрешением по времени в фазе максимального растяжения (левый пик -90°) и фазе максимального сжатия (правый пик $+90^\circ$) на том же участке с однородной ультразвуковой деформацией.

колебаний), а в экспериментах по изучению мгновенного распределения амплитуды деформации по рентгеновскому пучку регистрация дифрагированного рентгеновского пучка велась только в определенной фазе колебаний резонатора. При этом рентгеновский пучок позиционировался на области кристалла, как с практически линейным изменением ультразвуковой деформации по ширине рентгеновского пучка, так и с градиентным характером распределения. Стробоскопическая система настраивалась на выделение фазы максимальной деформации кристаллической решетки. На рис 3.6 представлены примеры КДО измеренных интегрально по времени (за весь период колебаний) и кривые того же образца, измеренные с помощью стробоскопической техники регистрации рентгеновского пучка для двух характерных фаз (колебательных состояний) кристалла - максимальная положительная деформация (растяжение, фаза колебаний -90°) и максимальная отрицательная деформация (сжатие, фаза колебаний $+90^\circ$).

На рис. 3.7. Представлены результаты экспериментов по изучению воздействия однородной ультразвуковой деформации на дифракцию

Рис. 3.7. Кривые дифракционного отражения, измеренные в фазе максимального растяжения кристалла, максимального сжатия и фазе отсутствия ультразвуковой деформации.

коллимированного рентгеновского пучка в условиях регистрации дифрагированного пучка с разрешением по времени. В качестве образца для исследований был выбран составной рентгеноакустический резонатор кварц+кремний, резонансная частота которого составляла 131,2 кГц. Эксперимент проводился в геометрии Лауэ в двухкристальной бездисперсионной схеме, для отражения Si(220) рис. 3.1. В соответствии с диаграммой распределения поля ультразвуковой деформации рентгеновский пучок был направлен на область с однородной деформацией. Стробоскопическая система была настроена на регистрацию определенной фазы колебаний, временное окно составляло около 1/20 периода колебаний (400 нс). В экспериментах были измеренные кривые дифракционного отражения при значениях фазы колебаний рентгеноакустического резонатора -90° , 0° и 90° , соответствующих фазе максимального растяжения кристалла, максимального сжатия и фазе отсутствия ультразвуковой деформации. Анализ кривых подтверждает предположение об однородности деформации: кривые, измеренные в фазах максимальной деформации сжатия и растяжения

Рис. 3.8. Кривые дифракционного отражения, измеренные в фазе максимального растяжения кристалла, максимального сжатия и фазе отсутствия ультразвуковой деформации.

по форме и по полуширине (которая является одним из индикаторов напряжений и неоднородностей кристаллической структуры) идентичны кривой, измеренной в фазе отсутствия деформации, что однозначно свидетельствует об однородности кристаллической решетки в условиях максимальных деформаций.

На рис. 3.8. на одной шкале представлены кривые, измеренные для данного образца интегрально по времени и с применением стробоскопической техники регистрации. Здесь показано уширение кривой дифракционного отражения при включении ультразвука, а также положение кривых, соответствующих фазам колебания с максимальным растяжением и сжатием кристаллической структуры относительно кривых, измеренных в интегральном режиме.

Рис. 3.9. Кривые дифракционного отражения, измеренные в фазе максимального сжатия, растяжения кристалла и фазе отсутствия ультразвуковой деформации на участке кристалла с неоднородным характером распределения деформации.

На рис. 3.9 представлены результаты эксперимента, проведенного на том же образце и с теми же экспериментальными параметрами (рентгеноакустический резонатор кварц+кремний, двухкристальная бездисперсионная схема, образец установлен в геометрии Лауэ, отражение Si(220)), но в данном случае рентгеновский пучок был направлен на область

с ожидаемым неоднородным распределением поля деформаций. Измеренные кривые дифракционного отражения в фазах максимального сжатия и растяжения кристалла имеют искаженную форму вследствие неоднородного распределения ультразвуковой деформации по области дифракции рентгеновского пучка.

Важным следствием из полученных результатов является выявление возможности быстрой (фактически с частотой ультразвука) перестройки рентгенооптической схемы, что может быть использовано, например, для изменения углового положения кривой дифракционного отражения при однородной ультразвуковой деформации. При этом важным вопросом является исследование максимально возможного диапазона перестройки углового положения кривой дифракционного отражения.

Для выяснения данного вопроса были проведены эксперименты, в которых подавалось максимально возможное переменное электрическое

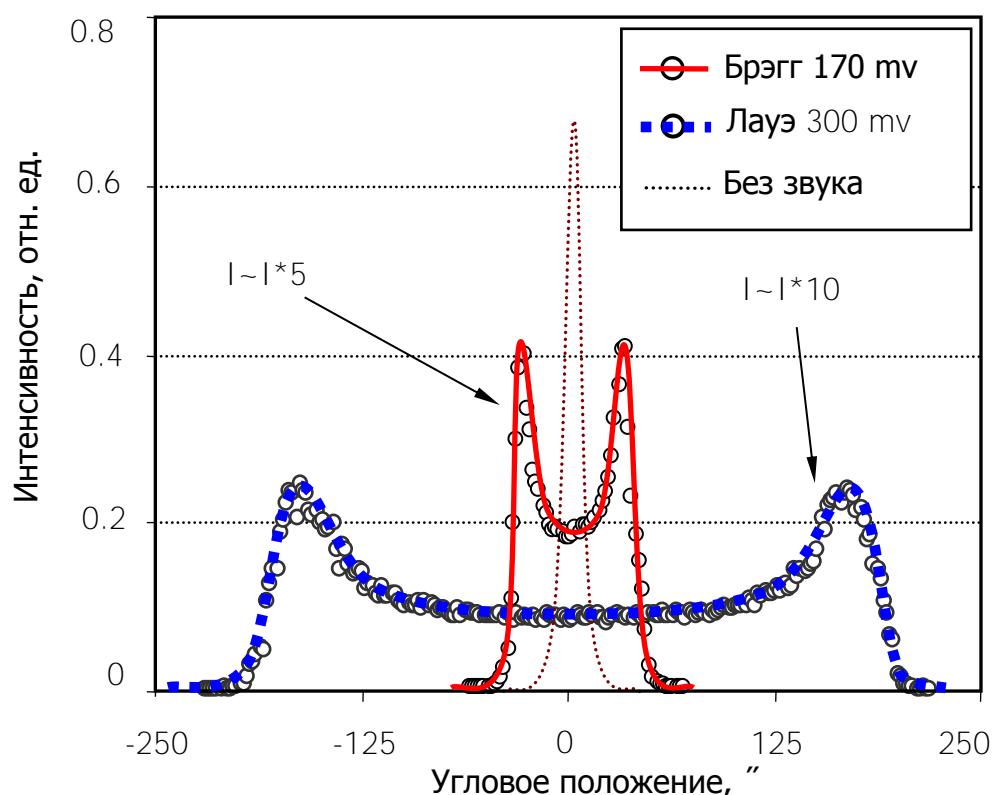


Рис. 3.10. Результаты измерения максимального диапазона угловой перестройки для геометрии Брэгга и Лауэ для кристалла германия, используемого в качестве рентгенооптического элемента.

напряжение, при котором рентгеноакустический резонатор, и вся рентгеноакустическая схема ведут себя стабильно и кристаллы не разрушается. На рис 3.10 представлены результаты экспериментов для геометрии Брэгга и Лауэ. Как следует из экспериментов в Лауэ геометрии для первого порядка дифракции был достигнут диапазон перемещения $120''$, в Брэгговской геометрии диапазон перемещения составлял более 10 угловых минут. Дальнейшее увеличение амплитуды электрического сигнала приводило к разрушению резонатора. Следует отметить, что при переходе на данные порядки отражений диапазон может быть существенно увеличен.

3.2. Угловое – пространственное сканирование рентгеновского пучка.

Схема анализатор – монохроматор (Лауз и Брэгг). Измерение КДО – описание метода. Калибровка рентгенооптических кристаллов монохроматоров. Экспериментальные результаты по измерению КДО. Сравнение механической и ультразвуковой угловой перестройки.

Возможности быстрой угловой перестройки кривых дифракционного отражения, продемонстрированные в предыдущем разделе, являются эффективной основой для разработки методов быстрой перестройки рентгенооптических схем рентгеновской дифрактометрии с применением рентгеноакустических резонаторов. Как следует из наблюдаемых эффектов, ультразвуковые деформации позволяют эффективно модулировать параметр кристаллической решетки, создавая условия однородной и неоднородной пространственной модуляции. Хорошо известно, условия дифракции, определяются на основе закона Брэгга, который устанавливает связь между тремя физическими величинами: длиной волны, углом дифракции (углом между дифракционной решеткой, падающим и дифрагированным пучком). Таким образом, модуляция параметра кристаллической решетки является основой для эффективного управления параметрами рентгеновской дифракции, параметрами рентгенооптической схемы рентгеновского эксперимента. В зависимости от задач это позволяет проводить анализ углового распределения интенсивности дифракции, изменять угол падения рентгеновского пучка на кристалл, управлять пространственным положением рентгеновского пучка. В настоящем разделе представлены результаты реализации углового и пространственного сканирования рентгеновского пучка и разработки практических приложений, связанных с обнаруженным эффектом.

Для реализации управления параметрами рентгеновского эксперимента в условиях дифракции рентгеновского пучка на двух (и более) последовательно установленных кристаллах были разработаны и экспериментально реализованы два экспериментальных подхода,

использующих принципиально различные рентгенооптические схемы: схема образец-анализатор и схема монохроматор-образец.

Основой рентгенооптических схем являлся рентгеноакустический кристалл-резонатор. Для управления экспериментом посредством изменения угла дифракции рентгеноакустического кристаллического образца необходимо создание условий однородного ультразвукового поля деформаций в области дифракции рентгеновского пучка. В первой схеме рентгеноакустический кристалл используется в качестве анализатора, а во второй рентгеноакустический кристалл представляет собой перестраиваемый монохроматор. Управление углом падения пучка на образец, измерения интенсивности и углового распределения дифрагированного пучка осуществляется на основе ультразвуковой пространственно-временной модуляции параметра решетки рентгенооптического кристалла.

Рентгеноакустический анализатор

На рис. 3.11 показана рентгенооптическая схема для управления угловыми параметрами рентгеновского пучка, собранная на основе рентгеноакустического кристалла и представляющая собой двухкристальную параллельную бездисперсионную схему рентгеновской дифракции, в которой рентгеноакустический резонатор установлен после исследуемого кристалла и используется как анализатор, т.е. позволяет измерить угловое распределение интенсивности дифракции исследуемого кристалла. Измерение и углового распределения интенсивности, дифрагированного исследуемым кристаллом рентгеновского пучка, осуществляется на основе ультразвуковой модуляции параметра кристаллической решетки анализатора. Для реализации схемы падающий на исследуемый кристалл пучок должен быть слаборасходящимся и перекрывать всю угловую область отражения образца.

Расходящийся пучок сразу после трубы 1 (в то время как коллимирующие щели настроены на высокую угловую расходимость) направляется на исследуемый кристалл 3, который выполняет также

функцию монохроматора, при этом формируя - пропуская рентгеновский пучок и дополнительно рассеивая его на малые углы (в соответствии с собственной кривой дифракционного отражения).

Сформированный образцом рентгеновский пучок через щель,

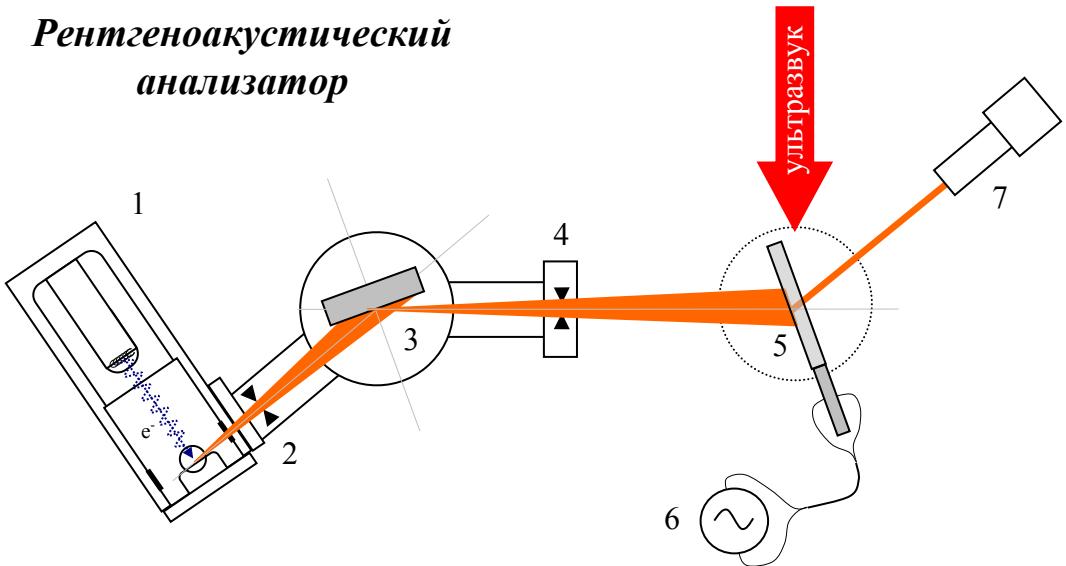


Рис. 3.11. Рентгенооптическая схема для анализа углового распределения дифрагированного рентгеновского пучка на основе рентгеноакустического анализатора.

1. Источник рентгеновского излучения;
2. Щель;
3. Исследуемый кристалл;
4. Щель;
5. Рентгеноакустический анализатор;
6. Система возбуждения и контроля ультразвука;
7. Рентгеновский детектор

позволяющую отсечь линию K_{a2} , направляется на рентгеноакустический анализатор 5 (см. рис. 3.11), установленный под углом Брэгга. Рентгенооптический элемент составного рентгеноакустического резонатора в данном случае позволяет проводить анализ углового распределения, дифрагированного кристаллом-образцом рентгеновского пучка. Оставаясь неподвижным в процессе колебаний, он выполняет ту же операцию по

сканированию угла дифракции, что и статический кристалл-анализатор при его повороте.

Рентгеноакустический монохроматор

Рентгенооптическая схема с применением рентгеноакустического кристалла в качестве монохроматора, представляющая собой также классическую двухкристальную бездисперсионную параллельную схему дифракции рентгеновских лучей показана на рис. 3.12.

Отличие от схемы с анализатором состоит в том, что, в этом случае составной рентгеноакустический резонатор установлен до кристалла-образца и используется в качестве перестраиваемого кристалла-монохроматора. Схему можно реализовать как геометрии дифракции по Брэггу, так и в схеме Лауз–дифракции. В случае геометрии Лауз используется чистая мода, при геометрии Брэгга – поперечная деформация, вызванная продольными колебаниями. В настоящей схеме, управление рентгеновским пучком (изменение угла дифракции) осуществляется до того, как пучок попадает на исследуемый кристалл (кристалл-образец).

На рентгенооптический кристалл составного или монолитного рентгеноакустического резонатора 3 падает ограниченный щелью 2 после трубы 1 рентгеновский пучок. Дифрагированный рентгеноакустическим кристаллом пучок через щель, отсекающую линию K_{a2} направляется на исследуемый кристалл 6, установленный в отражающее положение в геометрии дифракции на отражение или на прохождение. При включении ультразвука на образец падает промодулированный по углу падения рентгеновский пучок (в окрестности угла Брэгга), причем угол изменяется во времени по гармоническому закону. Стоит отметить, что диапазон сканирования по углу для рентгеноакустического монохроматора лимитируется размерами щелей коллиматора и амплитудой ультразвуковых деформаций.

**Рентгеноакустический
монохроматор**

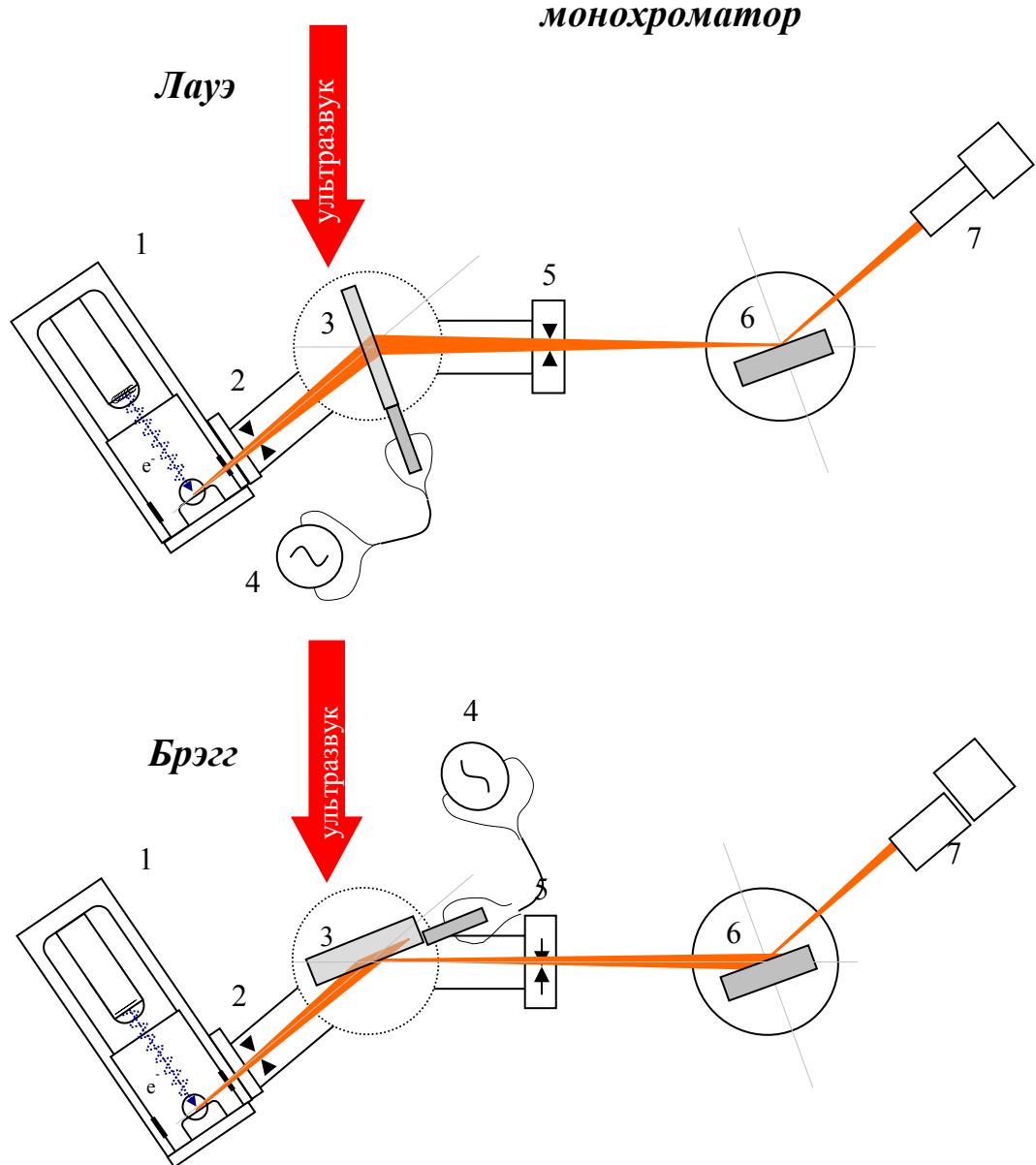


Рис. 3.12. Рентгенооптическая схема на основе рентгеноакустического монохроматора для измерения КДО.

1. Источник рентгеновского излучения;
2. Щель;
3. Рентгеноакустический монохроматор;
4. Щель;
5. Исследуемый кристалл;
6. Система возбуждения и контроля ультразвука;
7. Рентгеновский детектор

Измерения кривых дифракционного отражения

Таким образом, рентгеноакустический кристалл который работает в режиме однородной модуляции параметра решетки (в области дифракции рентгеновского пучка) по гармоническому закону во времени представляет собой пристраиваемый фильтр для падающего расходящегося пучка. Каждому значению фазы колебания кристалла (мгновенному деформационному) квазистатическому «замороженному» состоянию

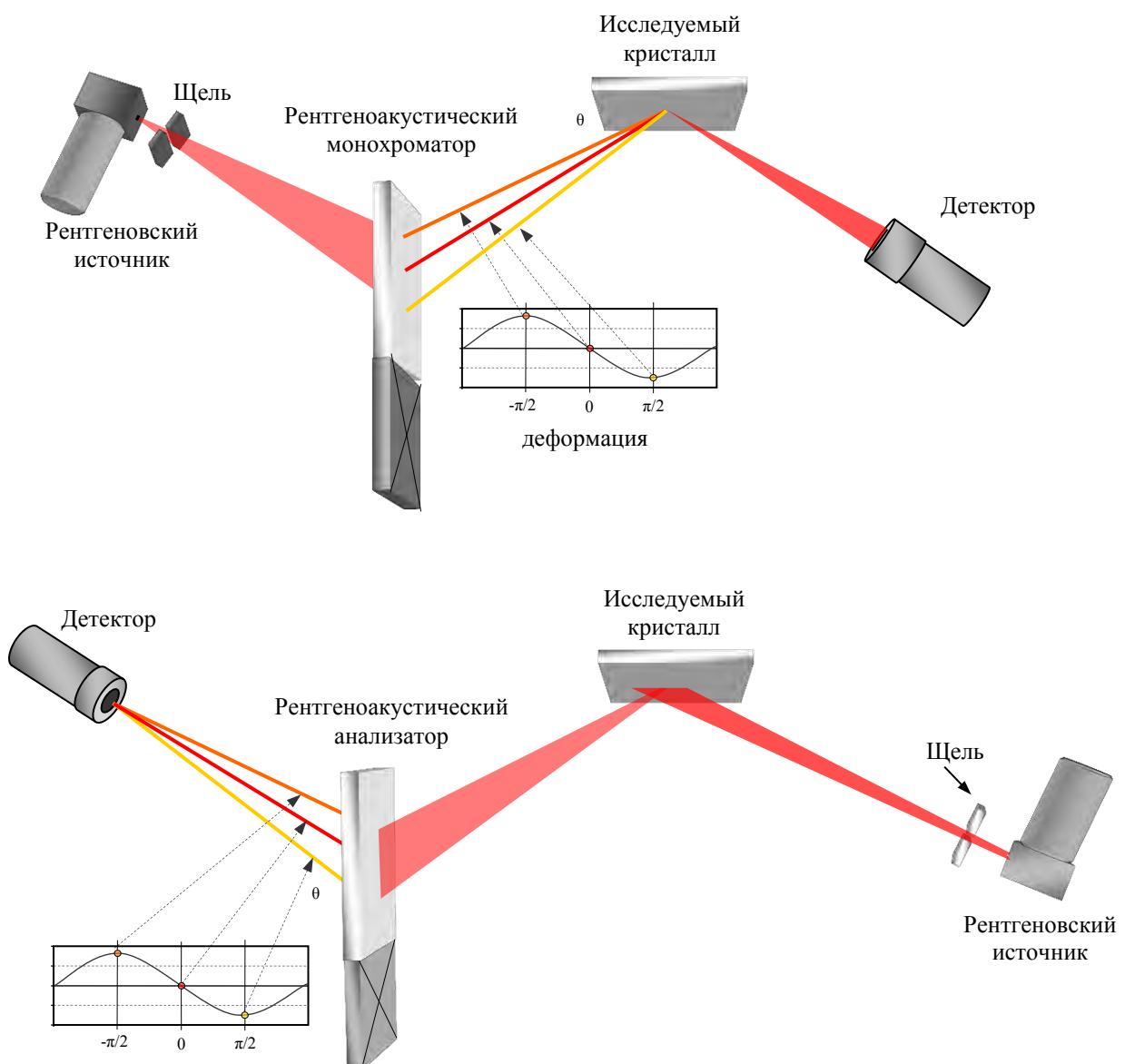


Рис 3.13. Рентгенооптическая схема на основе рентгеноакустического монохроматора и анализатора для измерения КДО неподвижного исследуемого кристалла.

кристалла) отвечает свой параметр кристаллической решетки, и соответственно, (по закону Вульфа-Брэгга при фиксированной длине волны) определенный дифракции рентгеновского пучка фиксированной длины волны. То есть угол дифракции будет зависеть от фазы (рис 3.13).

Следовательно, для записи кривой дифракционного отражения, которая представляет собой угловую зависимость интенсивности дифракции в окрестности Брэгговского отражения с применением рентгеноакустического кристалла достаточно измерить зависимость интенсивности дифракции от фазы колебаний и на основе калибровки амплитуды ультразвуковой деформации кристалла осуществить перевод из фазовых координат в угловые координаты для оси абсцисс.

Следует отметить, что измерения кривых дифракционного отражения с использованием ультразвука проводилось и в несколько иной схеме, чем предложенные выше.

Первоначально использовалась методика измерений кривой дифракционного отражения исследуемого кристалла, который представлял собой рентгенооптическую часть составного резонатора. Предварительно он подвергался подготовительной обработке, заключающейся коррекции длины и ширины, обработке поверхности и склеивался торцевыми гранями с пьезоэлектрическим резонатором. Получившийся составной образец-резонатор устанавливался на гониометр, и в нем на резонансной частоте первой гармоники продольных колебаний по длине возбуждались колебания. Рентгеновский пучок позиционировался на центральную область исследуемого кристалла (область с однородной деформацией) и проводилась запись кривой дифракционного отражения, представляющей собой зависимость интенсивности дифрагированного рентгеновского пучка от фазы колебаний резонатора. Ввиду большого объема подготовительных работ такой способ измерения кривых дифракционного отражения весьма неэффективный.

Регистрация интенсивности дифрагированного рентгеновского пучка при записи кривой дифракционного отражения на основе модуляции параметра кристаллической решетки рентгеноакустического элемента возможна несколькими путями. С использованием одноканального анализатора - специального стробоскопического тракта, основанного на системе совпадений, позволяющего проводить измерение и накопление в счетном канале сигнала с детектора рентгеновских квантов только в строго определенный фазе колебаний (представляющее собой измерение одной точки кривой дифракционного отражения), после чего временное окно перемещается для измерения следующей точки и т.д. по всему периоду колебаний. Второй способ более изощренный и заключается в применении многоканальной системы, позволяющей проводить временную развертку полученного сигнала по каналам, – измерять параллельно все точки кривой. В обоих случаях кристаллы остаются неподвижными, вращения гониометров отсутствует и измеряется зависимость интенсивности дифракции от фазы колебаний, то есть зависимость от межплоскостного расстояния d рентгеноакустического кристалла, которое изменяется по гармоническому закону.

Измерение кривых дифракционного отражения проводилось на основе вышеописанных рентгенооптических схем рентгеноакустического анализатора или монохроматора с применением, как одноканальной схемы, так и многоканального временного анализатора.

Многоканальный анализатор был настроен на режим фазового детектирования - распределенного многоканального накопления зарегистрированных рентгеновских квантов в зависимости от фазы колебаний рентгеноакустического кристалла. В этом режиме анализатор синхронизован по частоте колебаний с рентгеноакустическим кристаллом – общее количество каналов соответствует полному периоду колебаний кристалла и каждому каналу соответствует определенное значение фазы колебаний. Таким образом, в каждом канале собираются данные количестве

дифрагированных квантов, измеренных для различного колебательного состояния кристалла, определяемого фазой колебания рис 3.14. На выходе получается зависимость интенсивности рентгеновского пучка от номера канала и соответственно от фазы колебаний.

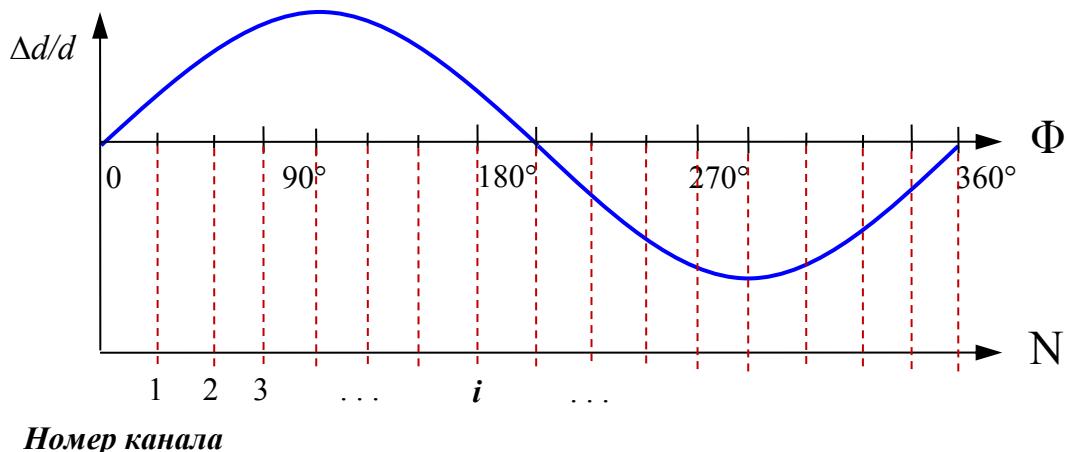


Рис. 3.14. Изменение межплоскостного расстояния ($\Delta d/d$) в зависимости от фазы (Φ) и разбиение фазовой шкалы по каналам для измерения зависимости интенсивности дифрагированного рентгеновского пучка от фазы колебаний.

Диаграмма Дю-Монда наглядно показывает, что ультразвуковая фазовая перестройка рентгеноакустического кристалла вполне заменяет механический поворот статического кристалла Рис. 3.15.

Из рисунка видно, что при определенной интенсивности ультразвуковых колебаний (когда диапазон угловой перестройки много больше полуширины измеряемой кривой) рентгеноакустический метод позволяет просканировать всю область отражения исследуемого кристалла. Важное достоинство этого записи КДО - неподвижность кристаллов в течение всего эксперимента, то есть независимость от механических систем. Более того, ультразвуковые колебания проходят на высокой частоте (сотни килогерц), то есть полное сканирование области дифракции осуществляется с миллисекундной скоростью. При этом на практике время необходимое для записи кривой лимитируется быстродействием регистрирующей аппаратуры и интенсивностью источника.

Эксперименты по измерению КДО проводились с использованием разработанных рентгенооптических схем, включающих рентгеноакустические элементы (монолитные и составные резонаторы). Для записи КДО использовались оба типа предложенных схем: схема на основе рентгеноакустического анализатора, и схема на основе рентгеноакустического монохроматора. В первом случае исследуемый кристалл устанавливался сразу после ограниченного щелью источника, на позицию монохроматора. Изменения условий дифракции осуществлялись с помощью рентгеноакустического элемента, установленного после исследуемого кристалла (рис. 3.11). Следует отметить, что в этом случае

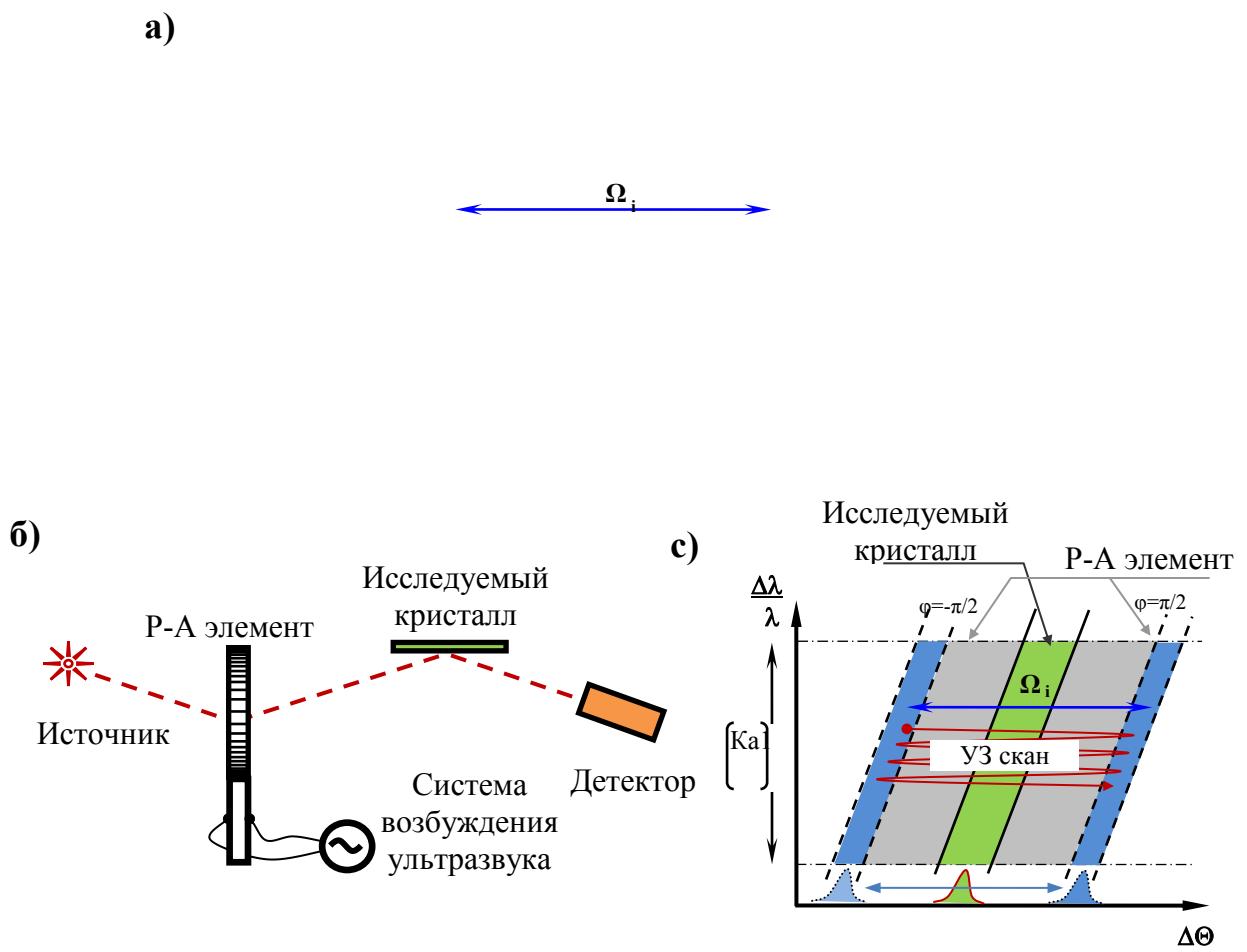


Рис 3.15. а) Двухкристальная интегральная КДО при включенном ультразвуке и ее составляющие - стробоскопические КДО; б) Двухкристальная рентгенооптическая схема; в) Диаграмма Дю-Модна двухкристальной схемы с применением рентгеноакустического элемента. Ω -интегральная область отражения рентгеноакустического элемента (полуширина интегральной КДО).

возможна и трехкристальная конфигурация, с установкой с широкой угловой областью дифракции (например, кристалл пирографита). Во втором случае рентгеноакустический кристалл был установлен сразу после источника в качестве перестраиваемого ультразвуком рентгеноакустического монохроматора (рис. 3.12), обеспечивающего управление углом падения рентгеновского пучка на исследуемый кристалл. Исследуемые образцы представляли собой кристаллы Si, Ge, TeO₂, LiF и др.

Рентгеновская установка была оснащена системой для возбуждения и контроля ультразвуковых колебаний, специальными кристаллодержателями рентгеноакустических элементов, системой регистрации рентгеновского пучка на основе многоканального временного анализатора. Подробное описание экспериментальной рентгеновской установки и всех дополнительных узлов представлено в главе 2.

Фазовые зависимости интенсивности дифракции кристалла Ge (444), измеренные с применением рентгеноакустического анализатора, представлены на рис. 3.16. Измерения проводились при различных положениях рентгеновского пучка на образце.

Основной задачей системы регистрации рентгеновского пучка было разделить период ультразвукового колебания на определенное число независимых каналов счета, для последующего накопления в каждом канале интенсивности рентгеновского пучка, измеренной строго в определенной фазе (рис. 3.16 а). Для этого необходимо предварительно проанализировать управляющий сигнал с генератора и определить время полного периода колебаний, и вычислить диапазон временного окна, соответствующего одному каналу счета исходя из общего числа каналов (от 20 до 65535), задаваемых системе как экспериментальный параметр.

Таким образом, посредством ультразвуковой деформации межплоскостного расстояния d было реализовано измерение интенсивности дифрагированного рентгеновского пучка в зависимости от фазы колебаний.

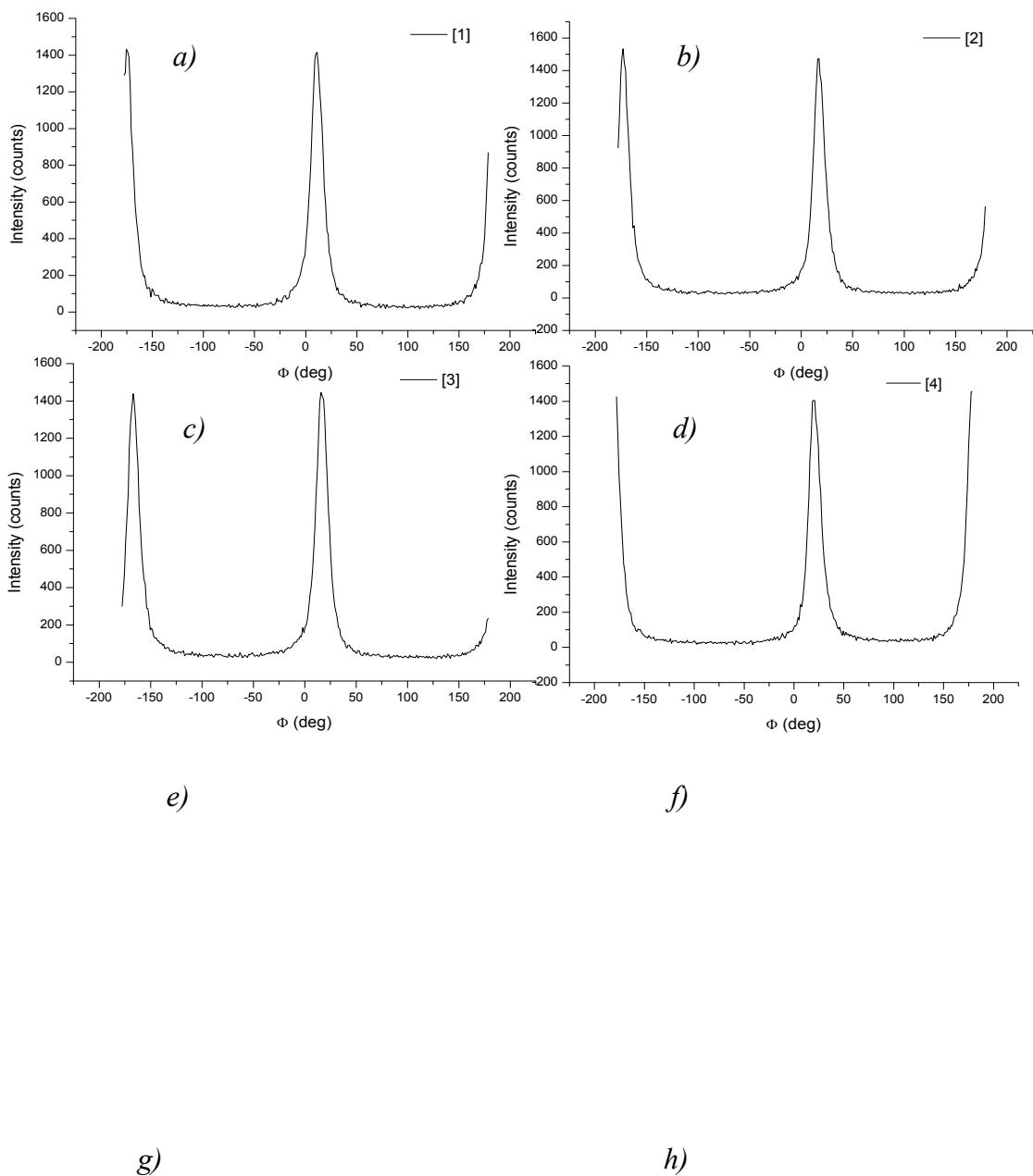


Рис. 3.16. Экспериментальные фазовые зависимости интенсивности дифракции от кристалла Ge(444). Представленные кривые измерены с применением рентгеноакустического анализатора ($[SiO_2 (110)\#1]$ – монолитный кварцевый резонатор) в геометрии Брэгга для различных положений рентгеновского пучка на кристалле (a) – (h).

На рис. 3.17 показаны кривые зависимости кремния, измеренные рентгеноакустическим способом в различных точках исследуемого образца с применением рентгеноакустического анализатора. Рентгеноакустический элемент, представляющий собой составной рентгеноакустический резонатор $[SiO_2+Si(110)]$, был применен в роли анализатора. Для него была реализована

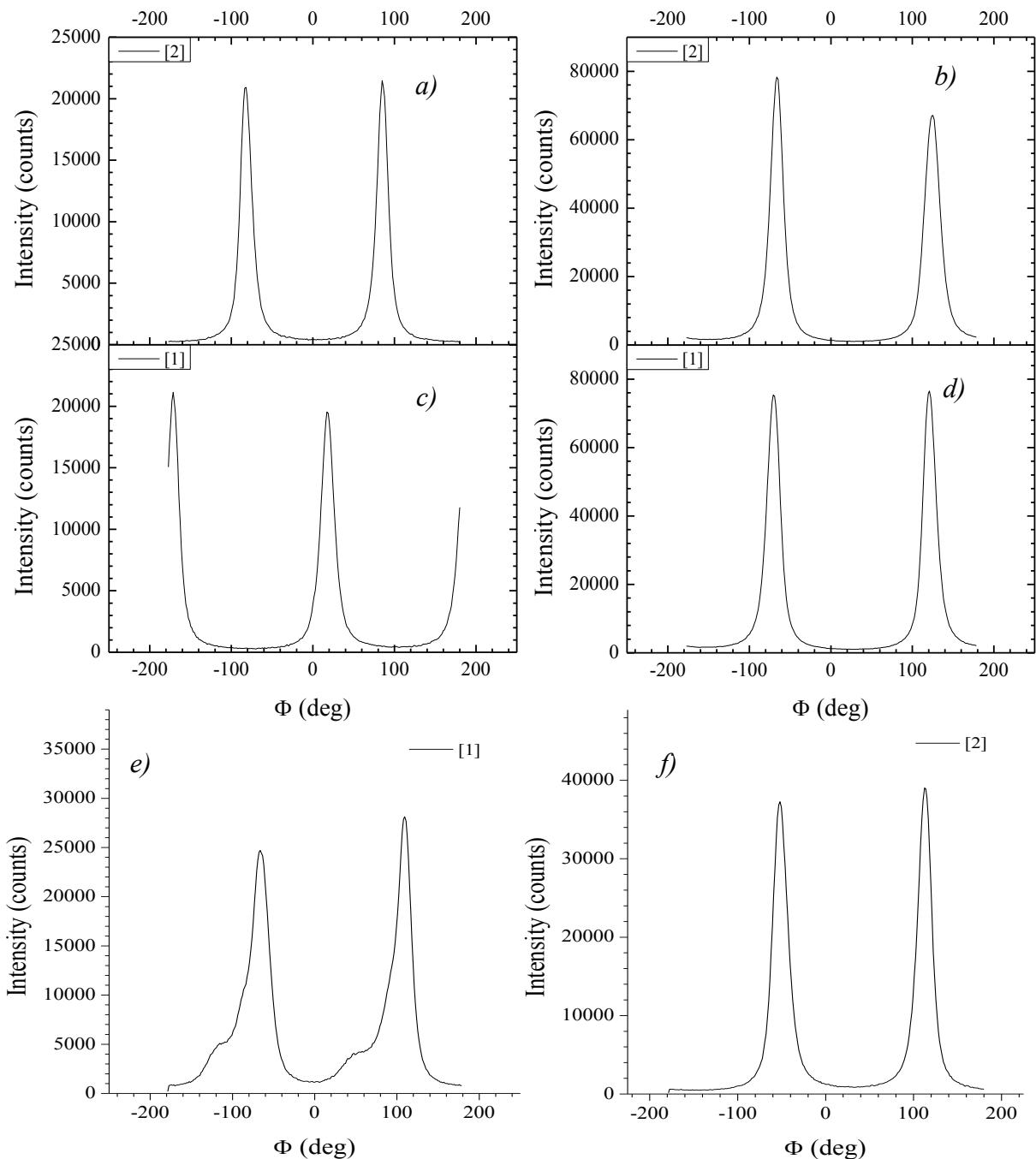


Рис. 3.17. Экспериментальные фазовые зависимости интенсивности дифракции кристалла $Si(220)$, измеренные в геометрии Лауэ с применением рентгеноакустического составного анализатора $[SiO_2+Si(100)]$ ($f_{pl} = 160.00\text{ kHz}$) различных точках кристалла. Видно искажение формы кривой (e), вызванное дефектами кристалла.

дифракция в Лауз геометрии с использованием симметричного рефлекса (220). Резонансная частота первой гармоники продольных колебаний составляла $f_p = 160,00$ kHz. Исследуемый образец представлял собой пластину кристаллического кремния с ориентацией поверхности (110). Образец был установлен в геометрии Брэгга, использовался также симметричный рефлекс (220), что позволяло работать в бездисперсионной двухкристальной схеме дифракции рентгеновских лучей.

Из рис. 3.16, 3.17 видно, что кривые, измеренная с помощью многоканального анализатора на шкале фазовой развертки, представляют собой два дифракционных пика, равноудаленных от фазы $\pi/2$ (фазы максимального растяжения или сжатия).

Рассмотрим полный период колебания: за первую половину периода кристалл сначала растягивается, а потом возвращается в недеформированное состояние, за вторую половину периода происходит то же самое, но при сжатии кристалла. То есть за полный период происходит двойное сканирование области дифракции: при изменении фазы (от $\pi/2$ до $3\pi/2$) – при увеличении межплоскостного расстояния и при уменьшении (изменение фазы от $3\pi/2$ до $5\pi/2$ или от $-\pi/2$ до $\pi/2$) см. рис. 3.18. После измерения из двух пиков формировался один путем их зеркального сложения относительно фазы $\pi/2$ (90°).

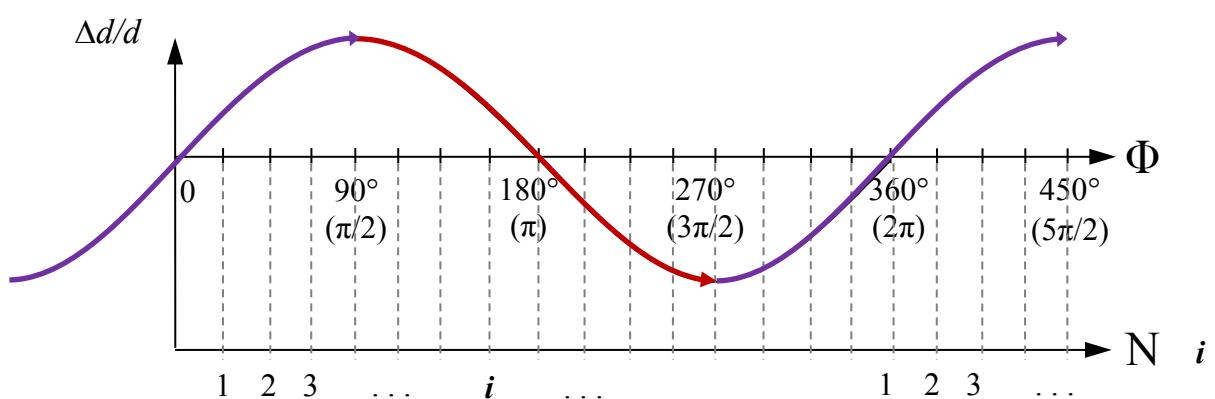


Рис. 3.18– а) Изменение межплоскостного расстояния ($\Delta d/d$) в зависимости от фазы колебаний (Φ) рентгеноакустического кристалла и области сканирования в прямом и обратном направлении.

Ниже представлены экспериментальные зависимости интенсивности дифрагированного пучка от фазы колебаний рентгеноакустического кристалла - анализатора, измеренные в бездисперсионной параллельной ($n_+ - n_-$) схеме двухкристальной дифрактометрии (рис. 3.19). В качестве рентгеноакустического анализатора использовались монолитные кварцевые резонаторы $[\text{SiO}_2 (110)\#1]$ и $[\text{SiO}_2 (110)\#2]$. Рентгеноакустический кристалл был установлен в геометрии дифракции на отражение, использовался симметричный рефлекс (330). Исследуемый образец представлял собой пластину кристалла германия и устанавливался также в геометрии дифракции на отражение. Для уменьшения дисперсии был выбран рефлекс (444). Углы Брэгга для рефлексов Ge (444) и SiO_2 (330) близки по величине,

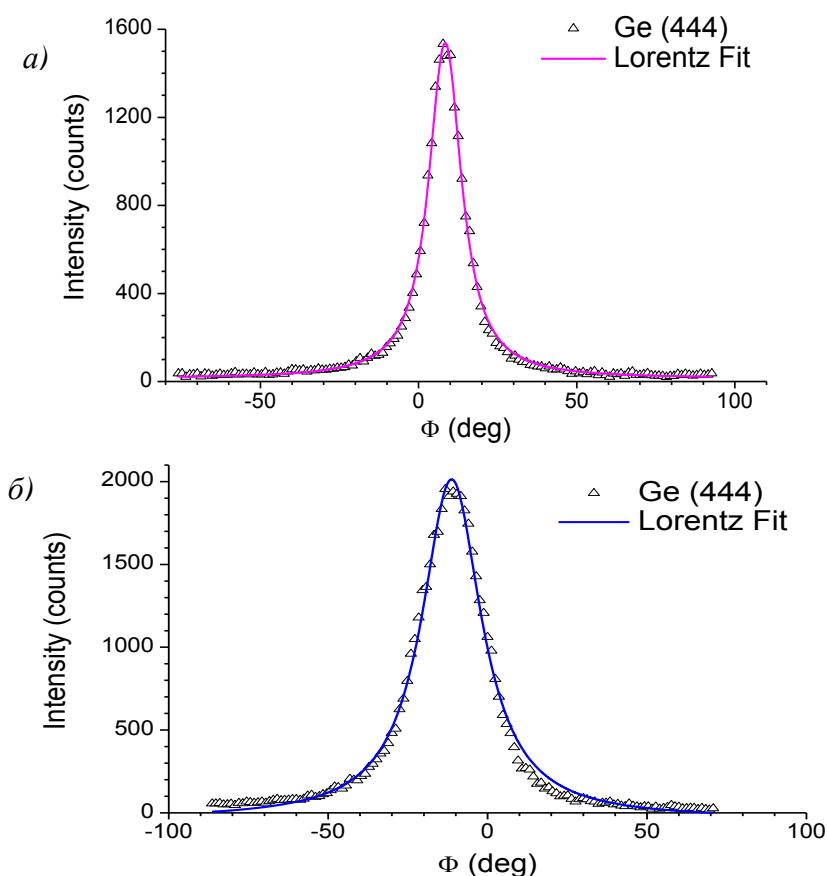


Рис. 3.19. Экспериментальные фазовые зависимости интенсивности дифракции кристалла Ge (444), измеренные в двух в геометрии Брэгга с применением с применением двух различных монолитных рентгеноакустических анализаторов SiO_2 (110):
а) $f_{p1} = 132.89 \text{ kHz}$, *б)* $f_{p2} = 133.33 \text{ kHz}$ (*б*).

что обеспечивало практически бездисперсионную схему дифракции рентгеновских лучей. Рентгеноакустические элементы возбуждались на резонансной частоте $f_p = 132,89$ и $133,33$ kHz. При построении экспериментальных зависимостей для аппроксимации данных использовалась кривая Лоренца.

Следующая серия экспериментов по измерению фазовых зависимостей интенсивности дифракции проводились с использованием двухкристальной схемы, основанной на рентгеноакустическом монохроматоре. Кривые зависимости интенсивности дифракции кристалла Ge (444) от фазы колебаний рентгеноакустического монохроматора, измеренные в различных точках исследуемого образца, представлены на рис. 3.20.

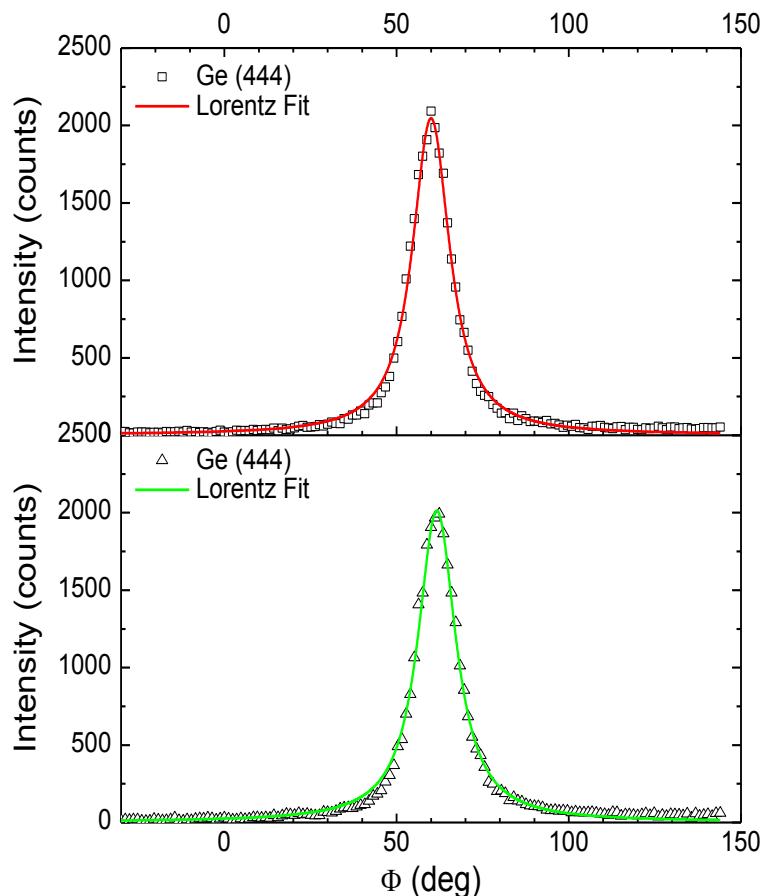


Рис. 3.20. Экспериментальные фазовые зависимости интенсивности дифракции кристалла Ge (444), измеренные в двух произвольных точках кристалла в геометрии Брэгга с применением рентгеноакустического монохроматора, представляющего собой монолитный кварцевый резонатор [SiO_2 (110) #2], ($f_{p1} = 133,33$ kHz).

В экспериментах тестировалась возможность перемещать исследуемый образец. В данной схеме рентгеноакустический элемент, представляющий собой известный монолитный резонатор $[SiO_2(110) \#2]$, был расположен перед исследуемым кристаллом в брэгговской геометрии дифракции (отражение (330)) и выполнял функцию перестраиваемого монохроматора. Исследуемый образец представлял собой пластину кристаллического Ge и был установлен также в геометрии Брэгга, отражение Ge(444).

На рис. 3.21 представлены кривые дифракционного отражения кристалла фторида лития LiF, также измеренные рентгеноакустическим методом на разных участках: в середине исследуемой кристаллической пластины (рис. 3.21 a) и ближе к краю пластины (рис. 3.21 b) при перемещении исследуемого кристалла.

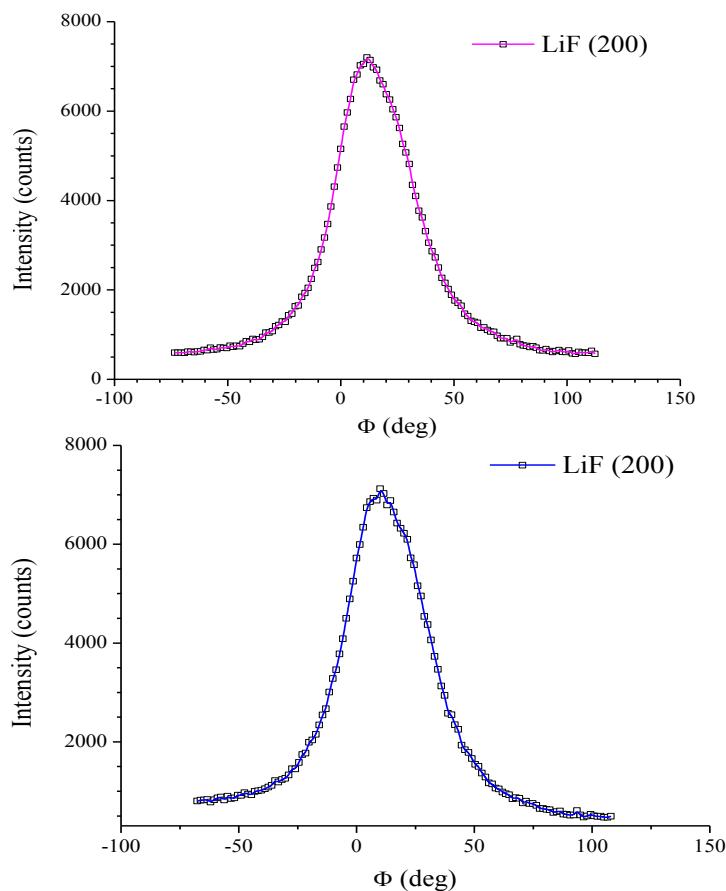


Рис. 3.21. Экспериментальные фазовые зависимости интенсивности дифракции кристалла LiF(200), измеренные середине кристаллической пластины (а) и ближе к краю пластины (б) с помощью составного рентгеноакустического монохроматора, установленного в геометрии Лауз. Составной резонатор $[SiO_2+Si(100)]$, $f_{p1} = 160.00\text{ kHz}$.

В качестве монохроматора использовался составной рентгеноакустический резонатор $[\text{SiO}_2 + \text{Si} (100)]$ (резонансная частота составляла $f_p = 160,00 \text{ kHz}$), установленный в Лауэ геометрии дифракции для рефлекса Si (220). После монохроматора на позиции исследуемого кристалла находился кристалл LiF, установленный в геометрии дифракции на отражение. Углы Брэгга рефлексов фторида лития LiF (200) и кремния Si (220) близки, что позволяло работать в слабодисперсионной схеме дифракции рентгеновских лучей.

По аналогии с предыдущими экспериментами для кристалла кремния измерены кривые зависимости интенсивности дифракции (рис. 3.22) от фазы колебаний рентгеноакустического монохроматора. Задача этого эксперимента была повысить угловое разрешение. В качестве монохроматора был применен монолитный кварцевый резонатор $[\text{SiO}_2(110)]$ (резонансная частота $f_p = 133,33 \text{ kHz}$), используемый в предыдущих экспериментах. Рентгеноакустический элемент был установлен в Лауэ геометрии дифракции $\text{SiO}_2(220)$. Исследуемый образец представлял собой пластину кремния и был установлен в геометрии Брэгга, рефлекс Si (220).

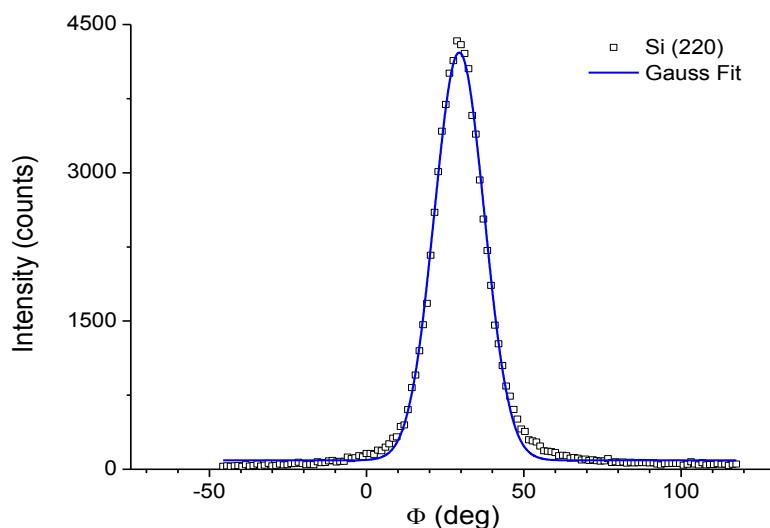


Рис. 3.22. Экспериментальные фазовые зависимости интенсивности дифракции кристалла Si(220); измеренные в геометрии Лауэ с помощью монолитного рентгеноакустического резонатора Рентгеноакустический элемент $[\text{SiO}_2(110)]$. Резонансная частота $f_{pl} = 133,33 \text{ kHz}$.

Методика пересчета фазовых координат в угловые секунды

Кривая, измеренная с помощью многоканального анализатора, имеет два идентичных дифракционных пика и представляет собой зависимость интенсивности от номера канала, при этом каждому каналу соответствует определенное значение фазы. Фазы $\pi/2$ или $-\pi/2$ можно определить, как находящиеся строго посередине между каналами, с максимальными значениями интенсивности (см. рис. 3.21.). Следовательно, при пересчете номеров каналов в фазовые координаты за начало координат принимается канал $N_0 = (N_{\max 1} - N_{\max 2})/2 - N_{\text{кан. счет}}/4$ а каждый канал счета принять равным: $\varphi_N = 2\pi N/N_{\text{кан. счет}}$, где $N_{\max 1}$, $N_{\max 2}$ – номера каналов, содержащие максимальные значения, $N_{\text{кан. счет}}$ – максимальное количество каналов счета в настоящем эксперименте.

В результате пересчета в фазовые координаты получены экспериментальные кривые, представляющие собой зависимость интенсивности дифрагированного рентгеновского пучка от фазы ультразвукового колебания. Кривая дифракционного отражения представляет собой зависимость интенсивности дифракции не от фазы, а от угла, следовательно, полученную кривую надо далее перевести в угловые координаты. Такую процедуру несложно выполнить, но предварительно надо откалибровать рентгеноакустический элемент – определить угловое смещение в экстремумах функции деформации. Для этого удобно использовать эффект ультразвукового уширения КДО при интегральной регистрации [**Ошибка! Закладка не определена.**,328] КДО колеблющегося ристалла. Но в данном случае обойтись без поворота одного из кристаллов не получится, а положительным моментом является то, что калибровку достаточно провести один раз.

На рис. 3.23 представлена двухкристальная КДО рентгеноакустического элемента, используемого в качестве перестраиваемого монохроматора. Кривая представляет собой суперпозицию серии стrobоскопических кривых для разных фаз колебаний. Из-за синусоидального характера колебаний

кривая имеет два характерных пика. Диапазон углового сканирования, который определяется разницей «половишин» КДО $\Delta\Omega = \omega_{3B} - \omega_{собст}$ до и после включения ультразвука. Таким образом, для каналов, имеющих значения от $-\pi/2$ до $\pi/2$ соответствующее угловое значение равно разности половишин интегральной кривой и кривой, измеренной в отсутствие колебаний. При пересчете фазовых координат в угловые надо учитывать нелинейный (синусоидальный) характер изменения угла при изменении фазы, который определяется по закону $\theta = \Delta\Omega/2 * \cos(\phi)$, где $\Delta\Omega$ - диапазон максимальной перестройки, определенный на основе калибровки.

Другой способ определить максимальный диапазон перестройки $\Delta\Omega$ при данной амплитуде колебаний – зарегистрировать угловое расстояние между двумя КДО, измеренными в режиме временного разрешения для фазы максимального сжатия $-\pi/2$ и растяжения $\pi/2$, с помощью поворота кристалла. Определив диапазон угловой перестройки несложно перевести фазовые координаты в угловые.

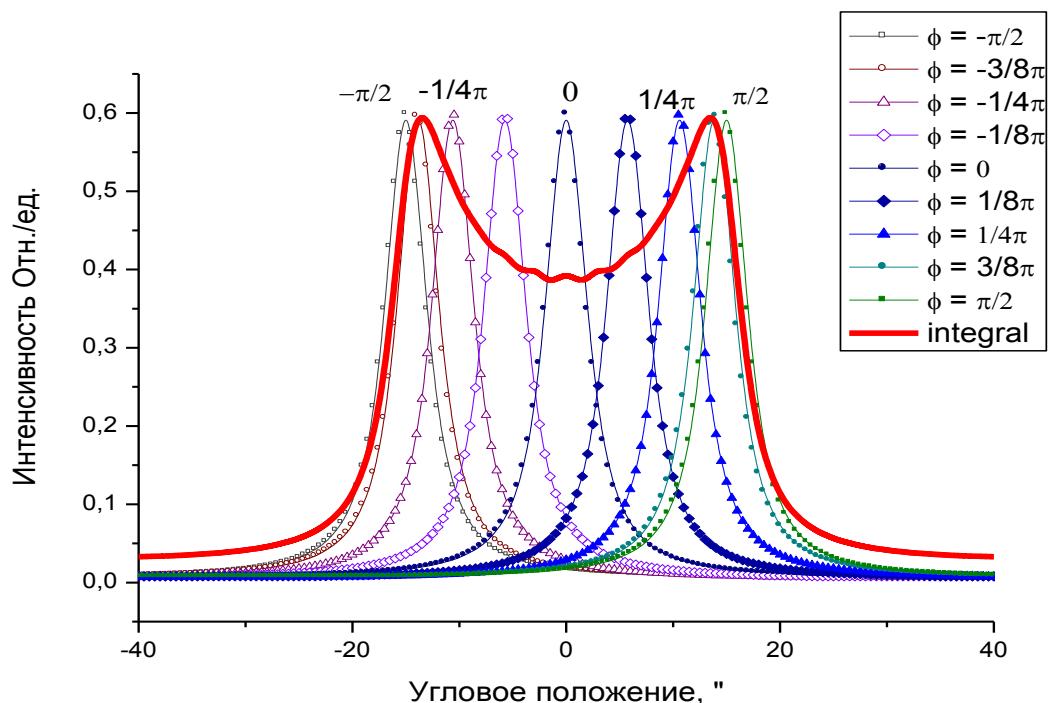


Рис. 3.23. Двухкристальная КДО с включенным ультразвуком (сплошная линия). Пики на кривой соответствуют фазам максимального расширения и максимального сжатия – расстояние между пиками определяет диапазон перестройки параметра кристаллической решетки при данной амплитуде ультразвука.

В экспериментах калибровка резонаторов проводилась на основе измерения кривых дифракционного отражения в интегральном режиме при повороте кристалла в условиях различной интенсивности колебаний. В зависимости от амплитуды ультразвука измерялось увеличение полуширины КДО колеблющегося кристалла (рис. 3.23), представляющее собой диапазон максимального углового сканирования.

Проведение сравнительных испытаний и полученные результаты

В настоящем разделе представлены результаты измерения кривых дифракционного отражения рентгеноакустическим методом в сравнении с традиционным механическим. Экспериментальные КДО и калибровочные кривые Ge(444) были измерены с использованием рентгенооптической схемы на основе рентгеноакустического анализатора. В этих экспериментах был использован монолитный рентгеноакустический резонатор [SiO₂(110)#1]. Измерения традиционным методом проводились с помощью механического поворота рентгеноакустического кристалла около точного брэгговского положения (рис.3.24.а).

Для калибровки рентгеноакустический кристалл возбуждался на резонансной частоте $f_p = 132,89$ kHz и определенной амплитуде. Далее проводилось измерение уширения КДО в режиме интегральной регистрации рентгеновского пучка (рис.3.24.б). Измерения кривых дифракционного отражения рентгеноакустическим методом проводились по следующей схеме: кристаллы устанавливались в положение точного брэгговского отражения, включался ультразвук на калибровочной амплитуде, включался многоканальный анализатор, и проводилось измерение зависимости интенсивности дифракции от фазы колебаний (рис.3.24.в). В соответствии с интегральной калибровочной КДО производился пересчет фазы ультразвукового колебания в угловые координаты, для придания измеренной кривой традиционного вида кривой дифракционного отражения (кривой качания). Измеренная кривая, показана на рис. 3.24.г. Она полностью

соответствует кривой, измеренной при помощи традиционного метода. Основные параметры – форма кривой и значение ширины на полувысоте КДО соответствую друг другу. Измеренная полуширина для традиционного способа составила $2,23 \pm 0,07''$, для рентгеноакустического $2,20 \pm 0,07''$.

В аналогичной схеме, основанной на рентгеноакустическом анализаторе, были проведены еще несколько серий экспериментов. При этом был выбран с другой набор элементов. Применялся составной рентгеноакустический резонатор [$\text{SiO}_2 + \text{Si} (100)$], резонансная частота ($f_p = 160,00 \text{ kHz}$). Кристалл устанавливался в геометрии дифракции по Лауз, для реализации дифракции был использован симметричный рефлекс $\text{Si} (220)$. В качестве исследуемого образца, в этой серии экспериментов применялся

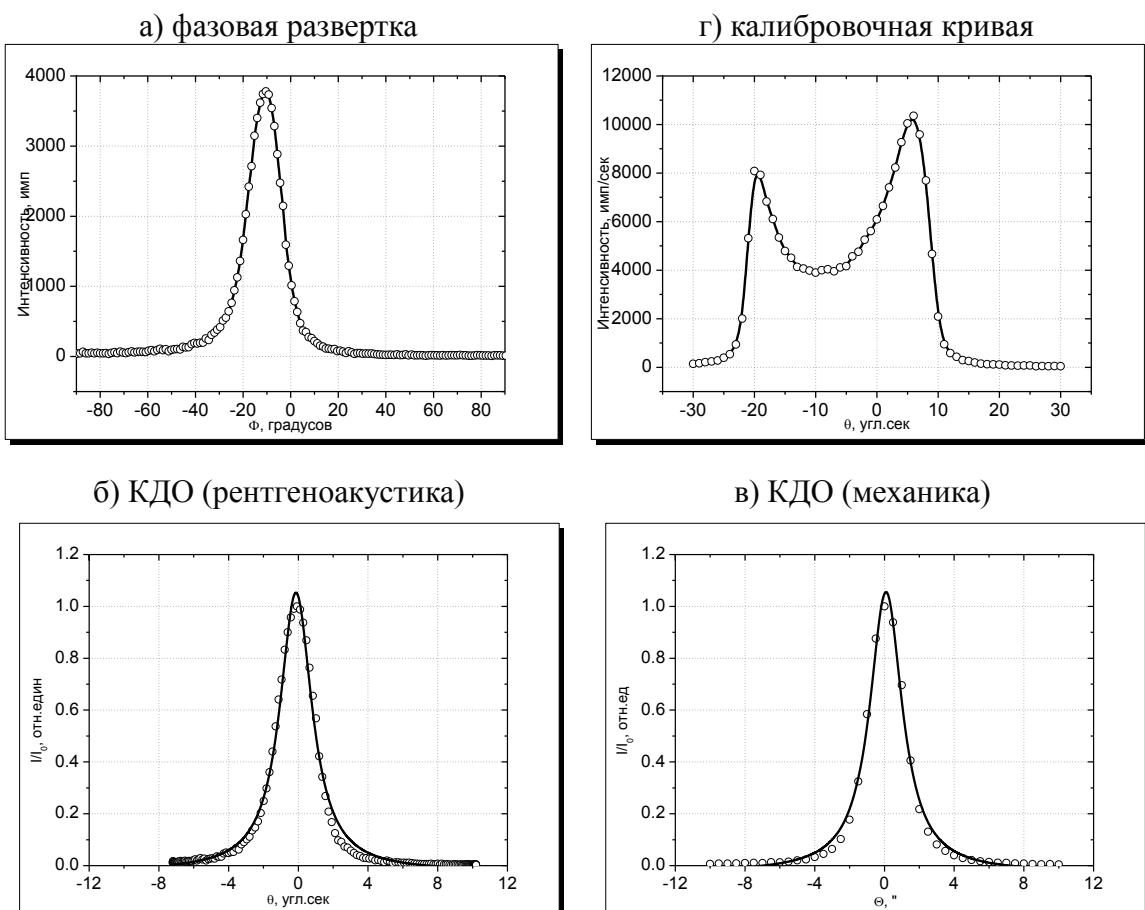


Рис.3.24. Измерение КДО тестового образца кристалла германия в схеме отражение $\text{Ge} (444)$, а) - рентгеноакустический метод (шкала фазовой развертки - Φ); б) – калибровочная кривая; (в) – КДО, измеренная рентгеноакустическим способом; (г) – КДО, измеренная традиционным способом с применением механического поворота.

кристалл кремния Si(220), установленный перед рентгеноакустическим анализатором. Выбранные рефлексы обеспечивали измерение кривых в бездисперсионной схеме. На рис. 3.25 для сравнения приведены результаты измерения кривых дифракционного отражения рентгеноакустическим и механическим методами.

Кривая, измеренная рентгеноакустическим методом, как и в предыдущем случае, хорошо соответствует кривой, полученной с помощью механического поворота. Полуширина кривой для рентгеноакустического метода имеет значение $3,60 \pm 0,05$, для механического $3,55 \pm 0,06$.

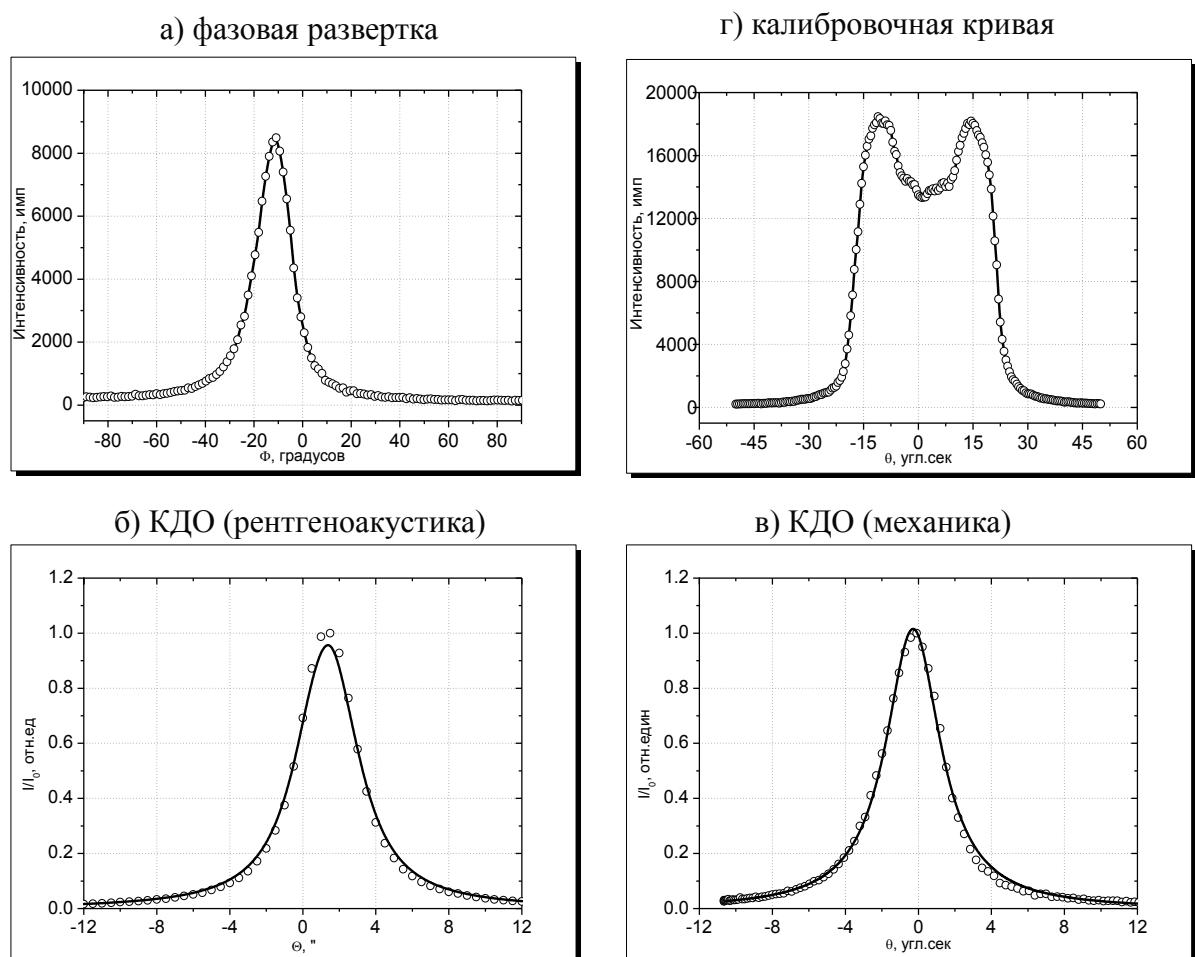


Рис.3.25. Измерение КДО тестового образца кристалла кремния, измеренная в схеме отражение Si (220), а) - рентгеноакустический метод (шкала фазовой развертки - Φ); б) – калибровочная кривая; (в) – КДО, измеренная рентгеноакустическим способом; (г) – КДО, измеренная традиционным способом с применением механического поворота.

Кристалл фторида лития LiF (200) был применен в качестве объекта исследования во второй серии экспериментов. Кристалл имеет некоторую особенность в области максимума КДО (на правом склоне). Представляло интерес сравнение формы кривых дифракционного отражения, измеренных традиционным и рентгеноакустическим способом. На рис. 3.26. приведены результаты экспериментов по сравнению КДО данного кристалла.

Кривая, измеренная рентгеноакустическим методом, количественно и качественно соответствовала кривой, измеренной с помощью поворота кристалла. Полуширины кривых составили: для поворота кристалла $10,37 \pm 0,08''$; для рентгеноакустического метода $10,36 \pm 0,09''$.

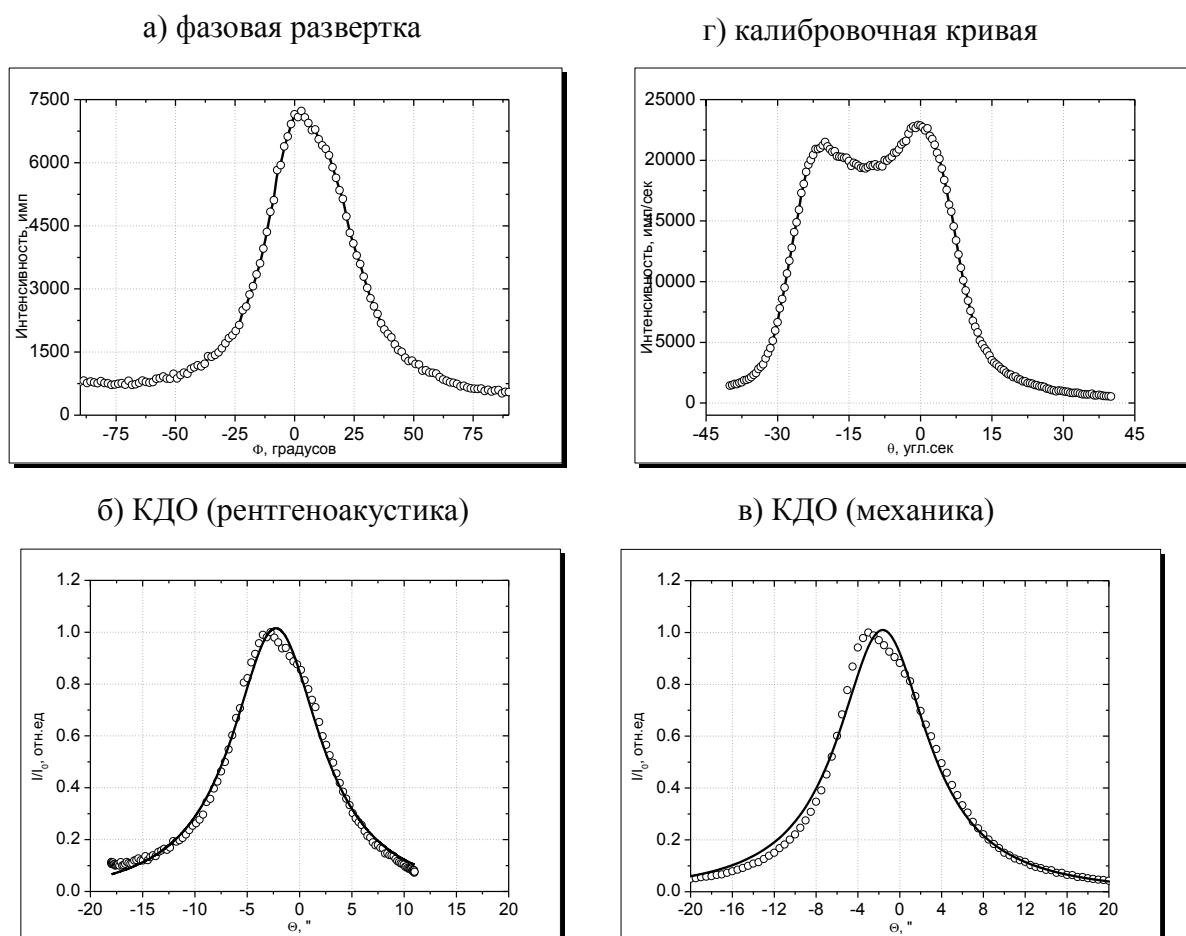


Рис.3.26 Сравнение КДО тестового образца кристалла фторида лития, LiF (200) с особенностями формы кривой.

а) - рентгеноакустический метод (шкала фазовой развертки - Φ); б) – калибровочная кривая; (в) – КДО, измеренная рентгеноакустическим способом с применением анализатора; (г) – КДО, измеренная традиционным способом с применением механического поворота.

На следующем этапе экспериментального тестирования рентгеноакустических методов была реализована рентгенооптическая схема на основе составного рентгеноакустического монохроматора. В качестве монохроматора был применен рентгеноакустический резонатор $[SiO_2+Si(100)]$, в котором кристалл кварца SiO_2 использовался в качестве кристалла-резонатора, а в качестве рентгенооптического использовался кристалл Si (110).

На рис. 3.27 приведены результаты сравнительных испытаний рентгеновской схемы, использующей более высокие порядки отражений.

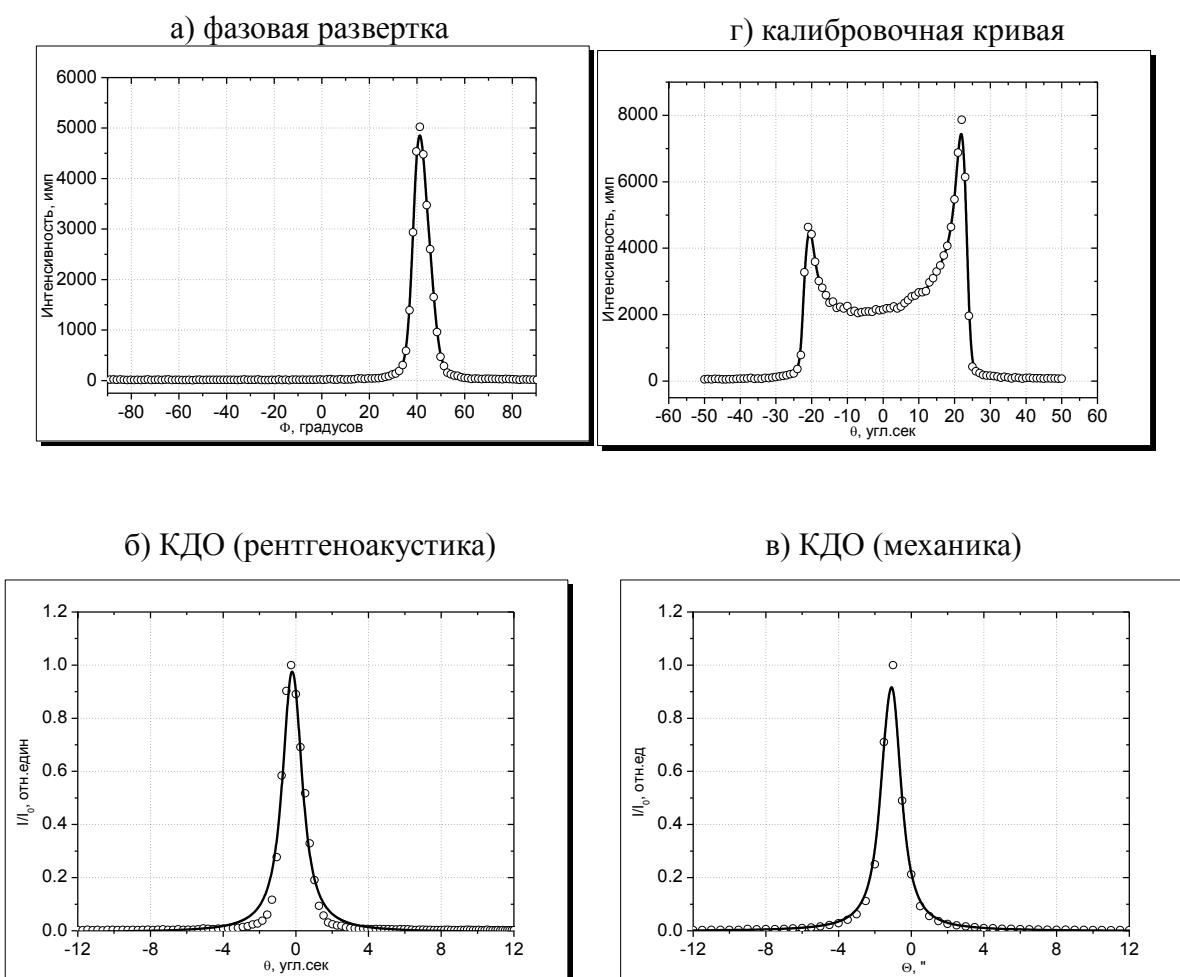


Рис.3.27 Измерение КДО исследуемого кристалла кремния, отражение Si (440) с применением акустического монохроматора

a) - рентгеноакустический метод (шкала фазовой развертки - Φ); б) – калибровочная кривая; (в) – КДО, измеренная рентгеноакустическим способом; (г) – КДО, измеренная традиционным способом с применением механического поворота.

Рентгеноакустический элемент был установлен перед исследуемым образцом и применялся в данной схеме дифракции как Лауз монохроматор, при этом использовалось симметричное отражение (440). Исследуемый кристалл представлял собой пластину монокристалла кремния и устанавливался в геометрии Брэгга. Для обеспечения бездисперсионной схемы дифракции, также использовалось симметричное отражение (440).

Измеренная рентгеноакустическим способом кривая, демонстрирует высокое угловое разрешение ($0,1''$) и хорошо согласуется с кривой, измеренной с помощью механического поворота. Полуширины кривых дифракционного отражения составили $1,08 \pm 0,06''$ и $1,14 \pm 0,04''$ для традиционного способа и для рентгеноакустического соответственно.

Дальнейшие измерения КДО для тестирования рентгеноакустического метода также проводились рентгеноакустическим монохроматором, но для геометрии Брэгга. Аналогично с предыдущим случаем, была применена двухкристальная параллельная схема (n, -n) рентгеновской дифрактометрии. В качестве рентгеноакустического монохроматора использовался монолитный кристалл-резонатор $[\text{SiO}_2 (110) \#2]$ который был установлен перед исследуемым кристаллом. В данном эксперименте кристалл-монохроматор был установлен в брэгговской геометрии дифракции, с использованием симметричного отражения $\text{SiO}_2 (330)$. Кристалл германия, выбранный как исследуемый образец, был установлен также в брэгговской геометрии, симметричное отражение (444). Результаты измерения КДО для механического и рентгеноакустического метода приведены на рис.3.28.

В результате измерений показано, что кривая, измеренная методом механического поворота, хорошо соответствует кривой, измеренной рентгеноакустическим способом. Значение полуширины кривых для традиционного способа $1,47 \pm 0,06''$, для рентгеноакустического $1,52 \pm 0,04''$.

Таким образом, все проведенные эксперименты с использованием разных схем дифракции с установкой рентгеноакустического кристалла в качестве анализатора или монохроматора показали высокую точность этого

метода и полное соответствие механическому методу измерения кривых дифракционного отражения на основе поворота кристаллов.

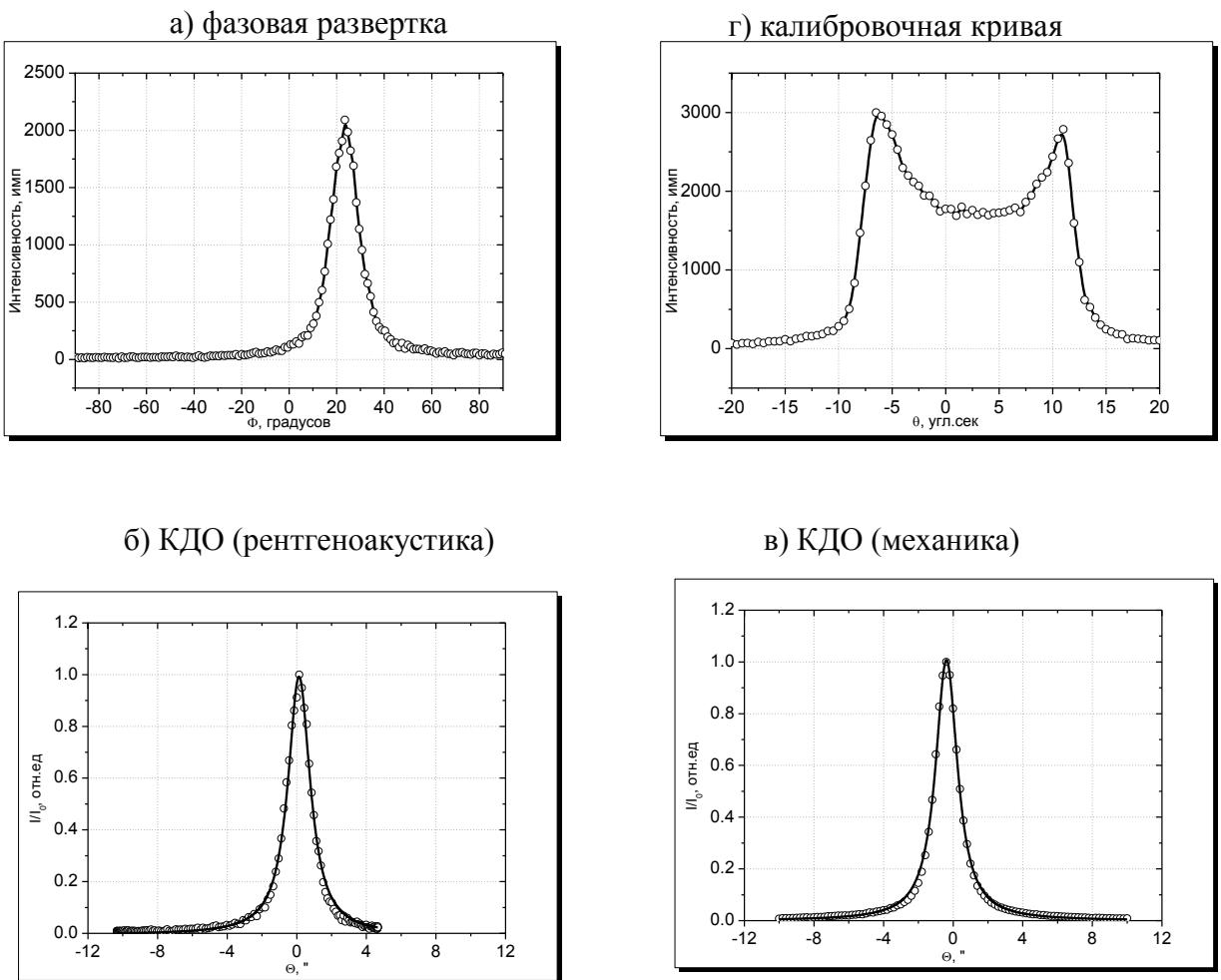


Рис.3.28. Измерение КДО кристалла германия Ge (444), измеренная с применением рентгеноакустического монохроматора в геометрии Брэгга; а) - рентгеноакустический метод (шкала фазовой развертки - Φ); б) – калибровочная кривая; (в) – КДО, измеренная рентгеноакустическим способом; (г) – КДО, измеренная традиционным способом с применением механического поворота.

Точность метода, основанного на повороте кристаллов, определяется механическими параметрами установки: точностью шаговых или пьезодвигателей, наличием редукторов и аппаратурой, регистрирующей рентгеновский сигнал. Системы прецизионной установки гониометра улучшают точность измерений, при этом, точный поворот на малые углы требует с одной стороны дорогой механической аппаратуры, с другой стороны определенного времени на его осуществление, соответственно

точный поворот на большие углы таких систем с малым шагом существенно увеличивает время эксперимента. Точность рентгеноакустического метода зависит от разных параметров: основные параметры — это диапазон углового сканирования, возможности стробоскопической аппаратуры для регистрации рентгеновского сигнала и стабильность генератора электрических сигналов, также важными параметрами являются интенсивность рентгеновского пучка и время измерения. Так при рентгеноакустическом способе регистрации КДО количество точек на её пике, а, следовательно, и точность метода, зависит от числа независимых счетных каналов, которое определяется временем быстродействия регистрирующей аппаратуры и частотой резонанса рентгеноакустического элемента. Диапазон углового сканирования напрямую зависит от амплитуды электрического сигнала, поданного на резонатор рентгеноакустического кристалла. При измерении кристаллов с малой полушириной кривой (малый диапазон сканирования) возрастает точность рентгеноакустического метода, важно, что время эксперимента при этом не увеличивается.

Следует отметить, что для получения угловых координат, значений по угловой шкале для кривых, измеренных рентгеноакустическим способом, применялся алгоритм калибровки - перевода шкалы фазовой развертки в соответствующую угловую шкалу, основанный на использовании калибровочных КДО, полученных с помощью механического дифрактометра. Следовательно, возможности механического поворотного устройства также ограничивают высокую точность предлагаемого метода, применяемого при калибровке. В то же время, кривые, измеренные рентгеноакустическим способом, даже в фазовых координатах (без пересчета в угловые) содержат информацию о дефектной структуре кристаллов и могут быть использованы для проведения относительных или качественных измерений (в том числе с высоким временным разрешением) при анализе образцов.

Проведенные экспериментальные работы сравнению механических и рентгеноакустических методов измерения кривых дифракционного отражения показали, что предложенный рентгеноакустический метод не уступает в точности традиционному механическому. Кривые дифракционного отражения, измеренные с помощью рентгеноакустического метода, по полуширине и форме и хорошо совпадают с кривым, измеренными при помощи механического поворота кристаллов. Таким образом, разработанный рентгеноакустический дифрактометр по основным параметрам (угловое разрешение, повторяемость, скорость измерения) не только не уступает, но и превосходит стандартные механические рентгеновские дифрактометры.

Измерение кривых дифракционного отражения с разрешением по времени

В стандартном режиме работы рентгеновской трубы время измерения кривой дифракционного отражения с помощью рентгеноакустического метода не превышало 10 секунд и может быть существенно уменьшено за счет повышения интенсивности источника или за счет незначительных потерь в точности измерений. Получение кривых дифракционного отражения традиционным методом на основе механического поворота с аналогичной точностью требует не менее 100 секунд экспериментального времени.

При достаточной интенсивности рентгеновского источника и использовании многоканального временного анализатора представляется возможным измерение КДО за время равное половине периода колебаний рентгеноакустического анализатора.

Частота собственных колебаний используемого в работе рентгеноакустического элемента составляет 160,5 кГц, следовательно, время регистрации кривой может достигать $3 \cdot 10^{-6}$ секунд. Если интенсивности рентгеновского пучка недостаточно для измерения кривой за время

половины периода колебаний, то можно проводить накопление за несколько периодов колебаний.

Таким образом, динамический процесс можно представить в виде набора кадров, представляющих собой кривые дифракционного отражения. На рис 3.29 представлен пример – модель измерения эволюции кривой дифракционного отражения динамического объекта.

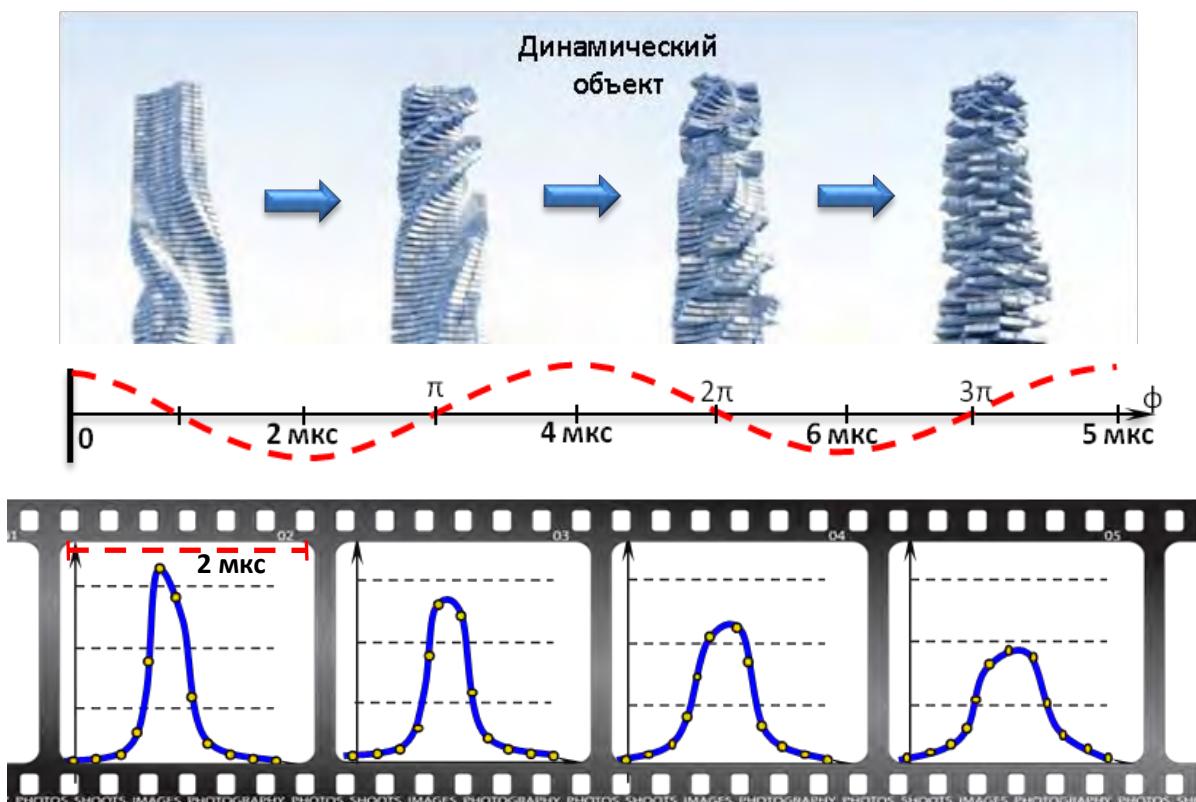


Рис. 3.29 Схема эксперимента измерения эволюции кривой дифракционного отражения динамического объекта с временным разрешением с применением рентгеноакустического подхода по измерению КДО.

Диапазон углового сканирования при измерении кривой дифракционного отражения с помощью рентгеноакустического резонатора определяется амплитудой деформации ультразвуковой волны и ограничен пределом прочности кристалла. В проведенных экспериментах максимальный диапазон сканирования составлял $90\text{--}120''$ в геометрии Лаэ и достигал $600''$ в геометрии Брэгга. Такой угловой диапазон достаточен для исследования большого числа монокристаллических образцов. Однако, для

более сложных объектов, например, биологических систем или многослойных структур требуется больший угловой диапазон сканирования, поэтому перспективным выглядит проведение экспериментов с применением поперечных или изгибных акустических колебаний рентгеноакустических элементов в геометрии дифракции по Брэггу, что позволит в несколько раз увеличить диапазон углового сканирования и интенсивность дифрагированного пучка.

Высокая чувствительность дальних порядков отражения к изменению параметра решетки позволяет разрабатывать рентгенооптические схемы, обеспечивающие широкий диапазон угловой перестройки. Также широкий диапазон углового сканирования можно получить для мягкого рентгеновского излучения.

В таблице 4.2 представлены диапазоны угловой перестройки рентгенооптической схемы при использовании дальних порядков отражения для рентгеновского резонатора Si и молибденового излучения рентгеновского источника Moka₁.

Таблица 4.2. диапазоны угловой перестройки рентгенооптической схемы

Отражение	Длина волны, Å	Брэгговский угол, град	Деформация, отн. ед.	Диапазон углового сканирования, "
2 2 0	0,709	10	0,002	80
4 4 0	0,709	22	0,002	160
8 8 0	0,709	48	0,002	450
10 10 0	0,709	67	0,002	1000
2 2 0	3,83	88,7	0,002	9300

3.3. Изучения динамики дефектной структуры в кристаллах Si, TeO₂ и LiF с помощью рентгеноакустического метода

Воздействие ультразвука на кристаллическую и дефектную структуру

Интенсивные ультразвуковые колебания, характеризуемые большой амплитудой смещения, а также статические механические воздействия, как известно, могут влиять на структуру кристалла – в первую очередь на дефектную структуру, вызывая сначала смещение, а после, при увеличении нагрузки, размножение точечных дефектов и дислокаций [329]. Наблюдение за процессами развития дефектов и за изменением дефектной структуры очень важно с точки зрения изучения материалов и их характеристик.

В ряде работ наблюдение за деформационным поведением кристалла на основе измерения некоторых физических параметров материалов, например, декремента затухания [330] проводилось непосредственно в процессе интенсивного воздействия ультразвуком. К сожалению, измеряемые параметры являются интегральной характеристикой кристалла и относятся к образцу в целом, чего явно недостаточно для анализа физических процессов, происходящих при интенсивном воздействии ультразвуковыми колебаниями на кристаллы. Рентгеновские методы позволяют на уровне элементарной ячейки с высокой степенью локальности наблюдать за изменениями дефектной структуры, при этом в настоящее время методическое обеспечение рентгеновских экспериментов позволяет в подавляющем большинстве случаев проводить эксперименты по исследованию дефектной структуры до и после воздействия внешней силы. Интерес же представляет рентгенодифракционные исследования именно динамики кристаллической структуры в процессе внешнего воздействия, т.е. изучение кинетики процесса.

Одна из важных дифракционных характеристик, измеряемых в рентгеновском эксперименте - кривая дифракционного отражения (КДО). Как известно полуширина этой кривой является общепринятой характеристикой степени однородности кристалла и несет важную

информацию о его дефектной структуре. Форма КДО при этом является важной и весьма информативной характеристикой дефектной структуры кристалла. При этом существенно, что методика оценки степени дефектности кристаллического материала, основанная на измерении КДО позволяет получить высокую степень пространственной локализации (до 10 мкм).

В первой части настоящей главы был представлен рентгеноакустический метод измерения кривых дифракционного отражения с применением перестраиваемой ультразвуком рентгеновской оптики. На основе представленных методов был создан специальный прибор – рентгеноакустический дифрактометр, который позволяет измерять кривые дифракционного отражения рентгеновских лучей с высоким быстродействием 10^{-3} - 10^{-5} секунд, измерять стробоскопические кривые колеблющихся кристаллов, что может быть эффективно применено для изучения деформационных процессов при интенсивных внешних воздействиях [331 – 333].

В настоящем разделе приведены результаты экспериментов по изучению ультразвуковых нагрузок на кристаллы – изменения формы кривых дифракционного отражения в зависимости от амплитуды ультразвука, изменения формы кривых во времени при постоянной амплитуде ультразвука, а также изменения постдеформационного воздействия (сразу после отключения ультразвуковой нагрузки). Для исследования таких процессов был успешно применен рентгеноакустический метод в первую очередь для изучения деформационного поведения кристаллов на основе экспериментального измерения их рентгенодифракционных характеристик в широком диапазоне амплитуд ультразвуковых колебаний. При реализации таких экспериментов с одной стороны интерес представляет изучение динамических процессов, связанных с изменением параметра кристаллической решетки, изучением дефектной структуры, а с другой стороны не менее интересным представляется анализ остаточных явлений и необратимых процессов, таких как появление новых дефектов, размножение

дислокаций. В рамках настоящей работы такие исследования также важны и с точки зрения изучения материалов, применяемых в качестве рентгеновской акустооптики. Изучение поведения кристаллических материалов под ультразвуковой нагрузкой в первую очередь позволяет проводить анализ предельных амплитуд ультразвуковой деформации для различных кристаллов. Такой анализ позволяет определить возможности различных кристаллических материалов в качестве перспективного рентгеноакустического материала для создания перестраиваемых элементов рентгеноакустической оптики. Во-вторых, информация, полученная в ходе изучения кривых дифракционного отражения непосредственно в процессе внешнего воздействия на исследуемый объект (например, эволюция формы кривой при изменении амплитуды механических деформаций, или данные об изменении дифракционных параметров кристаллической решетки), тесно связанная с кристаллической структурой представляет собой новые научные данные, позволяющие на принципиально новом физическом экспериментально-научном уровне изучать динамику дефектообразования в кристаллах.

Для проведения экспериментов в качестве объектов исследования были выбраны перспективные пьезокристаллические элементы и рентгенооптические элементы - кристаллы TeO_2 , SiO_2 , LiF , Si . В экспериментах была реализована стандартная схема двухкристальной дифрактометрии (см, например, рис 3.1.).

Для возбуждения ультразвука в кристаллах в зависимости от наличия или отсутствия пьезоэлектрических свойств у исследуемого кристалла использовались схемы составного или монолитного резонатора. Если исследуемый кристалл обладал пьезоэлектрическими свойствами (например, как кристалл TeO_2), то для такого образца применялась более простая схема возбуждения - схема монолитного резонатора рис 2.42. Для кристаллов, не обладающих пьезоэлектрическими свойствами, таких как LiF , Si , как уже обсуждалось выше, применима схема составного резонатора.

Предварительная обработка кристалла заключалась в ориентации образца и изготовлении из него прямоугольной кристаллической пластины с плоскопараллельными торцами, коррекции длины и ширины в процессе поиска резонанса в системе пьезорезонатор-исследуемый кристалл. Далее пластина исследуемого кристалла склеивалась торцевыми гранями с пьезоэлектрическим кристаллом пьезопреобразователем. Полученный составной образец-резонатор монтировался на гoniометре и в нем на резонансной частоте первой гармоники продольных колебаний по длине возбуждались ультразвуковые колебания. В экспериментах была реализована дифракция по геометрии Лауз для того чтобы получать информацию со всей толщины кристалла. Рентгеновский пучок позиционировался на область исследуемого кристалла с максимальной однородной в пределах ширины пучка деформацией. Запись кривой дифракционного отражения, представляющей собой зависимость интенсивности дифрагированного рентгеновского пучка, проводилась в различных режимах регистрации: в режиме стробоскопической регистрации в определенной фазе, в режиме фазовой развертки и в интегральном режиме. На рентгеноакустическом дифрактометре исследуемые резонаторы располагались на втором гoniометре (рис. 3.1). При этом с помощью линейной подвижки выбирались наиболее нагруженные участки с максимальным уширением кривой дифракционного отражения.

В условиях возбуждения резонатора на резонансной частоте, при достижении достаточно большой амплитуды ультразвуковой волны, в рентгеноакустических кристаллах могут возникать критические деформации, выходящие за область упругих деформаций и превышающие предел прочности рентгенооптического кристалла. Изменения в структуре исследуемого кристалла, вызванные такими деформациями, могут, быть зарегистрированы, например, по изменению формы и полуширины КДО, измеренной с временным разрешением.

Исследование кристаллов кремния в условиях ультразвукового воздействия

Кристалл кремния является традиционным материалом для рентгеновской оптики и широко применялся в данной работе для изготовления рентгеноакустических элементов – рентгенооптической составляющей. Исследования поведения кристалла кремния при высоких ультразвуковых нагрузках, а также определение предельных деформаций для кристаллических пластин определенного среза представляет большой интерес. В кристаллах кремния ультразвуковые колебания возбуждались с применением схемы составного резонатора на основе комбинации кристаллов кварц-кремний SiO_2+Si . Эксперименты по исследованию динамики развития дефектов в структуре Si проводились в широком диапазоне ультразвуковых амплитуд. При нормальных условиях кристаллический кремний, минуя стадию пластической деформации, разрушается практически мгновенно. Это демонстрируют стандартные «стресс-страйн» измерения, что и было подтверждено в настоящей работе в экспериментах, выполненных в условиях постепенного возрастания амплитуды ультразвука.

Согласно традиционной схеме составного резонатора для подачи ультразвука и создания деформаций, исследуемые кристаллические пластины кремния были склеены с кварцевыми кристаллами - резонаторами. На рентгеноакустическом дифрактометре с применением стробоскопической и интегральной методики измерения кривой дифракционного отражения колеблющегося кристалла были измерены серии кривых при повышении амплитуды ультразвуковых колебаний вплоть до разрушения кристалла. Измерение кривых дифракционного отражения проводилось в бездисперсионной схеме двухкристальной рентгеновской дифрактометрии, с установкой образца в геометрии Лауз дифракции.

Эксперименты показали, что рост полуширины кривой дифракционного отражения при увеличении мощности ультразвукового воздействия происходит линейно до определенного момента, но при достижении

некоторого критического значения амплитуды деформации кристалл лопается без каких-либо «предупреждений».

На рис. 3.30 показаны зависимости полуширины кривых дифракционного отражения при возрастании мощности ультразвука. Кривые были измерены, как в интегральном по времени режиме регистрации рентгеновского пучка, так и в стробоскопическом режиме для максимальной деформации в фазах растяжения и сжатия кристалла.

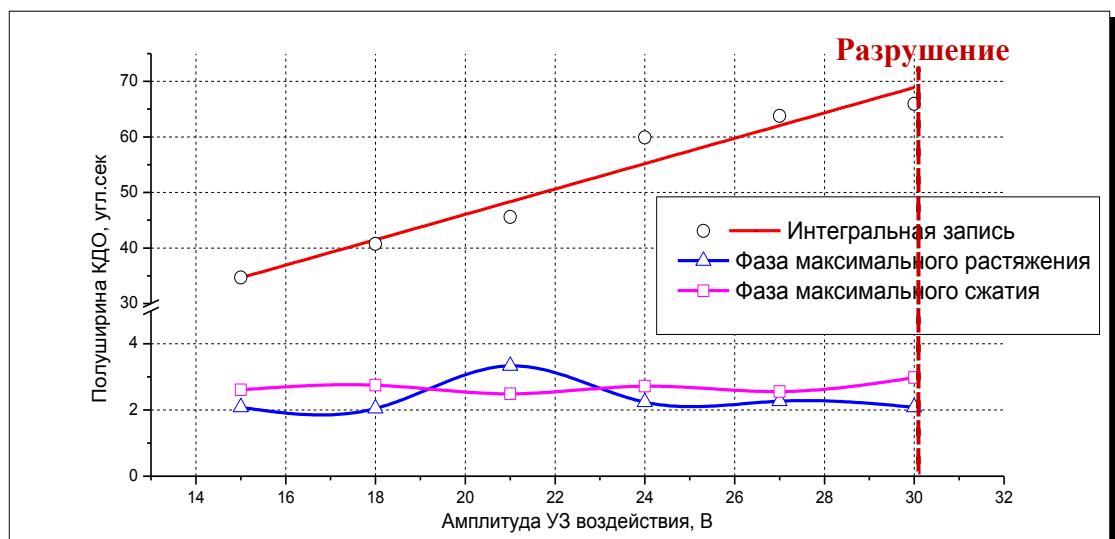


Рис. 3.30. Зависимость полуширины КДО при возрастании амплитуды ультразвуковой деформации для кристалла кремния $SiO_2+Si(220)$ в геометрии Лауз, (синяя и фиолетовая линии измерены стробоскопически в фазе максимального сжатия и растяжения и соответственно, красная линия – интегральная по времени).

Эксперимент показал, что измеренные в фазе максимального сжатия и растяжения стробоскопические кривые дифракционного отражения имеют постоянную полуширину во всем диапазоне возрастания амплитуды ультразвуковых колебаний до точки разрушения кристалла, которая наблюдалась при амплитудах деформаций составляющих $\Delta d/d \sim 0,002$. При этом полуширина интегральной кривой растет линейно с увеличением амплитуды ультразвука. Экспериментальные данные свидетельствуют о том, что вплоть до разрушения кристалла рентгеноакустический метод не зарегистрировал в кристалле кремния, как развития дефектов, так и перехода

в область пластической деформации, которая должна предшествовать разрушению. Сложность этого эксперимента заключается в основном в том, чтобы поймать этот момент перехода до разрушения образца. Несмотря на это использование рентгеноакустического метода позволило оценить временные характеристики самого процесса разрушения кристалла, которые, по проведенным на основе экспериментальных результатов оценкам, составляют менее 100 миллисекунд. Ограничение настоящего эксперимента в первую очередь связано с недостаточной интенсивностью рентгеновского пучка, формируемого монохроматором при отражении излучения рентгеновской трубки с простым анодом отпаянного типа.

Тем не менее, результаты эксперимента позволяют определить предельные нагрузки и предельную амплитуду электрического сигнала. Более того были определены деформационные характеристики рентгеноакустического резонатора на основе кристалла кремния. Результаты проведенных экспериментов наглядно демонстрируют линейное изменение диапазона углового сканирования с ростом с амплитуды колебаний, что очень важно для нормальной работы перестраиваемой ультразвуком рентгеновской оптики, и может существенно упростить процедуру калибровки рентгеноакустического резонатора.

Исследование кристалла кварца в условиях ультразвукового воздействия

Кристалл кварца является перспективным элементом для рентгеновской акустооптики т.к. помимо хорошего качества структуры и неплохих рентгенодифракционных характеристик он обладает пьезоэлектрическим эффектом. Кристалл кварца исследовался в схеме монолитного резонатора. Экспериментальные результаты по исследованию монолитных резонаторов кварца показаны на рис. 3.31. Резонатор был установлен в геометрии Лауз, регистрация кривых дифракционного отражения проводилось в режиме интегральной записи кривой для рефлекса $\text{SiO}_2(\bar{2}20)$. В экспериментах удалось достичь более высокого диапазона допустимых амплитуд

ультразвуковых деформаций, который был ограничен не пределами прочности кристалла, а возможностями (мощностью) используемой системы возбуждения ультразвука. При этом экспериментальные данные показывают линейный характер роста амплитуды деформации при возрастании амплитуды электрического сигнала, возбуждающего ультразвук.

Рис. 3.31. Эволюция полуширины КДО, измеренной в интегральном режиме регистрации рентгеновского пучка для монолитного рентгеноакустического резонатора $SiO_2(\bar{2}20)$ в Лауз геометрии при увеличении амплитуды ультразвука.

Исследование кристалла фторида лития в условиях ультразвукового воздействия

Кристалл фторида лития LiF не обладает пьезоэлектрическим эффектом и для возбуждения ультразвука в нем была применена схема составного резонатора с использованием кристалла кварца в качестве кристалла – резонатора SiO_2+LiF . Результаты измерения кривых дифракционного отражения и их эволюции для кристаллов фторида лития LiF(200) в схеме составного резонатора продемонстрировали совершенно иной характер деформационного поведения кристалла по сравнению с кремнием и кварцем. Следует отметить, что кристаллы фторида лития обладали высокой дефектностью и сильной неоднородностью кристаллической решетки. Кривые дифракционного отражения, измеренные в разных точках

кристаллической пластины LiF, существенно отличались друг от друга, и были уширены по сравнению с расчетной кривой для бездефектного кристалла. На сравнительно хороших участках кристалла зависимость полуширины кривой дифракционного (при интегральном режиме регистрации рентгеновского пучка) от амплитуды ультразвукового воздействия имела классический линейный характер рис. 3.32а. Для таких образцов полуширина кривой дифракционного отражения при отсутствии ультразвуковых колебаний была близка к 10-15". Но для образцов с высокой концентрацией дефектов (полуширина которых была несколько десятков

а)

б)

Рис. 3.32. Эволюция полуширины КДО кристаллов фторида лития от амплитуды ультразвука, измеренных в интегральном режиме

Использована схема составного резонатора SiO_2+LiF

а) полуширина «собственной» КДО кристалла – 10," б) 40."

угловых секунд) наблюдалось заметное уменьшение ширины кривой качания (рис. 3.32б). Такое поведение можно объяснить уменьшением статической деформации за счет ультразвукового воздействия на дефекты.

При проведении экспериментов с кристаллом фторида лития была обнаружена зависимость полуширины кривой дифракционного отражения от времени воздействия ультразвуковой волной постоянной амплитуды на кристалл. Наблюдаемые в эксперименте зависимости приведены на рис 3.33.

Деформационное поведение кристалла фторида лития существенно отличалось от кристаллов кремния и кварца. При возбуждении ультразвуковых колебаний уширение кривой дифракционного отражения происходило не мгновенно, а в течение некоторого временного промежутка,

составляющего десятки минут. При отключении ультразвука кристалл медленно приходил в нормальное состояние: при этом наблюдаются две стадии релаксации: стадия быстрого перехода, когда кристалл быстро возвращается в новое «квазистабильное» состояние, и стадия медленной релаксации, длительность которой составляла несколько часов до перехода кристалла в исходное состояние.

Рис. 3.33. Зависимость полуширины КДО (амплитуды деформации) кристалла фторида лития $LiF(200)$ от времени ультразвукового воздействия при постоянной амплитуде. Красные области – ультразвук включен, зеленые области – ультразвук выключен.

Исследование кристалла парателлурита в условиях ультразвукового воздействия

Кристалл парателлурита представляет собой интерес в качестве рентгенооптического элемента т.к. обладает высокими коэффициентами отражения, хорошим качеством структуры и пьезоэлектрическим эффектом, более того, исследования парателлурита интересны с точки зрения изучения его пластических свойств, т.к. он является представителем класса ферроэластиков и имеет фазовый переход под давлением при комнатной температуре. Ультразвуковые колебания парателлурите возбуждались в схеме монолитного резонатора. Применялась двухкристальная

бездисперсионная схема, однако кристалл парателлурита не удалось разместить в геометрии Лауз ввиду высокой поглощающей способности данного материала, и в экспериментах была использована геометрия Брэгга. Соответственно информация о дефектной структуре была получена с тонкого (1 мкм) приповерхностного участка. Результаты экспериментов по наблюдению деформационного поведения кристалла были в чем-то схожи с результатами, полученными для кристалла фторида лития. При постоянном увеличении амплитуды ультразвукового воздействия на кристалл парателлурита линейный характер уширения кривой дифракционного отражения заканчивался резким спадом (рис. 3.34) с образованием метастабильного нелинейного участка. Следует отметить, что зависимости полуширины КДО от времени воздействия ультразвука позволили определить временной характер установления стационарного значения ~ 30 -40 минут (рис. 3.34б).

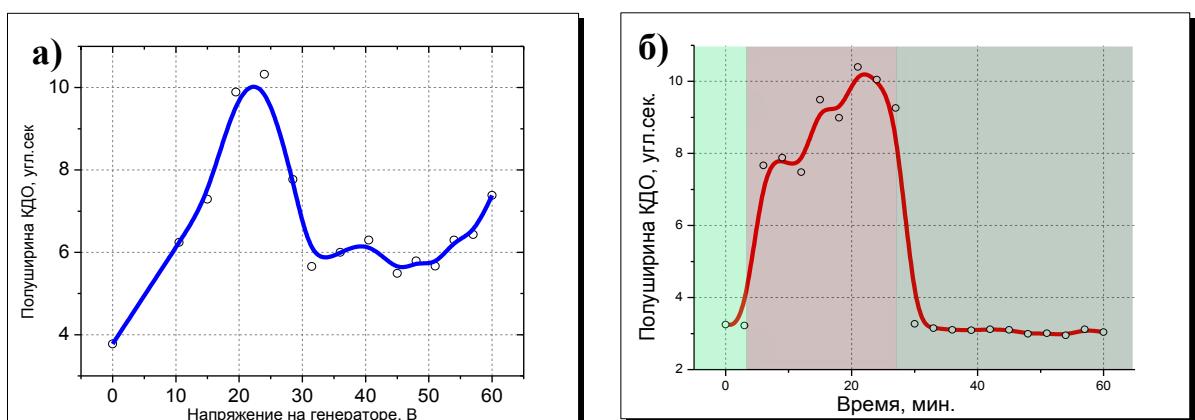


Рис. 3.34. Эволюция полуширины КДО кристалла парателлурита TeO_2 (монолитный рентгеноакустический элемент, геометрия Брэгга, рефлекс 440, интегральный режим

а) при изменении мощности ультразвукового воздействия

б) временная зависимость при постоянной амплитуде ультразвука.
Красная область – УЗ включен, зеленая – выключен.

При выключении ультразвука релаксация до исходного состояния кристалла (начального значения полуширины кривой) занимала около 5 минут.

Исследуемые кристаллы парателлурита были весьма хорошего качества (полуширина недеформированного кристалла составляла 4" и была близка к расчетному значению). Следует отметить, что с точки зрения акустических и упругих свойств кристалл парателлурита проявил себя как самый хрупкий из исследуемых материалов. Прочность данного материала, а вернее её отсутствие, не позволила подавать большие амплитуды, полуширины интегральных кривых при включённом ультразвуке не превышали 20". (для сравнения такое же значение для кремния 90-100"), а разрушение кристалла происходило уже при достижении 60-70 В амплитуды возбуждающего ультразвук электрического сигнала.

3.4. Выводы к главе 3

В главе 3 проведено масштабное исследование дифракционных эффектов в условиях воздействия длинноволнового ультразвука на кристаллическую решетку в условиях локализации однородной и градиентной ультразвуковой деформации рентгеновским пучком. Исследовано интегральное уширение кривой дифракционного отражения. Показано, что уширение кривой позволяет определить локальную ультразвуковую деформацию, а эволюция полуширины кривой дифракционного отражения позволяет исследовать распределение амплитуды ультразвуковой деформации по длине кристалла. С учетом расчетов, проведенных в главе 2 экспериментально показано, что при однородной деформации уширение происходит за счет мгновенного изменения угла Брэгга в зависимости от фазы колебаний, вызванного ультразвуковой деформацией. Характерный провал в центре кривой обусловлен синусоидальным характером колебаний, когда «скорость» изменения деформации (изменения угла Брэгга) зависит от фазы колебаний и максимальна при значениях фазы, близким к 0 и $n^*\pi$ (n =целое число) и минимальна при значениях $n^*\pi/2$. Проведены эксперименты по измерению кривых дифракционного отражения в зависимости от фазы колебаний. С применением уникальной стробоскопической методики регистрации рентгеновского пучка исследовано изменение формы КДО за счет однородной и неоднородной деформации. Показано, что однородная деформация приводит только к изменению брэгговского угла кривой дифракционного отражения и не влияет на форму кривой, то есть не влияет (сохраняет) на пространственные характеристики пучка (сходимость и расходимость), а градиентная деформация приводит как к изменению брэгговского угла, так и к изменению формы кривой дифракционного отражения и влияет на сходимость и расходимость рентгеновского пучка. На градиентных участках вид интегральной кривой обусловлен суперпозицией

градиентной формой и угловым смещением кривых дифракционного отражения.

На основе обнаруженных эффектов предложены и экспериментально реализованы рентгеноакустические методы по быстрому управлению угловым и пространственным положением рентгеновского пучка с использованием рентгеноакустического кристалла в качестве дифракционного перестраиваемого ультразвуком оптического элемента [331, 332]. На основе схем углового – пространственного сканирования рентгеновского пучка предложены методы, основанные на многоканальном распределенном во времени способе регистрации рентгеновского пучка одновременно с его быстрой перестройкой. В качестве экспериментальной основы для реализации предложенных методов разработан уникальный рентгеновский прибор – рентгеноакустический дифрактометр для измерения дифракционных характеристик кристаллов - кривых дифракционного отражения с разрешением по времени.

Предложены и реализованы несколько вариантов работы рентгеноакустического дифрактометра:

- схема монохроматор – рентгеноакустический образец, позволяющая исследовать дифракционные характеристики кристаллов при ультразвуковой нагрузке;
- схема рентгеноакустический монохроматор – образец, представляющая собой классическую двухкристальную схему, в которой угол падения на исследуемый образец меняется за счет перестройки акустического монохроматора;
- схема образец – рентгеноакустический анализатор, в которой рентгеноакустический кристалл устанавливается после исследуемого кристалла и выполняет функцию анализатора, что, в частности, позволяет использовать данную схему в трехкристальных экспериментах.

На разработанном рентгеноакустическом дифрактометре с применением предложенных схем проведена калибровка дифрактометра и

рентгеноакустических резонаторов, проведено сравнение кривых дифракционного отражения, измеренных рентгеноакустическим методом, и кривых, измеренных традиционным методом на основе механического прецизионного поворота кристалла, проведены измерения различных кристаллов в условиях воздействия ультразвука.

Результаты тестовых измерений демонстрируют достоверность предлагаемых методик и полное соответствие измеренных кривых традиционным методом (с помощью поворота кристалла) и предлагаемого ультразвукового метода. Сравнительные испытания также показали, что по определенным параметрам рентгеноакустический дифрактометр превосходит механические аналоги.

Угловое разрешение рентгеноакустического метода определяется быстродействием регистрирующей аппаратуры (минимально возможным шагом изменения фазы при стробоскопической регистрации или количеством каналов временного многоканального анализатора) и зависит от таких параметров как частота ультразвука и амплитуда. Проведенные оценки показывают, что угловое разрешение метода может достигать $0,05''$.

При достаточной интенсивности рентгеновского источника и использовании многоканального временного анализатора представляется возможным измерение КДО за время равное половине периода колебаний рентгеноакустического анализатора. Например, при частоте собственных колебаний используемого в работе одного из рентгеноакустических элементов 160,5 кГц, время регистрации кривой может достигать $3 \cdot 10^{-6}$ секунд. Если интенсивности рентгеновского пучка не достаточно для измерения кривой за время половины периода колебаний, то можно проводить накопление за несколько периодов колебаний. Таким образом, с одно из основных достоинств предлагаемого метода является то, что теперь динамический процесс в упорядоченной структуре можно представить в виде набора кадров, представляющих собой кривые дифракционного отражения.

С применением схемы и методики измерения кривых дифракционного отражения под ультразвуковой нагрузкой были проведены исследования рентгенодифракционных характеристик для ряда кристаллов (Si , SiO_2 , LiF , TeO_2), представляющих интерес в качестве перспективных материалов для рентгеновской акустооптики, а также с точки зрения изучения упругих свойств кристаллических материалов [334].

В результате проведенных исследований установлено, что кристаллы кремния и кварца, обладают линейностью деформационных характеристик и пригодны для использования в качестве управляющих рентгеновских пучком перестраиваемых рентгенооптических элементов. Эксперименты показали, что в данных кристаллах перестройка кристаллической структуры происходит мгновенно, отсутствуют искажения измеренных стробоскопических кривых дифракционного отражения в широком диапазоне амплитуд ультразвука. Остаточные деформации не наблюдается вплоть до разрушения кристаллов.

В кристаллах парателлурита и фторида лития обнаружены нетипичные изменения рентгенодифракционных характеристик при ультразвуковых воздействиях. Так в этих кристаллах была выявлена временная эволюция кривой дифракционного отражения при постоянной амплитуде колебаний, также обнаружены эффекты уменьшения полуширины кривой при увеличении амплитуды колебаний, что может являться результатом изменения внутренних напряжений вследствие образования и релаксации дефектов при ультразвуковом воздействии.

Также для всех перечисленных кристаллов были определены предельные нагрузки и амплитуды переменного электрического сигнала, возбуждающего колебания в кристалле, превышение которых приводит к их разрушению.

Глава 4. Ультразвуковая перестройка длины волны рентгеновского пучка – перестраиваемая монохроматизация рентгеновского пучка. Динамическое управление угловой расходимостью рентгеновского пучка, фокусировка, коллимация и дефокусировка, перестройка фокусного расстояния

4.1. Управление длиной волны на основе рентгеноакустических взаимодействий

Изменение длины волны в рентгеновском эксперименте – одна из важных экспериментальных составляющих при проведении измерений методами рентгеновской спектроскопии, основанными на поглощении или на вторичном излучении (эмиссии) атомами вещества рентгеновского излучения. Рентгеновские спектры обусловлены электронными переходами и позволяют изучать атомный состав, природу химических связей, проводить количественный и качественный элементный анализ. Например, в методах рентгеновской абсорбционной спектроскопии (XAS) таких как EXAFS и XANES измеряется зависимость коэффициента рентгеновского поглощения от длины волны (энергии) рентгеновского излучения [335].

В настоящем разделе описана экспериментально реализованная быстрая перестройка (сканирование) длины волны рентгеновского пучка на основе модуляции параметра кристаллической решетки стоячей ультразвуковой волной, возбужденной в рентгенооптическом кристалле.

Для осуществления экспериментов по перестройке длины волны рентгеновского пучка, требуется источник с широким спектром излучения. Это необходимо для выделения определенной длины волны. Подавляющее большинство современных исследований в области рентгеновской спектроскопии, а также резонансных рентгеновских методов (когда длина рентгеновской волны находится в области резонансного поглощения атомами исследуемого вещества), проводятся с применением синхротронного излучения. Рентгенооптическая схема, используемая для

формирования исследовательского пучка должна обеспечивать выделение квазимонохроматичной компоненты, и при этом должна обеспечивать плавную перестройку длины волны сформированного рентгеновского пучка непосредственно в процессе эксперимента без изменения его направления и коллимации. На практике это осуществляется применением нескольких кристаллов–монохроматоров и коллиматоров, позволяющих создать монохроматичный пучок, а управление длиной волны во время эксперимента осуществляется за счет прецизионного поворота одного или нескольких кристаллов–монохроматоров. Как уже обсуждалось ранее, несмотря на массу достоинств, у механической схемы управления имеется одно существенное ограничение – инертность и низкое временное разрешение. Применение рентгеноакустических подходов по управлению рентгеновскими пучками способно устранить данный недостаток за счет возможностей быстрой перестройки.

Механическая запись спектра рентгеновской трубы

Разработанные схемы и принципы рентгеноакустического управления были реализованы и протестираны в лабораторных условиях для последующего переноса на станцию синхротронного излучения. Предварительно проводились эксперименты по измерению спектров рентгеновской трубы, используемой при измерениях в режиме стандартной механической перестройки рентгенооптической схемы (рис. 4.1).

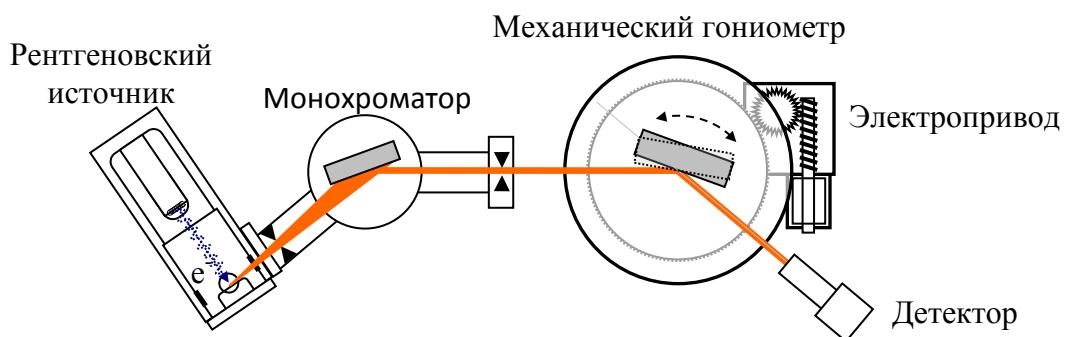


Рис 4.1. Рентгенооптическая схема эксперимента по механической перестройке длины волны, калибровки гoniометра и рентгенооптических элементов.

Эксперименты были проведены на рентгеновском спектрометре ТРС. В экспериментах была реализована дисперсионная антипараллельная схема дифракции рентгеновских лучей в области дублета линии (Мо Ка). в качестве монохроматора и анализатора были использованы кристаллы кремния (отражение 220, полуширина двухкристальной кривой дифракционного отражения 3,5").

Принцип работы схемы и записи спектра показан на диаграмме Дю-Монда на рис. 4.2: кристалл монохроматора и кристалл–анализатор находятся в антипараллельном положении, при этом они вырезают узкую часть спектра рентгеновской трубки, меняя угловое положение анализатора можно выделять часть спектрального диапазона. Кривая дифракционного отражения, измеренная путем изменения углового положения анализатора представляет собой спектр излучения рентгеновского источника. Следует заметить, что спектр получается слегка уширенным из-за расходности пучка при дифракции на кристаллах, но этим уширением вполне можно пренебречь, т.к. полуширина спектральной линии, приведенная к угловым координатам, более чем в 5 раз превышает полуширину дарвиновских «собственных» кривых, используемых в эксперименте кристаллов.

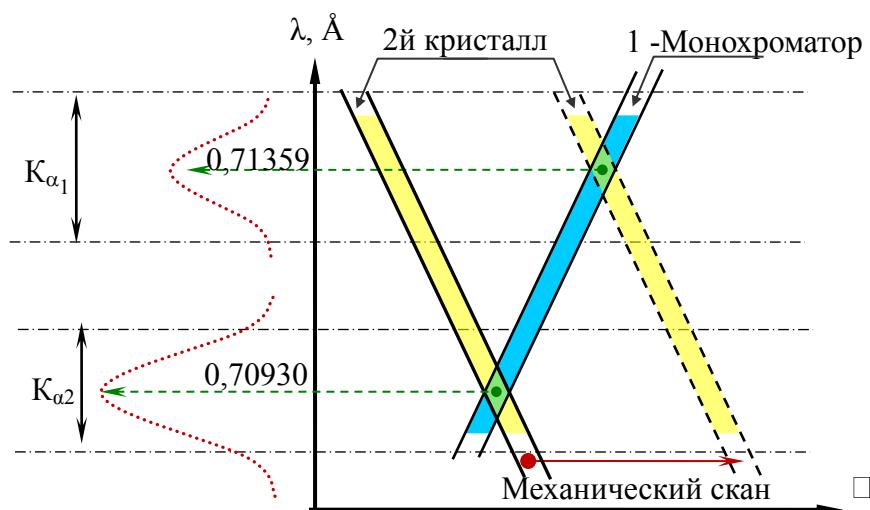


Рис. 4.2. Диаграмма Дю-Монда, иллюстрирующая принцип измерения спектра с применением антипараллельной 2x кристальной схемы.

На рис. 4.3 представлены результаты эксперимента – зависимость интенсивности от угла поворота второго кристалла, представляющая собой два пика. Пики соответствуют спектральным линиям $K_{\alpha 1}$ и $K_{\alpha 2}$, значения которых 0,7093 и 0,71359 Å. На основании полученных данных для этой рентгенооптической схемы (с учётом углов отражений кристаллов) была также проведена калибровка угловой шкалы гониометра в значениях длин волн для проведения экспериментов с использованием рентгеноакустических способов управления (одна угловая секунда поворота гониометра соответствовала изменению длины волны экспериментальной схемы $3,65(1)*10^{-5}$ Å).

Рис. 4.3. Угловое распределение характеристического спектра Ка рентгеновской трубы с Mo анодом, зарегистрированного поворотом 2-го кристалла.

В экспериментах по выделению и быстрой перестройке (модуляции) части спектрального диапазона источника с помощью рентгеноакустических элементов было реализованы две схемы управления длиной волны дифрагированного рентгеновского пучка: двухкристальная антипаралельная схема дифракции рентгеновских лучей, в которой ультразвуковая волна возбуждалась во втором кристалле и однокристальная схема с применением щелевого коллиматора. Как на основе предложенных рентгенооптических схем перестройки с применением акустооптики, так и с помощью традиционного механического поворота кристалла, записаны профили

характеристических линий $k_{\alpha 1}$ и $k_{\alpha 2}$ рентгеновской трубы с молибденовым анодом. Полученные результаты хорошо согласуются с традиционным методом.

Схема управления длиной волны с применением двухкристальной схемы

Перестройка (сканирование) длины волны рентгеновского пучка осуществлялась на основе пространственно-однородной (в области дифракции рентгеновского пучка) модуляции параметра решетки при возбуждении стоячей ультразвуковой волны во втором кристалле (кристалле анализаторе). В целом такая схема с двумя кристаллами, установленными в антипараллельной геометрии, представляла собой прототип составного двухкристального рентгеновского монохроматора.

Перестраиваемый рентгеноакустический кристалл–резонатор был установлен вторым кристаллом на механическом гoniометре и мог функционировать в двух различных режимах: в статическом (при выключенном ультразвуке) и динамическом режиме (при включенном ультразвуке). В статическом режиме кристалл–резонатор ничем не отличается от обычного рентгенооптического кристалла, и эксперимент по перестройке длины волны проводился при помощи традиционного механического поворота, позволяющего изменять условия Брэгга. В динамическом режиме (при включении ультразвуковых колебаний) кристалл становился рентгеноакустическим модулятором – межплоскостное расстояние кристалла кремния эффективно изменялось во времени по синусоидальному закону, что позволяло, также, как и в первом случае, изменить условие Брэгга, но уже при неподвижном кристалле. Для создания условий однородного пространственного изменения межплоскостного расстояния по всей области дифракции рентгеновского пучка в динамическом режиме работы рентгеноакустического кристалла–резонатора предварительно были проведены эксперименты по изучению распределения амплитуды деформации в рентгеноакустических резонаторах (см. главу 2).

В экспериментах по управлению длиной волны рентгеноакустический кристалл был установлен в положение Лауэ дифракции. В первую очередь выбор такой геометрии связан с возбуждением стоячей продольной ультразвуковой волны.

На рис. 4.4. показано схематично распределение деформации, созданной ультразвуковой волной по кристаллу. В таких условиях вектор ультразвуковой волны (направления деформации и смещения) должен иметь одинаковое направление с дифракционным вектором, что обеспечивает наиболее эффективное использование ультразвуковой деформации для изменения условий дифракции.

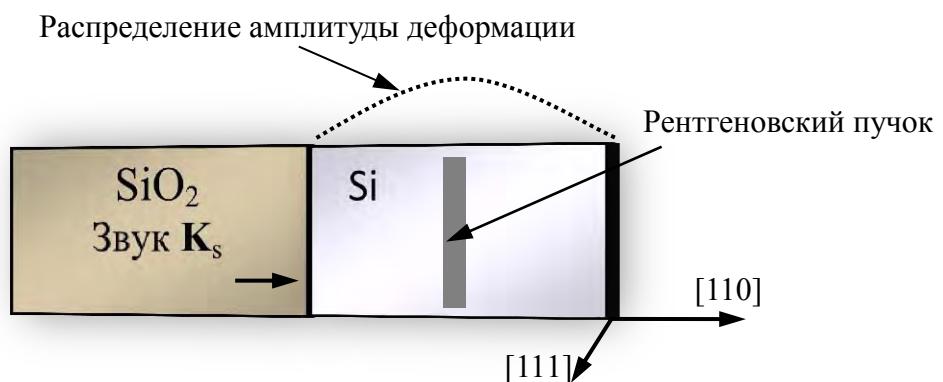


Рис. 4.4. Схема составного резонатора, положение рентгеновского пучка, пространственное распределение амплитуды деформации в рентгенооптическом элементе.

Эксперимент проводился в лабораторных условиях. Источником рентгеновского излучения служила рентгеновская трубка отпаянного типа с молибденовым анодом. Рентгенооптическая схема (рис. 4.5) была собрана на

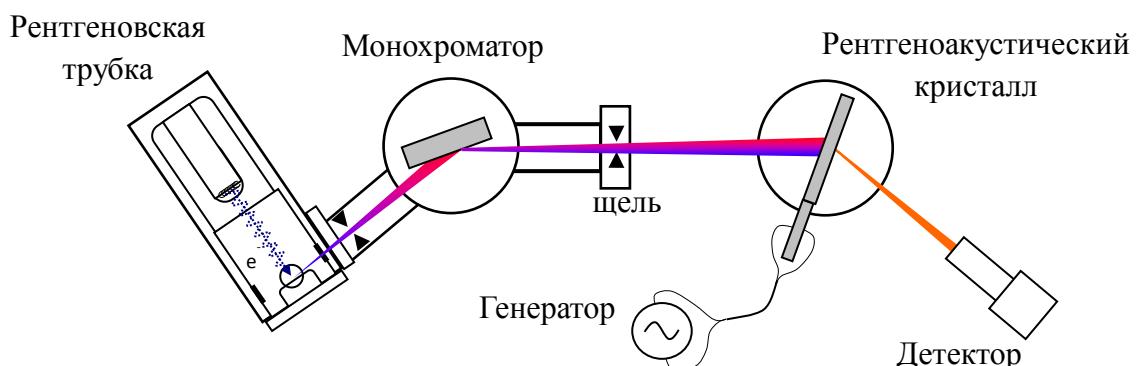


Рис 4.5. Рентгенооптическая двухкристальная схема эксперимента по ультразвуковой перестройке длины волны.

базе многофункционального рентгеноакустического дифрактометра, разработанного при выполнении данной работы (см. главу 2), и представляла собой двухкристальную антипараллельную схему, в которой в качестве монохроматора использовался кристалл кремния (однократное отражение 220). После кристалла была установлена щель, представляющая собой подобие коллиматора – она вырезала узкую область длин волн из развернутого монохроматором пучка, при этом размер щели был подобран таким образом, чтобы полностью проходила характеристическая линия k_{a1} . Второй кристалл был установлен на главном гониометре и представлял собой акустически перестраиваемый составной кристаллический элемент – две кристаллические пластины, склеенные торцевыми гранями (см. рис 2): пластину кристаллического кремния (традиционного рентгенооптического материала) и кристаллического кварца (пьезоэлектрического материала), выполняющего роль акустического преобразователя.

В двухкристальной схеме рентгеновский пучок после отражения на первом кристалле, по аналогии со световым пучком, отраженным призмой, имеет определенный угол расходности, в котором каждому направлению распространения соответствует определенная длина волны (своеобразный веер–радуга). При направлении этого пучка на второй кристалл–монохроматор, который установлен в антипараллельной геометрии, по закону Брэгга отражается только определенная компонента пучка. Изменение условия Брэгга на втором кристалле в такой схеме приводит к изменению длины волны отраженного им пучка.

На рис. 4.6. представлена диаграмма Дю-Монда, иллюстрирующая принцип измерения спектра излучения источника и выделения части спектрального диапазона временной перестройки выделяемой спектральной области. В отличие от рассмотренного в начале раздела эксперимента со статическим кристаллом анализатором, изменяемым параметром при измерении кривой дифракционного отражения является межплоскостное расстояние, которое меняется однородно по рентгеновскому пучку и

синусоидально во времени. Именно за счет изменения межплоскостного расстояния в эксперименте достигается сканирование условий.

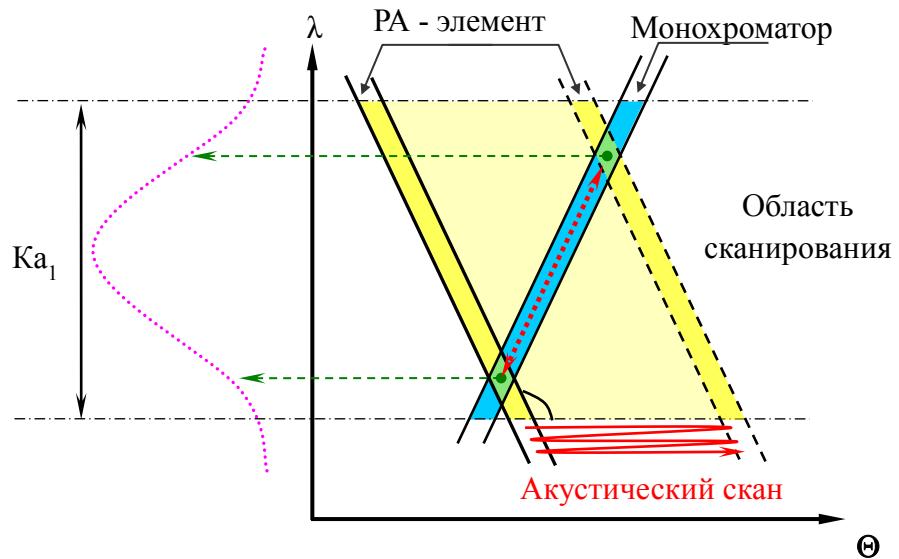


Рис. 4.6. Диаграмма Дю-Монда, иллюстрирующая принцип измерения спектра с помощью рентгеноакустических (РА) оптических элементов.

Далее представлены результаты, полученные в ходе проведения экспериментов по измерению спектра характеристической линии $K_{\alpha 1}$ лабораторного рентгеновского источника (рентгеновской трубы с молибденовым анодом). В первом эксперименте использовался

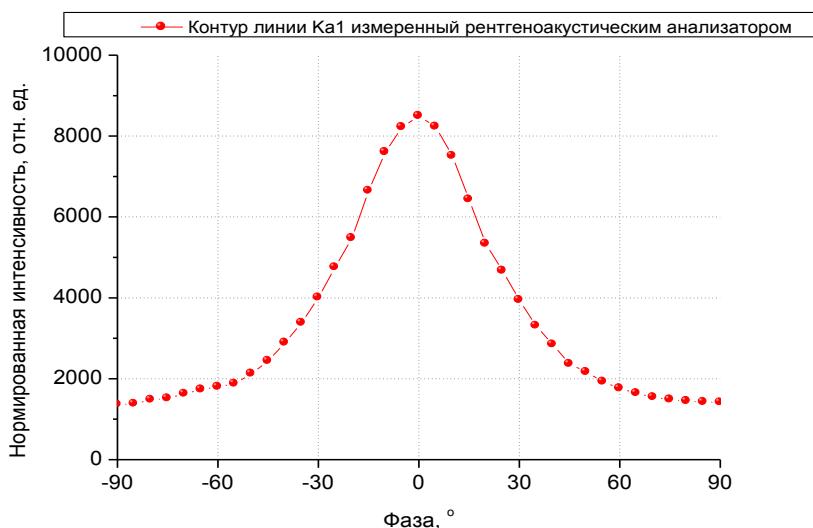


Рис. 4.7. Спектральная линия Mo $K_{\alpha 1}$ рентгеновской трубы, измеренные с помощью рентгеноакустического элемента шкале фазовой развертки.

динамический режим перестройки спектральной линии: кристалл–анализатор оставался неподвижным, а изменение условий дифракции осуществлялось ультразвуковой перестройкой параметра кристаллической решетки. На рис. 4.7 представлены экспериментальные кривые – зависимость интенсивности дифрагированного рентгеновского пучка от фазы колебаний рентгеноакустического элемента. Шаг фазы составлял 5° , измерения проводились в диапазоне $-90^\circ, 90^\circ$. Н

Во втором эксперименте спектр был измерен в статическом режиме работы кристалла анализатора – при изменении угла падания рентгеновского пучка на кристалл в результате механического поворота гониометра. Сравнение кривых на рис. 4.8 показывает весьма хорошее согласие спектра, измеренного традиционной механической перестройкой и при использовании предложенной динамической перестройки с помощью ультразвуковой модуляции. На рис. 4.9 представлен в широких пределах спектр рентгеновской трубки, включая линию $K_{\alpha 2}$, измеренный при механическом повороте кристалла в сравнении со спектром, измеренным акустически.

Рис. 4.8. Спектральная линия $Mo K_{\alpha 1}$ рентгеновской трубки, измеренные с помощью поворота кристалла и с помощью рентгеноакустического элемента.

Рис. 4.9. Спектральные линии Mo K_α рентгеновской трубы, измеренные помошью поворота кристалла и с помощью рентгеноакустического элемента.

Для сбора данных при измерении кривой в динамическом режиме был использован стrobоскопический метод регистрации дифрагированного рентгеновского пучка с использованием временного многоканального анализатора работающего в режиме временной (фазовой) развертки, когда каждому каналу соответствует определенное значение фазы колебаний кристалла (определенное значение деформации кристалла и соответствующее межплоскостное расстояние). Использовалось 35 каналов, и в соответствии с этим, период колебаний был также разделен на 35 временных промежутков, для каждого из которых регистрация интенсивности дифрагированного пучка проводилась в соответствующий канал сбора данных. Измеренная таким образом кривая представляла собой зависимость интенсивности от фазы колебаний рентгеноакустического кристалла. На основе предварительно проведенной калибровки кристалла данная кривая была пересчитана из фазовых координат по шкале абсцисс в координаты длин волны рентгеновского пучка. Калибровка заключалась в определении зависимости максимальной деформации кристаллической решетки от амплитуды переменного электрического сигнала, поддаваемого синусоидальным генератором на рентгеноакустический элемент. Калибровка

резонаторов проводилась на этапе измерения из угловых характеристик (см. главу 3). Для перевода угловых координат, получаемых при проведённой калибровке, в координаты длин волн проводили так же дополнительная калибровка угла поворота гониометра

Схема управления длиной волны на основе однокристального коллиматора

Двухкристальная схема не лишена недостатков. После дифракции на первом кристалле падающее на рентгеноакустический кристалл рентгеновское излучение представляет собой расходящийся по углу и спектру рентгеновский пучок, в котором каждому углу (направлению) распространения соответствует определенная длина волны. Рентгеноакустический кристалл работает как фильтр – в соответствии с законом Брэгга в каждой фазе отражается только определенная длина волны и, соответственно, при изменении длины волны, которое вызвано однородным изменением параметра кристаллической решетки также изменится и угол дифракции.

Устранить этот недостаток позволяет схема по выделению узкой спектральной линии и управлению спектром дифрагированного рентгеновского пучка с применением одного рентгеноакустического монохроматора (рис. 4.10), которая требует параллельного расходящегося по

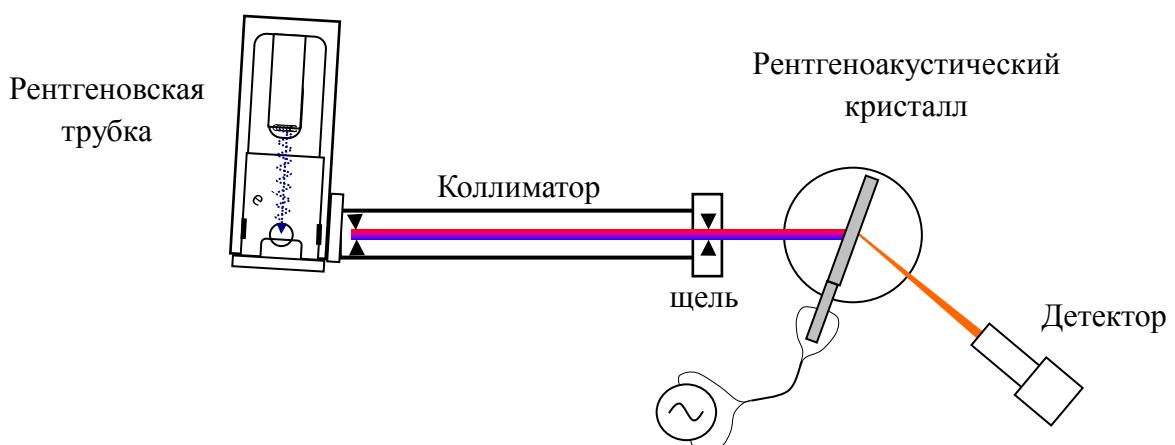


Рис 4.10. Рентгенооптическая однокристальная схема эксперимента по ультразвуковой перестройке длины волны с применением коллиматора.

спектру падающего на кристалл рентгеновского пучка. Т.к. весь спектр свернут в параллельный пучок, то отражается только так компонента спектра, для которой выполняется условие Вульфа–Брэгга. При изменении межплоскостного расстояния за счет ультразвуковых колебаний, с учетом того, что угол падения рентгеновского пучка (и, следовательно, угол отражения) на кристалл является константами, кристалл перестроится на отражение другую часть спектра падающего пучка при сохранении направления отражённого пучка. Таким образом модуляция параметра кристаллической решетки (при фиксированном угле падения параллельного немонохроматичного рентгеновского пучка на рентгеноакустический кристалл) приведет к модуляции длины волны дифрагированного пучка $\lambda(t)=\lambda_0+A_\lambda \sin(\omega t+\varphi)$. С применением стробоскопической техники можно реализовать управление длиной волны рентгеновского излучения.

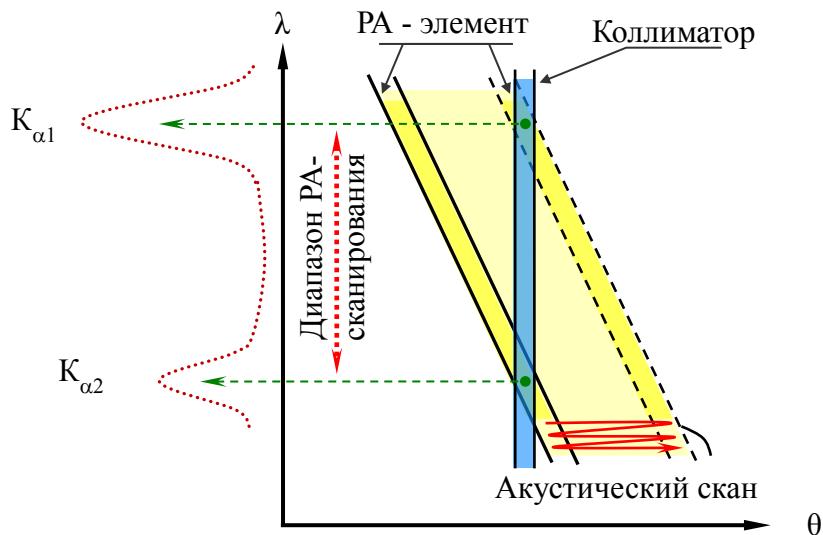


Рис. 4.11. Диаграмма Дю-Монда, иллюстрирующая принцип измерения спектра с помощью рентгеноакустического монохроматора и щелевого коллиматора.

На рис. 4.11. представлена диаграмма Дю-Монда, иллюстрирующая принцип измерения спектра излучения источника и выделения части спектрального диапазона временной перестройки выделяемой спектральной области. В отличие от рассмотренной выше ситуации с двойным кристаллом

– монохроматором, использование щелевого коллиматора не приводит к изменению углового положения рентгеновского дифрагированного пучка. Именно за счет изменения межплоскостного расстояния в эксперименте достигается сканирование условий дифракции.

На рис. 4.12 показана схема записи рентгеновского спектра вблизи дублета $K\alpha$ молибдена с временным разрешением с применением методики фазовой развертки и многоканального анализатора. В процессе колебаний за полный период происходит двойное сканирование исследуемой области.

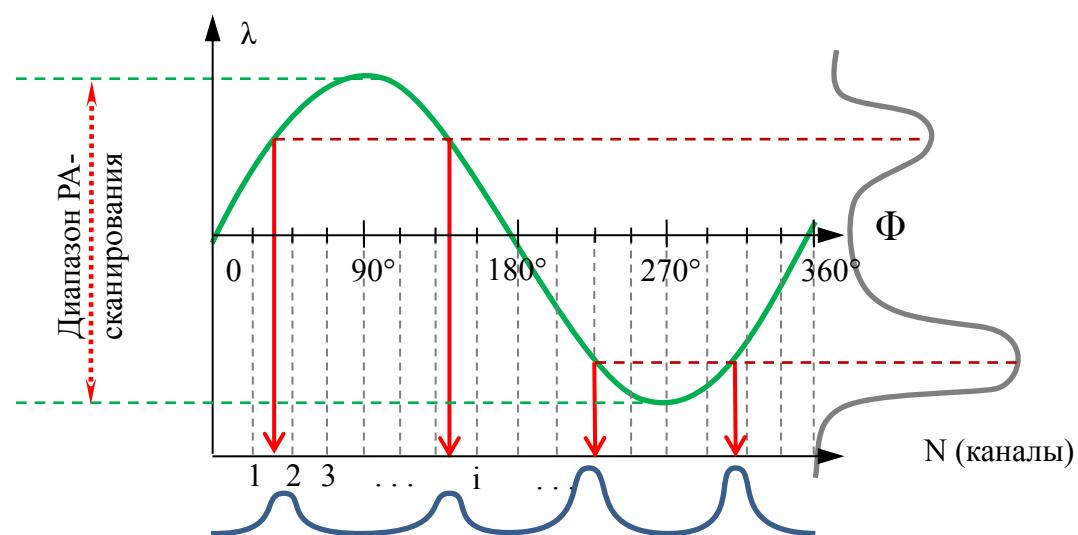


Рис. 4.12. Схема многоканальной записи спектра в режиме фазовой развертки.

В настоящем эксперименте продемонстрирована возможность не только спектральной перестройки дифрагированного рентгеновского пучка, но и возможность изменения диапазона спектральной перестройки и спектрального разрешения. На рис. 4.13. показана экспериментальные результаты – эволюция измеряемого спектра при увеличении амплитуды колебания кристалла в резонансе до значений, превосходящих угловое расстояние между $K_{\alpha 1}$ и $K_{\alpha 2}$ линиями (рис. 4.13 г). В случае небольших амплитуд кристалл качается в угловом диапазоне между линиями, фиксируя их хвосты (рис. 4.13а) до тех пор, пока амплитуда не сравняется с расстоянием между $K_{\alpha 1}$ и $K_{\alpha 2}$ (рис. 4.13 б–в).

а

б

в

г

Рис. 4.13. Интенсивность, зарегистрированная многоканальным анализатором и спектральные линии $Mo\;Ka$ рентгеновской трубки.

Рисунки слева отвечают за данные, полученные многоканальным анализатором спектра. Период волны распределялся по 1000 каналов (для различных фаз), а интенсивность рентгеновского пучка, дифрагированного

ультразвуковым монохроматором, в зависимости от частоты записывалась детектором различные моменты времени с одинаковым весом, соответственно, в каждый отдельный канал. Таким образом, происходит набор статистики, и в каждом отдельном канале копится свое значение интегральной интенсивности. При достаточной амплитуде колебания, превышающей угловое расстояние между линиями для Si(220), обе линии за один период попадают в отражающее положение ровно 2 раза.

Так как скорость накопления данных для каждого угла меняется по синусу в зависимости от фазы колебания, то затем по формуле, представленной ниже, требуется произвести пересчет каналов в углы.

$$w_i = A * \sin\left(-2\pi\left(\frac{ch_i - ch_0}{N}\right)\right)$$

где значение $\frac{ch_i - ch_0}{N}$ является фазой колебания, а параметр ch_0 подбирается эмпирически до совпадения двух веток колебания (в одну и в другую сторону). В правой колонке рис. 4.13 представлен набор данных при различных амплитудах колебания с учетом пересчета в угловые координаты.

На рис. 4.14. представлен спектр рентгеновской трубки, измеренный механическим и рентгеноакустическим методом. В данном случае возможен альтернативный способ калибровки результатов по расстоянию между

Рис. 4.14. Дублет спектральной линии Mo Ка измеренный с помощью поворота кристалла и с помощью рентгеноакустического элемента.

пиками кривой, соответствующим линиям $K_{\alpha 1}$ и $K_{\alpha 2}$. По данным, полученным при помощи механического поворота вокруг брэгговской оси без подачи напряжения на кристалл определялось угловое расстояние между линиями для калибровки результатов, которое для данной схемы составило 234,93 угловых секунд. Следовательно, одна угловая секунда для данной схемы составляет $(1,826(5) \cdot 10^{-5} \text{ \AA})$.

Полученные результаты демонстрируют еще одну возможность рентгеновской акустооптики – быстрая перестройка длины волны или энергии рентгеновского пучка в эксперименте, и основанный на этом быстрый спектральный анализ. При использовании синхротронного излучения предложенный способ акустического управления длиной волны рентгеновского пучка должен продемонстрировать особую эффективность. В первую очередь, это связано с высокой интенсивностью синхротронного пучка и широким непрерывным спектром излучения. На рис. 4.15 предложена модель экспериментальной схемы для управления длиной волны синхротронного излучения.

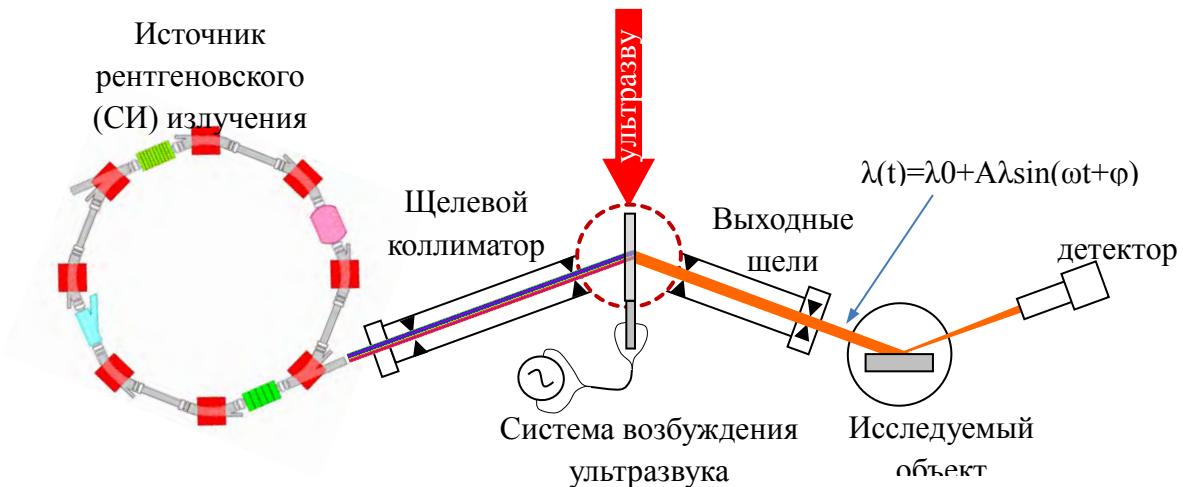


Рис. 4.15. Рентгенооптическая схема на основе щелевого коллиматора и рентгеноакустического монохроматора для реализации управления длиной волны синхротронного пучка.

Представленная схема была реализована на станции Медиана Курчатовского комплекса синхротронов исследований НИЦ «Курчатовский институт». На рис. 4.16 показана экспериментальная рентгенооптическая

схема, включающая в себя механические системы для настройки рентгеноакустической оптики.

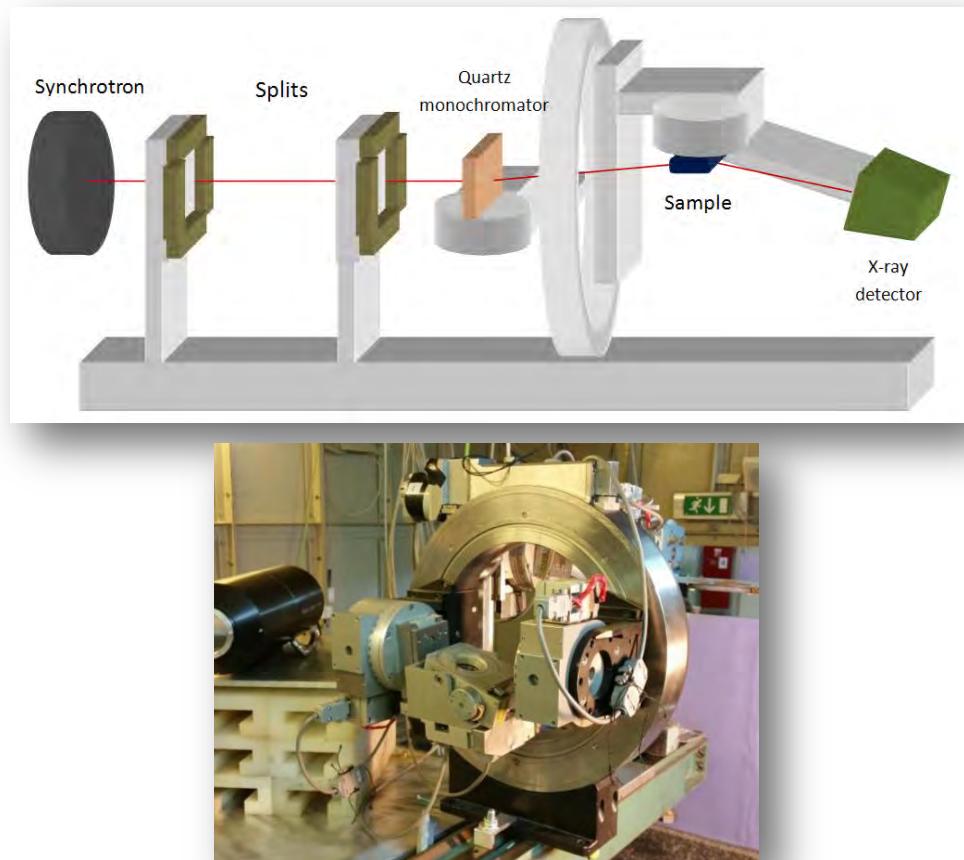


Рис. 4.16. Рентгенооптическая схема узла для станции Медиана для рентгеноакустического управления длиной волны синхротронного излучения. б) Фотография станции медиана с установленным рентгеноакустическим узлом.

Оценки по перестройки схемы. Зависимости диапазона перестройки от длины волны

Максимально возможный диапазон акустической перестройки согласно закону Вульфа-Брэгга прямо пропорционален максимальной деформации кристаллической решетки, которая ограничена пределами эластичности и прочности кристалла и зависит от текущей длины волны излучения. Для кристаллов кремния, применяемым в работах по рентгеноакустическим взаимодействиям, максимальная экспериментально зарегистрированная перестройка рентгенооптической схемы для изменения длины волны в

относительных единицах составила $4\sim3 \cdot 10^{-3}$ для продольных колебаний и $1,2 \cdot 10^{-2}$ для изгибных колебаний. При дальнейшем увеличении мощности увеличение деформации происходило нелинейно или кристалл разрушался. На рис. 4.17 представлена зависимость диапазона максимальной перестройки энергии от длины волны рентгеновского пучка.

Рис. 4.17. Зависимость диапазона сканирования по энергии для измерения рентгеновских спектров в зависимости от длины волны.

Из расчетов следует, что с уменьшением длины волны диапазон перестройки увеличивается для характерных энергий синхротронного пучка 10–20 кэВ или $1,4 - 0,6$ Å, применяемых для рентгеновской спектроскопии диапазон перестройки составляет несколько десятков электрон вольт.

Возможные диапазоны быстрой спектральной перестройки рентгеновского излучения, реализуемой рентгеноакустическим монохроматором, определялись на основе экспериментально измеренных кривых дифракционного отражения при ультразвуковых амплитудах, близких к предельным значениям, превышение которых приводит к разрушению кристалла. Кривые измерялись по двухкристальной схеме, в которой рентгеноакустический элемент размещался на позиции образца, пучок формировался однократным отражением от монохроматора. В экспериментах измерялась полуширина кривых качания, зарегистрированных

поворотом рентгеноакустического элемента при включенном ультразвуке. Интенсивность рентгеновского пучка регистрировалась интегрально по времени.

Полуширина кривой дифракционного отражения зарегистрированная в эксперименте при максимальной амплитуде ультразвука (в пределах линейности закона Гука) определяет максимальную область ультразвукового сканирования с помощью конкретного рентгеноакустического резонатора и выбранного рефлекса. На основе полученных данных можно рассчитать деформацию кристаллической решетки и определить диапазон спектральной перестройки для этой деформации. Измерения кривых дифракционного отражения проводились в геометрии Брэгга и в геометрии Лауэ. Оценки возможной спектральной перестройки проведены для схемы на основе однокристального коллиматора (рис. 4.15) для длины волны 0,7093 Å.

На рис. 4.18. представлены кривые дифракционного отражения, измеренные для двух различных рентгеноакустических резонаторов в геометрии Брэгга и в геометрии Лауэ (продольная и изгибная мода). При измерениях мощность ультразвука была близка к максимальной. Оценки диапазонов быстрой спектральной перестройки рентгеновского излучения, проведенные на основе полученных данных, составляют для кристалла кремния в геометрии Брэгга – 0,006 Å ($\Delta\lambda/\lambda = 0,009$) и 0,0013 Å ($\Delta\lambda/\lambda = 0,002$) в геометрии Лауэ.

Рис 4.18. Кривые дифракционного отражения кристалла герmania в геометрии по Брэггу и Лауз.

4.2. Динамическая фокусировка рентгеновского излучения

В рентгеновской оптике для управления расходимостью и фокусировкой рентгеновских пучков применяются кристаллы с градиентом параметра решетки (изогнутые кристаллы, кристаллы со статическим или тепловым градиентом и др.).

Как было показано в главе 1 и 2 отличительной особенностью длинноволновой области, когда длина волны ультразвука многократно превышает размеры области дифракции рентгеновского пучка, является создание непериодической градиентной деформации кристаллической решетки по сечению (апертуре) рентгеновского пучка. В работе [336] теоретически, а в работе [337,338] экспериментально показано, что в зависимости от знака градиента, кристалл может работать как изогнутая пластина (выпуклая или вогнутая). При этом рентгеновский пучок будет дефокусироваться или фокусироваться.

В работах [315, 316], посвященных изучению рентгеноакустических взаимодействий в области длинноволнового ультразвука, наряду с возможностями управления углом дифрагированного рентгеновского пучка с помощью однородной ультразвуковой деформации и было показаны влияние неоднородной ультразвуковой деформации на пространственную структуру (фокусировку, сходимость, расходимость) рентгеновского пучка. С помощью длинноволнового ультразвука в области дифракции рентгеновского пучка были созданы деформации кристаллической решетки, распределение которых описывалось квазилинейным градиентом вдоль выделенного направления. И как это было рассмотрено в главе 2 условия дифракции, возникающие при этом, были близки к тем, что используются в кристаллах со статическим линейным градиентом деформации кристаллической решетки и в изогнутых кристаллах.

При дифракции рентгеновских лучей в условиях возбуждения в кристалле низкочастотной ультразвуковой волны можно добиться воздействия на дифрагированный пучок аналогичного изгибным и

градиентным статическим рентгенооптическим элементам. В отличие от статического случая, величина градиента ультразвуковой деформации меняется по гармоническому закону во времени. Периодичность во времени и гармоничность в пространстве ультразвуковой волны в кристалле позволяет оперативно в широких пределах управлять деформацией кристаллической решетки, что открывает новые возможности по управлению рентгеновскими пучками с помощью перестраиваемых ультразвуком градиентных кристаллических элементов и расширяет рамки применения градиентной рентгеновской оптики.

Далее представлены результаты по изучению возможностей регулировки градиента деформации кристаллической решетки, вызванного длинноволновым ультразвуком, на примере монокристалла германия. Экспериментально реализованы и протестиированы два способа управления градиентом деформации: а) управление с помощью изменения амплитуды ультразвуковых колебаний; б) управление за счет изменения частоты и гармоники колебаний.

Для проведения экспериментов был применен рентгеноакустический дифрактометр, разработанный на базе рентгеновского спектрометра ТРС, снабженного системой возбуждения и контроля ультразвука в кристаллах, и системой стrobоскопической регистрации дифрагированного рентгеновского пучка, основанной на схеме совпадения и работающей в одноканальном режиме. В экспериментах дифрагированный рентгеновский пучок измерялся в фазах, соответствующих максимальной деформации кристаллической решетки.

Рентгенооптическая схема эксперимента и схема подключения вспомогательного оборудования показана на рис 4.19.

Стробоскопическая система работала в одноканальном режиме и позволяла регистрировать дифрагированный пучок только в определенной фазе ультразвуковых колебаний, «замораживая» таким образом, колеблющийся кристалл. В эксперименте измерялись серии

стробоскопических кривых дифракционного отражения (КДО) при различных условиях создания постоянно-градиентной деформации кристаллической решетки по ширине рентгеновского пучка с помощью длинноволнового ультразвука.

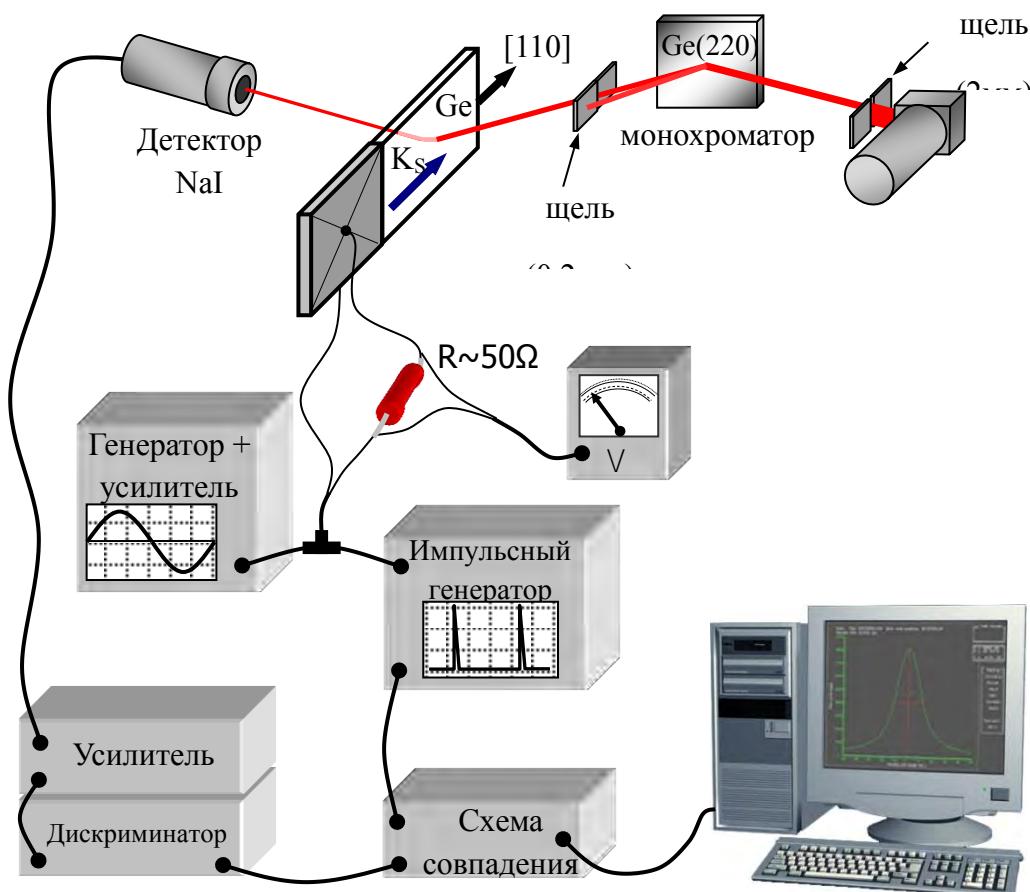


Рис. 4.19. Общая схема эксперимента по изучению рентгеноакустической деформации.

Эксперименты проводились по двухкристальной бездисперсионной схеме дифракции рентгеновских лучей спектральной линии $\text{MoK}_{\alpha 1}$ в геометрии Лауэ. Образец представлял собой пластину Ge с размерами 18,7 x 4,6 x 0,4 мм ориентацией [111] вдоль [-110]. Как в монохроматоре, так и в образце реализовывалось симметричное отражение (220). Волевой вектор и вектор смещения упругой волны K_s были сонаправлены с вектором дифракции D . Рентгеновский пучок после монохроматора коллимировался щелью. На образце были созданы условия многократного превышения

длиной ультразвуковой волны ширины области дифракции рентгеновского пучка на образце. При таких условиях возможно локализовать область кристалла с практически линейным распределением ультразвуковой деформации (линейный градиент деформации на ширине пучка).

Колебания в кристалле германия возбуждались с помощью широко используемой в данной работе схеме составного резонатора. Резонатор представлял собой две прямоугольные кристаллические пластины (исследуемый кристалл Ge и пьезокристалл–возбудитель SiO_2), склеенные торцевой частью. Для реализации эффективного рентгеноакустического взаимодействия в области градиентной ультразвуковой деформации длина исследуемого кристалла многократно превышала ширину рентгеновского пучка на образце ($0,1 – 0,4$ мм). Подробно техника изготовления резонаторов низкочастотных ультразвуковых колебаний описана в главе 2.

При возбуждении колебаний в резонаторе формируется стоячая продольная ультразвуковая волна, по длине каждого из кристаллов укладывается половина длины упругой волны, максимум деформации приходится на центр кристалла, а узел (минимум) деформации приходится на границу раздела, что позволяет сохранять добротность резонанса (рис. 4.20).

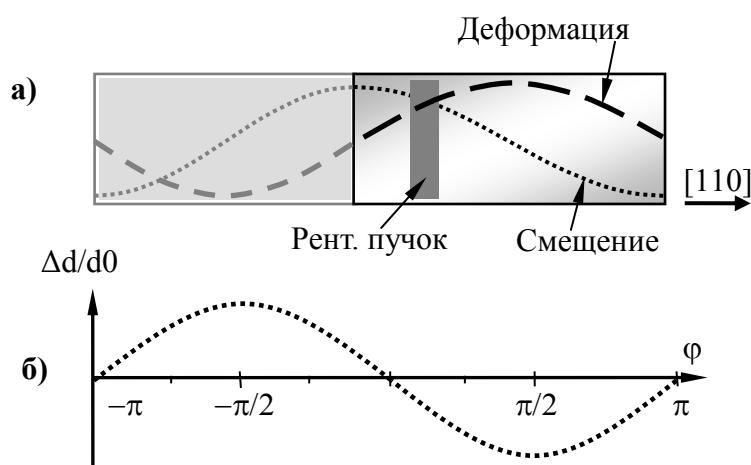


Рис. 4.20. Пространственное распределение амплитуды деформации по кристаллу в случае чистой моды первой гармоники продольных колебаний (а), изменение амплитуды деформации во времени (б).

Рентгеновский пучок позиционируется на область кристалла с градиентной деформацией. Следует отметить, что в работе использовался кристалл, в котором распределение амплитуды деформации было отличным от полуволнового распределения в случае чистой моды (рис. 4.20). Экспериментально измеренное распределение деформации для используемого в экспериментах кристалла–резонатора представлено на рис. 4.21. Как видно из рисунка на чистую моду деформации накладывалась

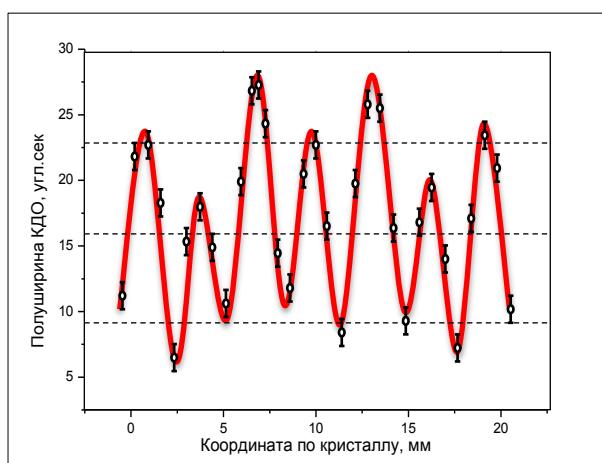


Рис. 4.21. Распределение амплитуды деформации в рентгеноакустическом кристалле.

коротковолновая модуляция. Так показали дополнительные исследования см. главу 2), причиной этому является возникающая связь с поперечной модой колебаний. В данном эксперименте наличие такой коротковолновой модуляции сказывалось положительно, т.к. это позволило существенно увеличить изменение деформации по области дифракции рентгеновского пучка при сохранении условий квазилинейного градиента.

Составной резонатор устанавливался в специальный кристаллодержатель, позволяющий жестко крепить кристалл при сохранении высокой добротности колебаний. Для контроля качества изготовления, крепления и измерения добротности рентгеноакустических резонаторов измерялись их колебательные спектры (АЧХ). На рис. 4.22 представлены амплитудно-частотные характеристики резонаторов в областях частот первой (а) и третьей (б) гармоник продольных колебаний резонатора.

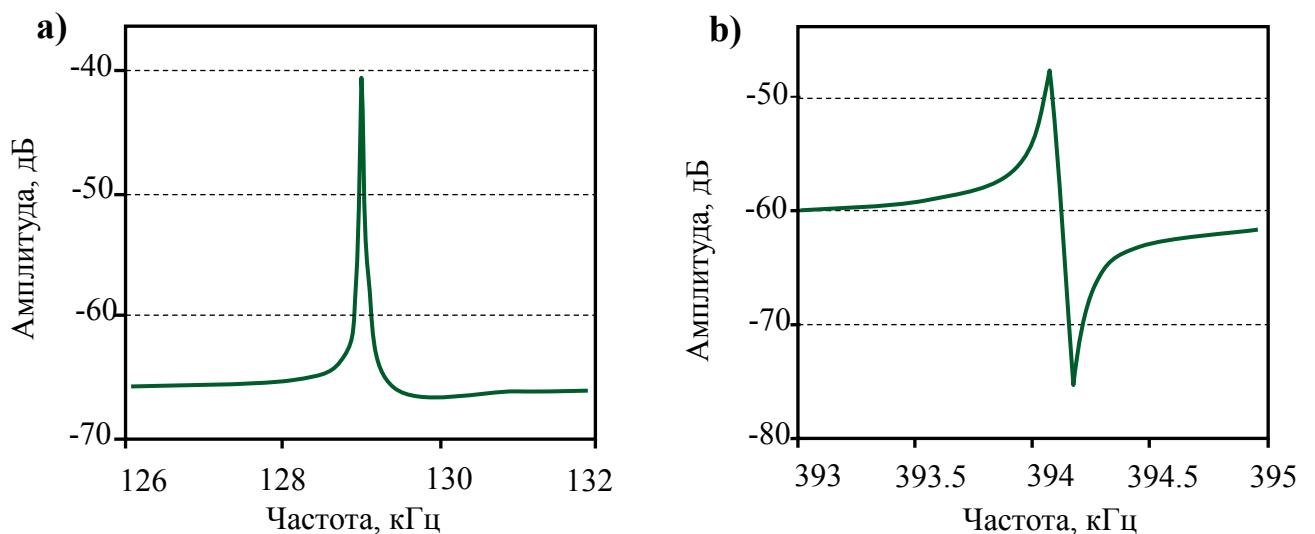


Рис. 4.22. АЧХ составного резонатора для первой (a) и третьей (b) гармоники. Чистота и моночастотность спектров свидетельствует о высокоэффективном возбуждении колебаний в кристалле.

Из графиков видно, что изготовленные резонаторы достаточно эффективно возбуждаются как на основной частоте, так и на 3й гармонике, что позволяет измерить рентгеноакустические взаимодействия на различных частотах, и реализовывать частотное управление градиентом.

Амплитудное управление градиентом деформации кристаллической решетки

На рис. 4.23 проиллюстрирован механизм управления величиной градиента ультразвуковой деформации по ширине рентгеновского пучка с помощью варьирования амплитуды колебаний. При проведении

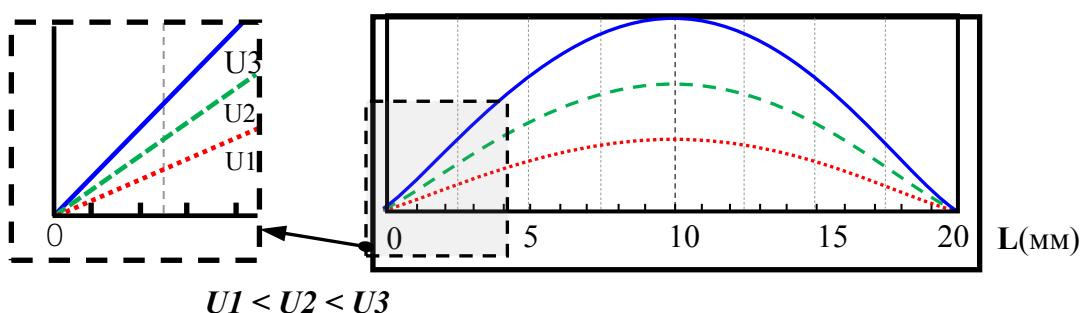


Рис. 4.23. Возрастание градиента ультразвуковой деформации при увеличении амплитуды колебаний.

экспериментов по управлению градиентом деформации путем изменения амплитуды колебаний измерялись кривые дифракционного отражения в зависимости от мощности ультразвука (амплитуды переменного электрического сигнала, поданного на пьезокристаллический резонатор). Измерения проводились с использованием стробоскопической методики регистрации дифрагированного пучка, и выделялась фаза максимального растяжения кристаллической решетки образца. Для позиционирования пучка на область с квазипостоянным градиентом деформации предварительно было исследовано распределение деформации, созданной ультразвуком по длине кристалла германия. Исследование распределения проводилось рентгенодифракционными методами по ширине кривой дифракционного отражения, измеренной усреднено по всему периоду колебаний. В результате были определены области кристалла, где профиль ультразвуковой деформации имел подходящий вид рис. 4.24.

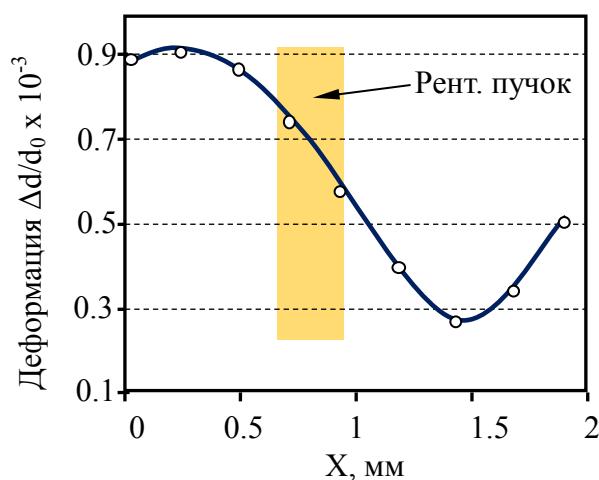


Рис.4.24. Профиль распределения ультразвуковой деформации по ширине рентгеновского пучка.

На рис. 4.25. приведены кривые дифракционного отражения, измеренные при росте амплитуды переменного электрического сигнала, возбуждающего колебания в кристалле. Кривая 1 соответствует отсутствию колебаний и ультразвуковой деформации, кривая 2 измерена при мощности переменного сигнала 30v, кривая 3 измерена при напряжении 60v.

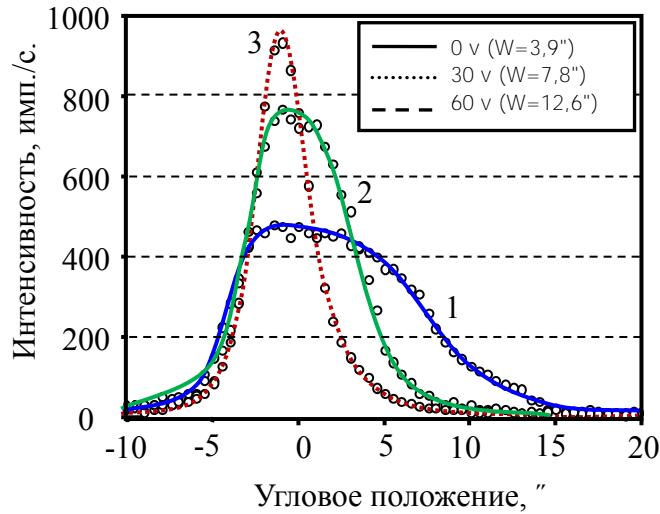


Рис. 4.25. Кривые дифракционного отражения, измеренные для фазы максимального растяжения кристалла при различных амплитудах ультразвука.

В работах по дифракции рентгеновских лучей на кристаллах со статическим градиентом деформации кристаллической решетки [337,338] угловое распределение интенсивности дифрагированного пучка имеет характерный прямоугольный вид. Уширение кривых рис. 4.25 также имеет прямоугольный вид, свидетельствующий о динамическом градиенте.

*Частотное управление градиентом деформации
кристаллической решетки.*

Принцип управления «силой» градиента ультразвуковой деформации с помощью варьирования частоты колебаний показан на рис. 4.26.

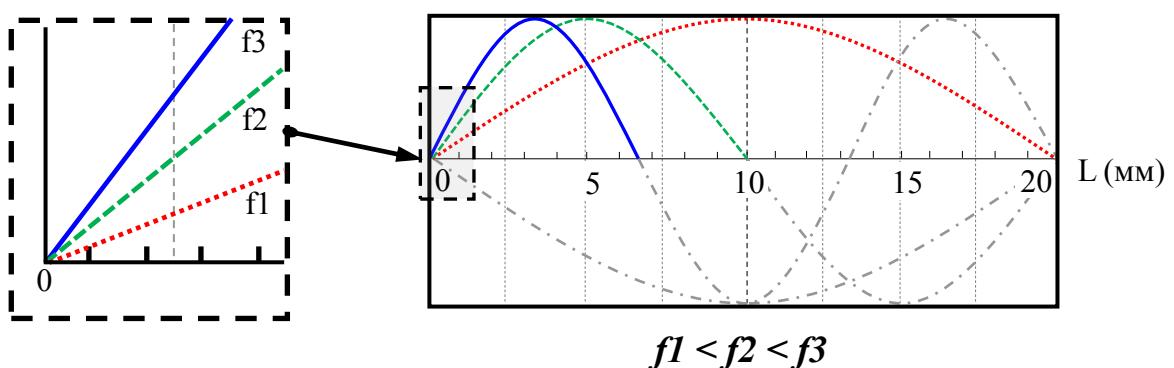


Рис. 4.26. Управление градиентом ультразвуковой деформации при изменении частоты (гармоники) колебаний.

В экспериментах кристалл возбуждался на частотах резонанса первой и третьей гармоники продольных колебаний. Рентгеновский пучок засвечивал область кристалла с линейным характером распределения деформации (постоянный градиент). Измерялись стробоскопические кривые дифракционного отражения для различных частот колебаний кристалла.

Также, как и в случае амплитудного управления градиентом деформации, предварительно было проведено исследование распределения деформации создаваемой ультразвуком по длине кристалла, но при возбуждении резонатора на как на первой, так и на третьей гармонике. Была выделена область кристалла, где при смене частоты колебаний наблюдался рост величины градиента. В этой области была реализована дифракция рентгеновского пучка (рис. 4.27).

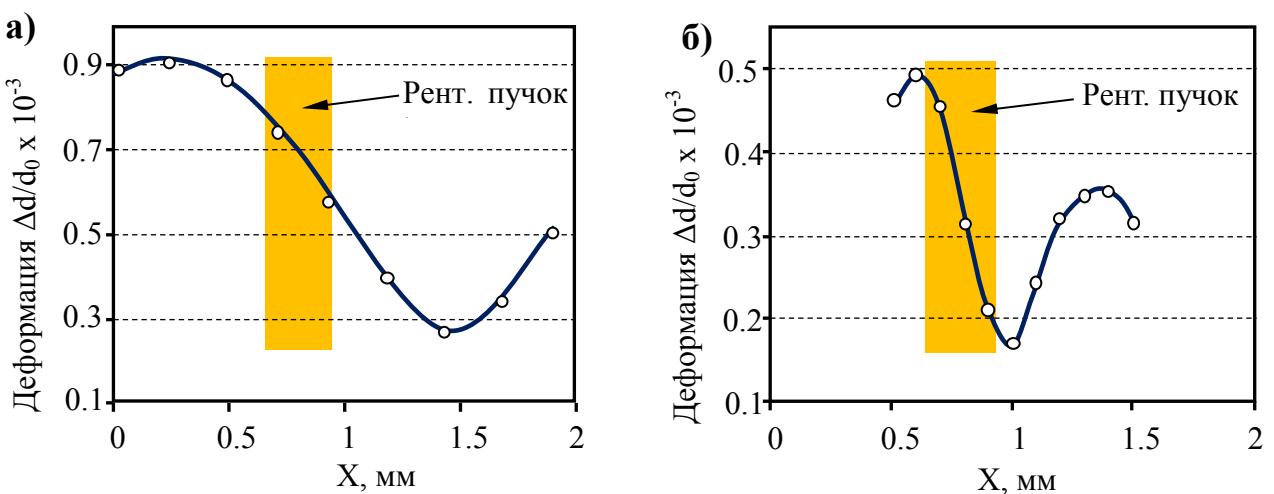


Рис. 4.27. Профили распределения ультразвуковой деформации для первой (а) и третьей (б) гармоники и размер рентгеновского пучка.

На рис. 4.28 приведены стробоскопические кривые дифракционного отражения, измеренные в фазе максимального растяжения кристаллической решетки при возбуждении кристалла на первой и на третьей гармониках.

Измеренные в фазе максимального растяжения при различных частотах и амплитудах ультразвука кривые близки к экспериментальным и теоретическим кривым градиентных кристаллов. Были созданы градиенты

величиной $0,1 \cdot 10^{-3}$ и показаны возможности управления градиентом деформации – величину градиента удалось изменить в 2,5 раза.

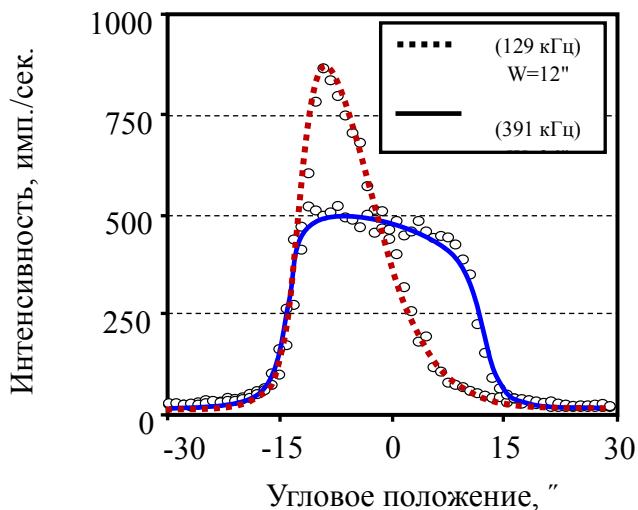


Рис. 4.28. Кривые дифракционного отражения, измеренные для фазы максимального растяжения кристалла для первой и третьей гармоники.

Результаты экспериментов дают непосредственную информацию о степени деформации кристалла при различных способах генерации ультразвука. Так, например, можно определить характер и интенсивность паразитных гармоник с более короткой длиной волны. В частности были определены границы изменения градиента за счет частоты ультразвука $d < \lambda/4$ (λ – длина волны ультразвука, d – ширина рентгеновского пучка). Границей увеличения градиента за счет амплитуды является предел прочности (выход деформаций на уровень заметного отклонения от закона Гука). Кроме того, определяется величина максимальной деформации в образце при подаче на пьезоэлектрический резонатор заданной мощности.

На основе полученных результатов был проведен эксперимент по уменьшению расходности с использованием рентгеноакустического управления. Расходящийся рентгеновский пучок был направлен на рентгенооптический кристалл. Анализ расходности пучка, отраженного рентгеноакустическим кристаллом проводился применением кристалла анализатора. На рис. 4.29 представлены экспериментальные результаты

измерения углового распределения дифрагированного пучка при включении ультразвука в кристалле. Анализ полученных данных показывает, что с применением акустической коллимации удалось существенно уменьшить расходимость рентгеновского пучка со значения превышающего $110''$ до $10,5''$.

Рис. 4.29. Угловое распределение расходящегося рентгеновского пучка до и после включения ультразвука.

4.3. Выводы к главе 4

Особо важным результатом настоящей главы является экспериментальная реализация на основе рентгеноакустических взаимодействий быстрого управление длиной волны рентгеновского пучка с применением акустической модуляции рентгенооптического кристалла, выполненная в данной работе впервые в мире. Экспериментально продемонстрирована перестройка длины волны с использованием двух различных схем управления: первая основана на применении 2х кристаллов монохроматоров, один из которых представляет собой акустически перестраиваемый монохроматор и вторая схема, основанная на применении щелевого коллиматора, сопряженного с одним акустически перестраиваемым кристаллом–монохроматором [339].

Предложенные методы позволяют с высоким временным разрешением проводить сканирование длины волны или анализ спектра рентгеновского излучения. Достигнуты диапазон сканирования может достигать сотен электрон-вольт эВ, разрешение до 0,5 эВ, время полного сканирования может составлять доли микросекунды.

Предложенный метод перестройки может быть полезен, по крайней мере, в двух случаях. Во-первых, можно легко организовать спектральные измерения на однокристальных монохроматорах с помощью простого рентгеноакустического узла. Во-вторых, что представляется особо интересным, открывается возможность на основе быстрой спектральной перестройки исследовать быстропротекающие процессы и, а также существенно улучшить чувствительность и информативность экспериментов с применением методики модуляционной спектроскопии. Модуляционная рентгеновская спектроскопия позволяет при модуляции длины волны рентгеновского пучка в области поглощения его определенными атомами структуры резонансным образом существенно повысить чувствительность и селективность стандартных рентгеновских методов.

При использовании синхротронного излучения предложенный способ акустического управления длиной волны рентгеновского пучка может, на наш взгляд, продемонстрировать особую эффективность в связи с высокой интенсивностью и широким непрерывным спектром синхротронного излучения.

Во второй части настоящей главы предложено и экспериментально реализовано динамическое управление градиентом деформации с помощью амплитуды ультразвука и с помощью частоты ультразвука. Экспериментально показано, что динамическое изменение градиента деформации кристалла позволяет создавать аналоги статических фокусирующих рентгенооптических элементов, но с возможностью быстрой перестройки их параметров. Это дает возможность оперативно с временным разрешением управлять характеристиками отраженного пучка, что может быть использовано для управления сходимостью рентгеновского пучка, подстройке фокусного расстояния, изменения спектральной полосы пропускания монохроматора СИ, и т.д.

Экспериментально продемонстрировано управление сходимостью рентгеновского пучка с применением амплитудного способа управления. При включении ультразвука расходимость рентгеновского пучка была уменьшена практически на порядок по сравнению с невозбужденном кристаллом.

**Глава 5. Методы изучения вещества с применением
высокочувствительных и фазочувствительных методов на основе двух-
трехкристальной, двухлучевой и многолучевой дифракции, в том числе
в условиях возбуждения ультразвука**

**5.1. Особенности многоволновой дифракции и ее использование для
изучения дефектной структуры. Сравнение чувствительности
многоволновой и двухволновой дифракции**

Многоволновая динамическая дифракция рентгеновских лучей, как правило, изучается в кристаллах с высокой степенью совершенства кристаллической решетки [340, 341]. Это вызвано, в первую очередь, высокой чувствительностью многоволновой дифракции к дефектам кристаллической структуры, а также связано с особенностью многоволнового взаимодействия, обладающего также чувствительностью к изменениям параметра кристаллической решетки сразу в нескольких направлениях (т.к. при многоволновой дифракции задействованы больше трех семейств кристаллических плоскостей). Многоволновая дифракция является фазочувствительным методом и позволяет определять фазы структурных амплитуд непосредственно из эксперимента. В этом и состоит ее основное отличие от обычной двухволновой дифракции (падающая и отраженная волна), когда, как известно, невозможно получить информацию о фазе дифрагированной волны, – так называемая, «фазовая проблема» рентгеновского анализа. Фазовая чувствительность многоволновой дифракции проявляется в повышенной чувствительности многоволновой к дефектам кристаллической структуры. Суммирование интенсивности когерентного рассеяния в условиях многоволновой дифракции в совокупности с чувствительностью в различных направлениях создает условия высокой чувствительности к дефектам, в случаях, когда стандартная двухволновая дифракция уже не эффективна.

Известно [342], что экспериментальная схема высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии с использованием лабораторного источника вполне пригодна для изучения эффектов многоволновой дифракции. Интересные результаты получаются в случае компланарной трехволновой дифракции [343], когда отражения от двух систем атомных плоскостей происходят в одной и той же плоскости рассеяния, то есть направления падающего и двух дифрагированных пучков лежат в одной плоскости.

Как правило, в трехволновой области параметров, где одновременно выполняются условия Брэгга для двух отражений одинаковой силы, происходит существенная перестройка волновой функции излучения. Однако, если первое отражение сильное, а второе слабое, то возникает асимметричная ситуация. Сильное отражение почти не меняется в трехволновой области, а слабое отражение изменяется характерным образом. В области полного отражения на первом (сильном) рефлексе это возмущение имеет типично дисперсионный характер, то есть усиление с одной стороны и ослабление с другой (см., например, [343, **Ошибка! Закладка не пределена.**]). В работе [344] такой тип рассеяния был назван амплитудным рассеянием. Там же было показано, что есть еще и другой механизм рассеяния, а именно, резонансное или виртуальное рассеяние, когда отражение на первом рефлексе очень слабое, потому что плохо выполняется условие Брэгга, но изменение второго рефлекса весьма существенное и происходит в очень широкой области параметра, изменяющего отклонение от условия Брэгга для первого рефлекса.

В настоящем разделе, на примере кристалла парателлурита TeO_2 , обладающего высокой степенью совершенства кристаллической структуры, показана возможность наблюдения всех особенностей многоволновой дифракции, соответствующих теории для совершенных кристаллов, а также возможность применения многоволновой дифракции для изучения дефектной структуры. Для лабораторного эксперимента весьма интересным является случай компланарной дифракции (частный случай многоволновой

дифракции, но крайне удобный с точки зрения лабораторной экспериментальной схемы), в котором отражения падающего пучка в два дифрагированных пучка происходят в одной и той же плоскости. Такая дифракция слабо чувствительна к угловой расходимости падающего пучка в плоскости, перпендикулярной плоскости рассеяния, что упрощает требования к экспериментальной схеме. С другой стороны, она реализуется только для строго определенной длины волны рентгеновского излучения. В частности, в работах [345,346] реализовались условия, близкие к компланарной дифракции, но все же имелось слабое отличие Mo K_{α1} линии от точного значения, соответствующего компланарной дифракции для рассмотренных отражений.

Поиск пар для многоволновой дифракции

На рис. 5.1 представлены две типичные конфигурации многоволновой дифракции в компланарной геометрии. Задача по поиску многоволнового взаимодействия сводится к расчету минимального угла (близкого или равного нулю) Ψ_0 на которое надо повернуть кристалл, чтобы перейти от первого отражения ко второму при данной длине волны рентгеновского источника (рентгеновской трубки).

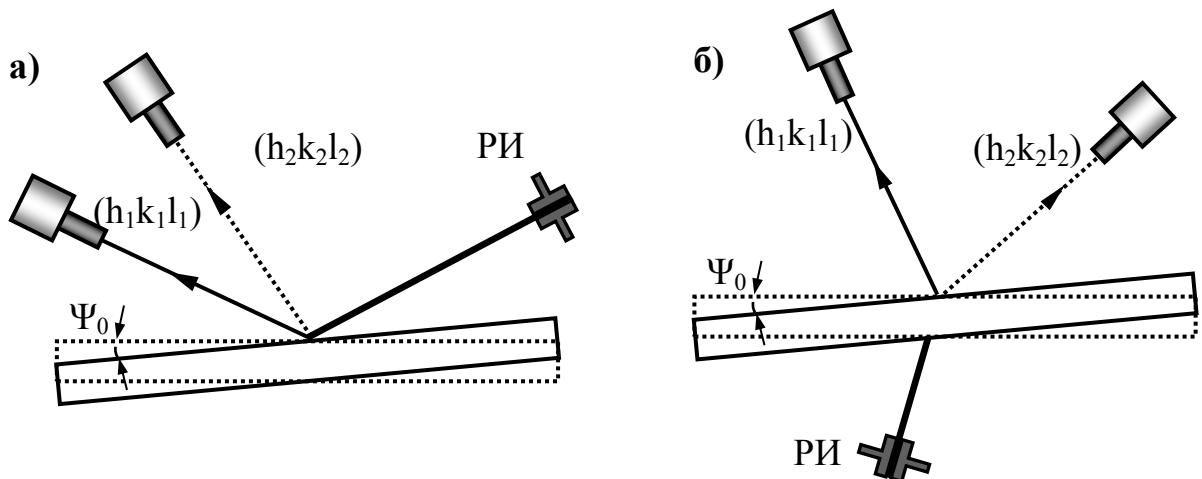


Рис. 5.1. Схема многоволновой дифракции в компланарной геометрии:

а) геометрия Брэгга и б) геометрия Лауз.

Ψ_0 – угловое расстояние между максимумами дифракционных пиков многоволновых рефлексов $(h_1k_1l_1)$, $(h_2k_2l_2)$,

РИ – рентгеновский источник.

Угловое расстояние (величина Ψ_0) для указанных представленных на рис 5.1 многоволновой дифракции в компланарной геометрии определяется по формулам:

$$\Psi_0 = \eta - |\theta_{B1} - \theta_{B2}|, \quad (5.1)$$

$$\Psi_0 = \eta + \theta_{B1} + \theta_{B2} - 180^\circ, \quad (5.2)$$

где θ_{B1} и θ_{B2} – соответствующие отражающим плоскостям углы Брэгга, $(h_1k_1l_1)$, $(h_2k_2l_2)$, η – угол между отражающим плоскостями.

В случае кубической решетки зависимость параметра кристаллической решетки a определяется выражением:

$$a = \lambda H(1 + \varepsilon \Psi_0)/(2\sin\eta), \quad (5.3)$$

$$\varepsilon = |\operatorname{tg}\theta_{B1} \pm \operatorname{tg}\theta_{B2}|^{-1} \approx \cos\theta_{B1}\cos\theta_{B2}/\sin(\eta), \quad (5.4)$$

где λ – длина волны падающего рентгеновского излучения;

$H^2 = (h_1 - h_2)^2 + (k_1 - k_2)^2 + (l_1 - l_2)^2$; знаки $-$, $+$ определяются схемой дифракции - Рис. 5.1 (a) и (б).

С использованием формул (5.1, 5.2), значений углов Брэгга θ_{B1} , θ_{B2} пары рефлексов $(h_1k_1l_1)$, $(h_2k_2l_2)$ и угла η между соответствующими кристаллографическими плоскостями вычисляется величина угла Ψ_0 . Вычисляя значения межплоскостных расстояний d_{h1k1l1} , d_{h2k2l2} кристаллографических плоскостей $(h_1k_1l_1)$, $(h_2k_2l_2)$ (длина волны λ задана), получаем углы Брэгга θ_{B1} , θ_{B2} по закону Вульфа-Брэгга. Значения d_{h1k1l1} , d_{h2k2l2} , η зависят от параметров элементарной ячейки и индексов hkl , и вычисляются по формулам структурной кристаллографии. При этом параметры элементарной ячейки a , b , c , α , β , γ полагаются известными (из таблиц и литературных источников).

Таким образом, угол Брэгга вычисляется по формуле:

$$\theta_B = \arcsin(\lambda|\mathbf{H}_{hkl}|/2), \quad (5.5)$$

где $|\mathbf{H}_{hkl}|$ – модуль вектора обратной решетки, который определяется выражениями:

$$|\mathbf{H}_{hkl}| = (|h\mathbf{a} + k\mathbf{b} + l\mathbf{c}|)^{-1} = d_{hkl}^{-1}; \quad (5.6)$$

$$|h\mathbf{a} + k\mathbf{b} + l\mathbf{c}|^2 = h^2a^2 + k^2b^2 + l^2c^2 + 2klbcc\cos\alpha + 2hlcac\cos\beta + 2hkb\cos\gamma. \quad (5.7)$$

Величины \mathbf{a} , \mathbf{b} , \mathbf{c} – базис обратной ячейки; a , b , c – модули параметров обратной ячейки, которые зависят от сингонии кристалла и определяются известными соотношениями между параметрами прямой и обратной решеток [347].

Принимая во внимание, что скалярное произведение векторов равняется $\mathbf{H}_1 = h_1\mathbf{a} + k_1\mathbf{b} + l_1\mathbf{c}$ и $\mathbf{H}_2 = h_2\mathbf{a} + k_2\mathbf{b} + l_2\mathbf{c}$, угол η между соответствующими семействами плоскостей $(h_1k_1l_1)$, $(h_2k_2l_2)$ вычисляется по формуле:

$$(\mathbf{H}_1 \cdot \mathbf{H}_2) = |\mathbf{H}_1| |\mathbf{H}_2| \cos(\eta). \quad (5.8)$$

При этом косинус угла η определяется выражением:

$$\begin{aligned} \cos(\eta) &= (\mathbf{H}_1 \cdot \mathbf{H}_2) / |\mathbf{H}_1| |\mathbf{H}_2| = \\ &= d_{h_1k_1l_1} d_{h_2k_2l_2} [h_1h_2a^2 + k_1k_2b^2 + l_1l_2c^2 + (k_2l_1 + l_2k_1)bcc\cos\alpha + \\ &+ (h_2l_1 + l_2h_1)acc\cos\beta + (h_2k_1 + k_2h_1)abc\cos\gamma] \end{aligned} \quad (5.9)$$

Таким образом, с использованием приведенных формул (5.1, 5.2, 5.5–5.9) величина Ψ_0 рассчитывается для случая кристалла произвольной сингонии.

Поскольку для выбранной пары рефлексов $(h_1k_1l_1)$, $(h_2k_2l_2)$ при фиксированной длине волны λ величина Ψ_0 зависит от параметров элементарной ячейки a , b , c , α , β , γ исследуемого кристалла, то они могут быть получены из соответствующего ряда величин Ψ_0 путем решения обратной задачи.

В случае кристалла триклинной сингонии указанная задача представляется в наиболее общем виде. Для ее решения, определения всех параметров a , b , c , α , β , γ кристаллической ячейки потребуется 6 независимых пар отражений, что позволит составить систему из 6 уравнений. Решая такую систему, мы получим искомые параметры. Стоит отметить, что для каждой пары отражений, полученные в эксперименте и используемые при решении обратной задачи данные, должны соответствовать одному объему изучаемого объекта. При реализации эксперимента это весьма трудоемкая задача,

поскольку необходимо учесть размеры проекции пучка на образце, которые определяются углами Брэгга используемых рефлексов и углом падения пучка на исследуемый кристалл. Однако при изучении кристаллов более высокой симметрии, например, моноклинной и ромбической сингоний, количество независимых искомых величин уменьшается до 4 и 3 соответственно, что существенно упрощает экспериментальную и расчетную задачу.

Рассмотрим случай, когда изучаемый кристалл относится к средней кристаллографической категории (тригональная, гексагональная, тетрагональная сингонии).

Как отмечалось ранее, при изучении кристаллов более высокой (чем триклинная) симметрии, величина Ψ_0 является функцией двух параметров элементарной ячейки при фиксированной длине волны λ и заданных hkl пары выбранных отражений. Важно, что длина волны λ определяет вероятность обнаружения схем с $\Psi_0 \ll 1^\circ$. Зависимость этой вероятности обратно пропорциональна величине λ применяемого излучения. Этот вопрос подробно обсуждается в работе [348].

В описанном выше случае для определения из эксперимента величин каждого из параметров элементарной ячейки потребуется 2 пары отражений, что позволит получить систему из двух уравнений для искомых параметров.

В настоящей работе был проведен анализ такой ситуации и описан метод компланарной квазимноговолновой дифракции. Особенность метода состоит в том, что геометрия дифракции при его применении ($\Psi_0 \ll 1^\circ$) близка к условиям многоволновой дифракции ($\Psi_0 = 0$). Таким образом, метод может применяться для двух целей – прецизионное определение параметров элементарной ячейки и изучение многоволнового взаимодействия в кристаллах.

Для определения параметров элементарной ячейки на основании формул (5.5 – 5.9) был получен алгоритм расчета углов Брэгга θ_{B1} , θ_{B2} и угла η между кристаллическими плоскостями с целью поиска пар отражений ($h_1k_1l_1$), ($h_2k_2l_2$) для реализации метода квазимноговолновой дифракции. Далее,

подставив полученные величины η и θ_{Bi} ($i = 1, 2$) в формулу (5.1) или (5.2), получим величину угла Ψ_0 .

Алгоритм применим для кристаллов высшей и средней кристаллографических категорий (кубических кристаллов и кристаллов средних сингоний):

$$\begin{aligned}\theta_{Bi} &= \arcsin\left(\frac{\lambda}{a}S\sqrt{u_{ii}}\right); \\ \eta &= \arccos\left(\frac{u_{12}}{\sqrt{u_{11}u_{22}}}\right); \end{aligned}\quad (5.10)$$

$$u_{ik} = A(h_i h_k + k_i k_k + g l_i l_k) + C[\zeta(k_i l_k + k_k l_i + l_i h_k + l_k h_i) + \rho(h_i k_k + h_k k_i)]; \\ i, k = 1, 2;$$

где S, A, C, ζ, ρ, g – параметры, задающие сингонию кристалла.

Кубическая: $S = 0.5; A = 1; C = 0 (\zeta = 0, \rho = 0); g = 1;$

Тетрагональная: $S = 0.5; A = 1; C = 0 (\zeta = 0, \rho = 0); g = (a/c)^2;$

Гексагональная: $S = \frac{1}{\sqrt{3}}; A = 1; C = 1; \zeta = 0; \rho = 0.5; g = 0.75\left(\frac{a}{c}\right)^2;$

Тригональная: $S = 0.5(1 - 3\cos^2\alpha + 2\cos^3\alpha)^{-1/2}; A = \sin^2\alpha;$

$C = \cos^2\alpha - \cos\alpha; \zeta = 1; \rho = 1; g = 1;$

где a, c, α – параметры элементарной ячейки.

Таким образом, методика расчета пар квазимноговолновых отражений для кристаллов кубической и средних сингоний с использованием алгоритма (5.10) и формул (5.1, 5.2) заключается в расчете угла Ψ_0 (углового расстояния между дифракционными максимумами отражений $h_1 k_1 l_1, h_2 k_2 l_2$) в зависимости от величины λ путем циклической перестановки индексов hkl .

При возможности изменения λ в результате вычислений получим множество пар (λ, Ψ_0) и, соответственно, пар отражений $(h_1 k_1 l_1, h_2 k_2 l_2)$. Фиксируя длину волны λ , мы имеем множество значений Ψ_0 и, соответственно, пар отражений $(h_1 k_1 l_1, h_2 k_2 l_2)$.

Поиск необходимых для эксперимента квазимноговолновых пар отражений ($h_1k_1l_1$, $h_2k_2l_2$) проводится путем минимизации величины углового расстояния Ψ_0 .

Особенности многоволновой дифракции в кристалле TeO_2

В настоящее время кристалл парателлурита (TeO_2) является широко используемым акустооптическим материалом при создании устройств для отклонения и модуляции лазерного пучка в узкополосных спектральных фильтрах и других оптоэлектронных приборах. Выращивается данный кристалл в виде крупных монокристаллов достаточно высокого качества (рис. 5.2).

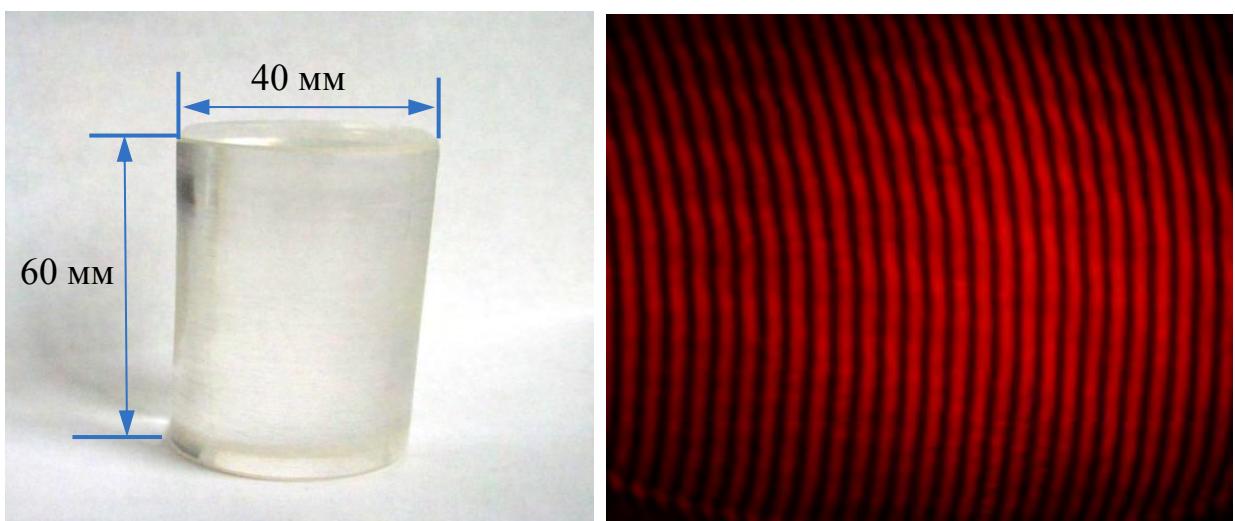


Рис. 5.2. Кристаллическая буля парателлурита TeO_2 (Институт кристаллографии РАН) с размерами (слева). Интерферограмма (справа) в кристалле TeO_2 по [110]. Оптическая однородность $\lambda/10$ ($\lambda = 500$ нм).

С помощью алгоритма расчета и поиска схем трехволной компланарной дифракции, описанного в предыдущем разделе, были проведены вычисления компланарных квазимноговолновых рефлексов для кристалла TeO_2 с использованием основного достаточно сильного отражения 220 (~ 40% от яркости Si 220). В результате были получены и выбраны комбинации отражений (110|557), (220|371), (220|464).

В таблице 5.1 показано, что для данных пар отражений имеет место трехволновая компланарная дифракция рентгеновских лучей соответствующих длин волн λ . В настоящей работе приведенные схемы были реализованы экспериментально на лабораторном источнике с длиной волны $\lambda[\text{MoK}\alpha_1] = 0,70932 \text{ \AA}$ (таблица 5.2) с целью изучения эффектов многоволнового взаимодействия в кристалле TeO_2 .

Таблица 5.1. Выбранные комбинации отражений $(110|557)$, $(220|371)$, $(220|464)$ и длины волн при точном выполнении условий трехволновой компланарной дифракции.

$(h_1k_1l_1)$			$(h_2k_2l_2)$			$\theta_B(h_1k_1l_1)$, °	$\theta_B(h_2k_2l_2)$, °	λ , Å
2	2	0	3	7	1	12.050	34.337	0.71006
2	2	0	4	6	4	12.045	34.318	0.70979
1	1	0	5	5	7	5.995	38.020	0.71044

Таблица 5.2. Схемы $(110|557)$, $(220|371)$, $(220|464)$ трехволновой дифракции при фиксированной длине волны $\lambda[\text{MoK}\alpha_1]$.

$(h_1k_1l_1)$			$(h_2k_2l_2)$			$\theta_B(h_1k_1l_1)$, °	$\theta_B(h_2k_2l_2)$, °	$\lambda[\text{MoK}\alpha_1]$, Å
2	2	0	3	7	1	12.037	34.296	0.70932
2	2	0	4	6	4	12.037	34.292	0.70932
1	1	0	5	5	7	5.985	37.949	0.70932

Используемые в таблицах 5.1, 5.2 обозначения, $\theta_B(h_1k_1l_1)$, $\theta_B(h_2k_2l_2)$ – расчетные углы Брэгга отражений $(h_1k_1l_1)$, $(h_2k_2l_2)$, соответственно. Из указанных таблиц видно, что углы Брэгга рефлексов несколько отличаются в случае многоволновой дифракции и при $\lambda[\text{MoK}\alpha_1]$.

В эксперименте указанное отличие в углах необходимо компенсировать установкой исследуемого кристалла в положение, соответствующее трехволновой дифракции. Такая ситуация показана на рис. 5.3 для фиксированной длины волны излучения в компланарной геометрии дифракции вблизи трехволнового положения ($\Psi_0 \ll 1^\circ$).

Из рис. 5.3 видно, что компенсация угла может осуществляться путем азимутальной угловой отстройки ($\Delta\phi$) при выводе кристалла в многоволновое положение, отмеченное точкой М.

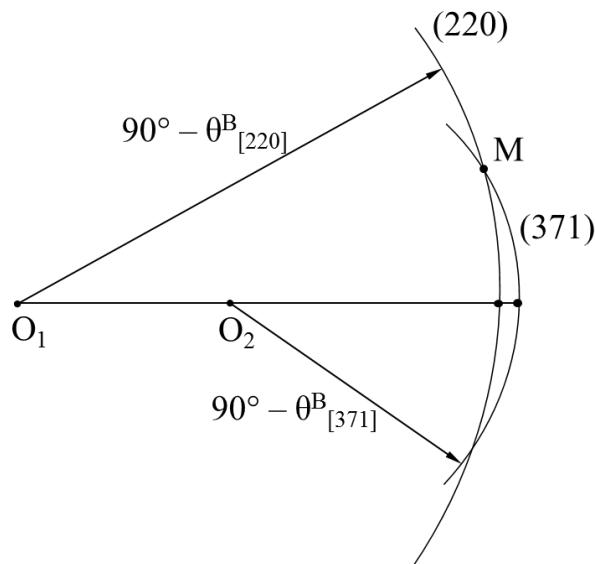


Рис. 5.3. Стереографическая проекция для случая трехволновой компланарной схемы дифракции (220, 371) кристалла TeO_2 в геометрии Брэгга; O_1 , O_2 – выходы нормалей плоскостей (220), (371), а $\theta^B_{[220]}$ и $\theta^B_{[371]}$ соответствующие им брэгговские углы.

В соответствии с расчетами многоволновых схем рефлексов были изготовлены исследуемые образцы – кристаллические пластины с заданной ориентацией и симметричным дифракционным отражением 220.

На рис. 5.4 приведена схема эксперимента по изучению многоволновых взаимодействий в кристалле TeO_2 . Излучение от Мо анода рентгеновской

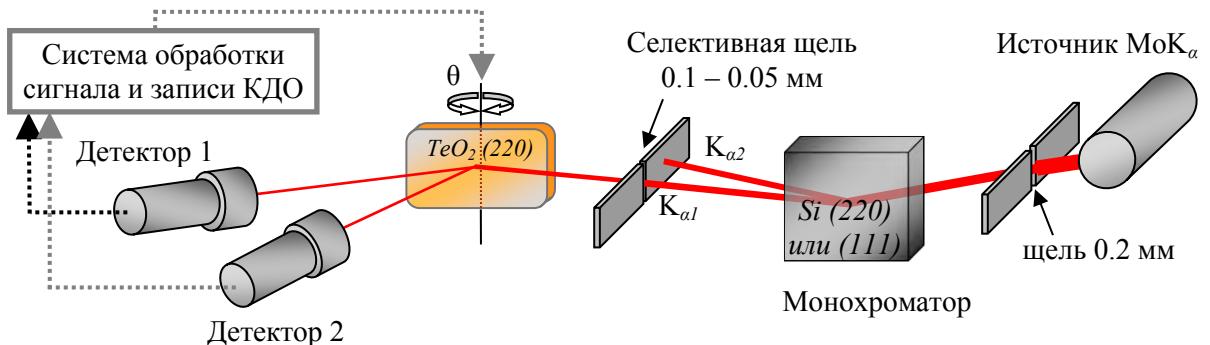


Рис. 5.4. Схема эксперимента для исследования эффектов трехволновой дифракции в кристалле TeO_2 . Представлен случай компланарной схемы с использованием отражения 220 в геометрии Брэгга (соответствующий, в частности, геометрии дифракции, изображенной на рис. 5.3).

трубки коллимируется монохроматором Si 220 и щелью, и падает на образец. Коллиматор перед образцом служит селективной щелью, обеспечивающей выбор характеристической линии $K_{\alpha 1}$ или $K_{\alpha 2}$ в спектре источника (рентгеновской трубы).

В условиях трехволновой дифракции от кристалла TeO_2 отражаются два пучка, регистрируемые параллельно двумя детекторами. При этом осуществляется запись зависимости интенсивности от малого угла θ при качании кристалла в плоскости дифракции.

В такой геометрии можно задать любую степень отстройки от многоволнового положения вращением образца относительно нормали к плоскостям (110), т.е. вокруг вектора обратной решетки первого отражения (220) исследуемого кристалла. В двухкристальной схеме это азимутальный поворот на некоторый угол ϕ (в зависимости от схемы), что позволяет задать любую степень отстройки от многоволновой ориентации или, наоборот, ввести кристалл в многоволновое положение, компенсируя таким образом азимутальную угловую отстройку $\Delta\phi$, указанную ранее.

Важно отметить, что слабодисперсионное рассеяние в схеме на рис. 5.4 можно обеспечить только для первого отражения TeO_2 220 (монохроматор Si 220 или 111), а для второго – угловая зависимость интенсивности будет значительно уширена вследствие наличия дисперсии, при этом интенсивность второго рефлекса для выбранных трехволновых схем (110|557), (220|371), (220|464) в несколько десятков раз меньше первого. Также, относительная ширина спектральной линии характеристического излучения, более чем в десять раз превышает угловую область динамической дифракции в монокристалле. Именно слабый второй рефлекс в выбранных схемах позволяет регистрировать многоволновое взаимодействие и определять фазы структурных амплитуд вовлеченных в дифракцию отражений [340].

Отражение второго рефлекса реализуется вследствие когерентной суперпозиции падающей и первой отраженной волн, а разность фаз между

ними принимает значения от 0 до π при прохождении области динамической дифракции первого отражения. Благодаря этому профиль дифракционного пика второго рефлекса в области полного первого отражения имеет дисперсионный характер.

Здесь можно отметить, что аналогичная ситуация возникает в методе стоячих рентгеновских волн, однако, в описанном случае слабое отражение второго рефлекса играет роль вторичного излучения [349].

Один из эффектов многоволнового взаимодействия в монокристаллах в условиях дифракции – явление виртуального рассеяния. Виртуальное рассеяние реализуется в угловой области слабого отражения первого (сильного) рефлекса.

Традиционно многоволновая дифракция, в том числе и указанный эффект [350, 351], экспериментально изучалась с использованием низкоразрешающей схемы Реннингера [352], позволяющей получить зависимость интегральной по полярному углу интенсивности от азимутального угла.

Теория виртуального рассеяния [353] состоит в том, что дифракционное отражение второй волны остается двухволновым, но параметры дифракции изменяются за счет слабого (виртуального) рассеяния на первой волне. Для наблюдения эффекта важно, чтобы первый рефлекс был достаточно сильным, а второй, наоборот, слабым или даже запрещенным [344].

В настоящей работе в выбранных трехволновых комбинациях (110|557), (220|371), (220|464) в кристалле TeO_2 участвовали достаточно сильные отражения 220, 110 и сравнительно слабые рефлексы 371, 464, 557.

Как указывалось ранее, для реализации трехволновой дифракции с использованием этих отражений и $\lambda[\text{MoK}_{\alpha 1}]$ требовалось вывести кристалл из точного компланарного положения в многоволновое.

Далее на графиках (рис. 5.5 – 5.7) показаны экспериментальные КДО, полученные в результате исследования трехволновой дифракции с использованием выбранных схем (220|371) (рис. 5.5 *a–в*), (220|464) (рис. 5.6 *a–г*), (110|557) (рис. 5.7 *a–в*) в кристалле TeO_2 .

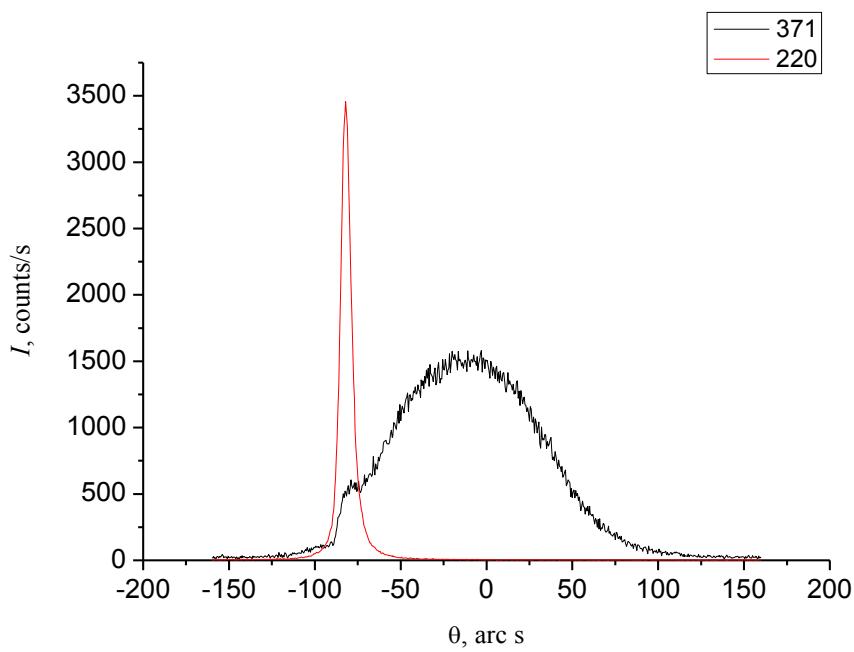


Рис. 5.5а Кривые дифракционного отражения рефлексов (220, 371) при азимутальной отстройке 2.00° от компланарности.

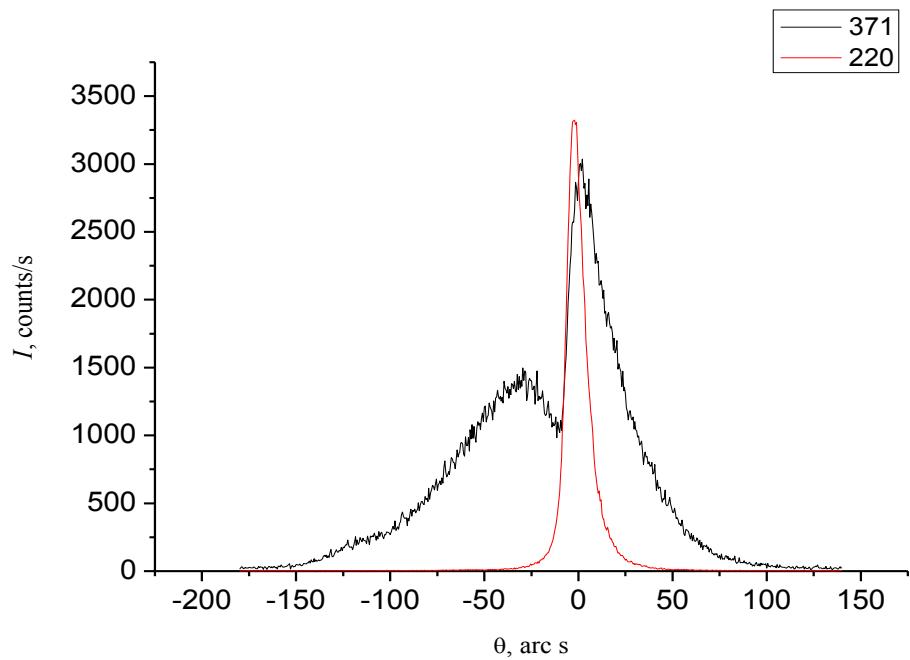


Рис. 5.5б Кривые дифракционного отражения рефлексов (220, 371) при азимутальной отстройке 2.83° от компланарности.

В экспериментах регистрировались кривые дифракционного отражения сильного и слабого отражений при различной азимутальной отстройке. Для наглядности кривые 220 приведены в масштабе 1:3 по интенсивности.

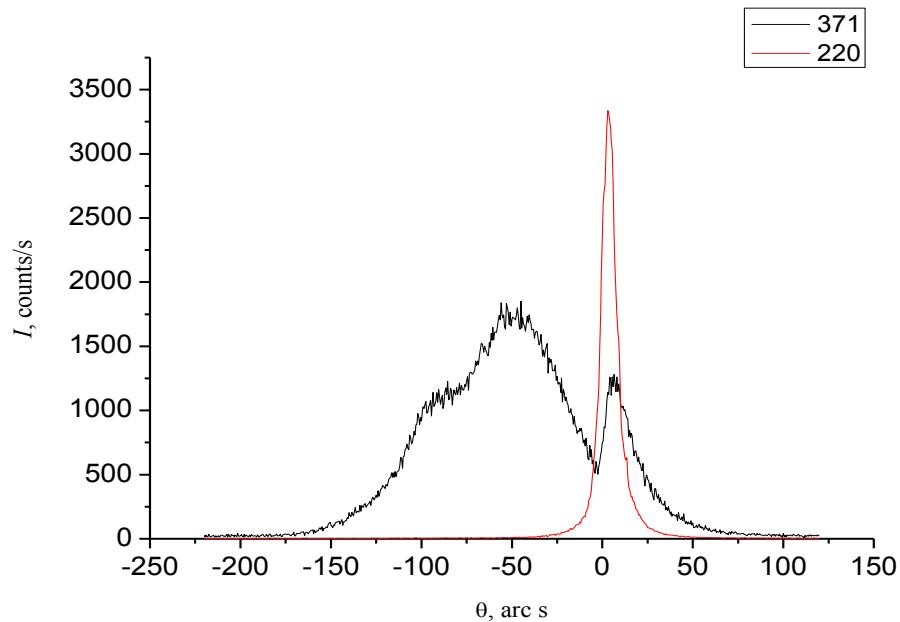


Рис. 5.5 в Кривые дифракционного отражения рефлексов (220, 371) при азимутальной отстройке 3.00° от компланарности.

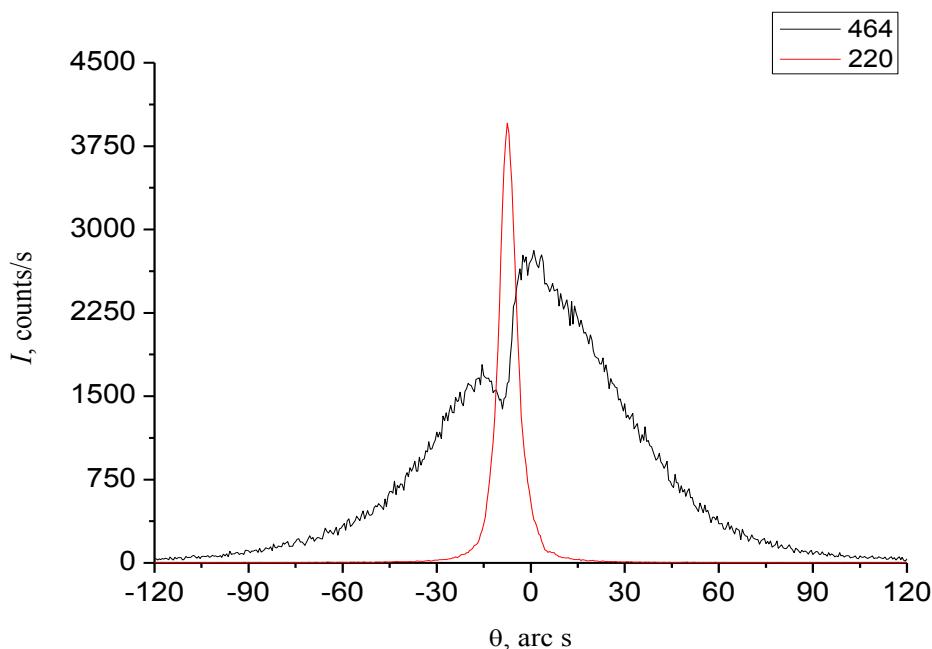


Рис. 5.6 а Кривые дифракционного отражения рефлексов (220, 464) при азимутальной отстройке 2.34° от компланарности.

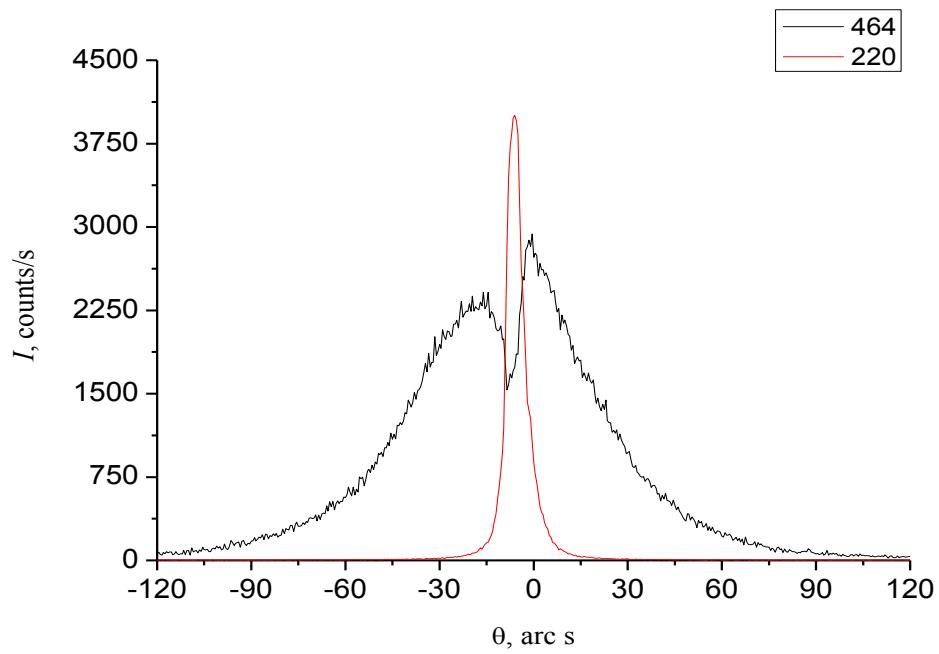


Рис. 5.6 б Кривые дифракционного отражения рефлексов (220, 464) при азимутальной отстройке 2.70° от компланарности.

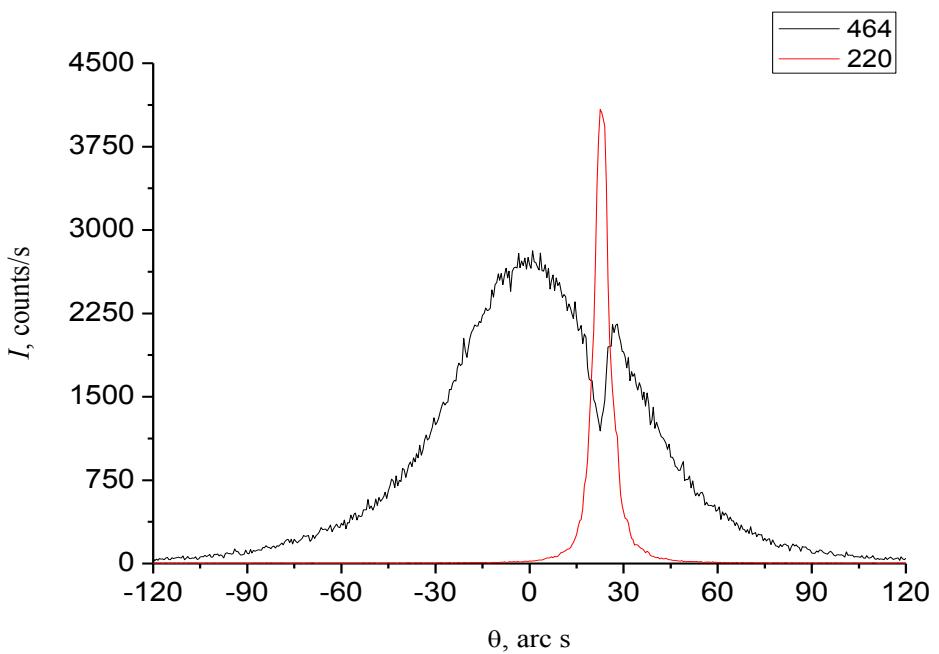


Рис. 5.6 в Кривые дифракционного отражения рефлексов (220, 464) при азимутальной отстройке 2.88° от компланарности.

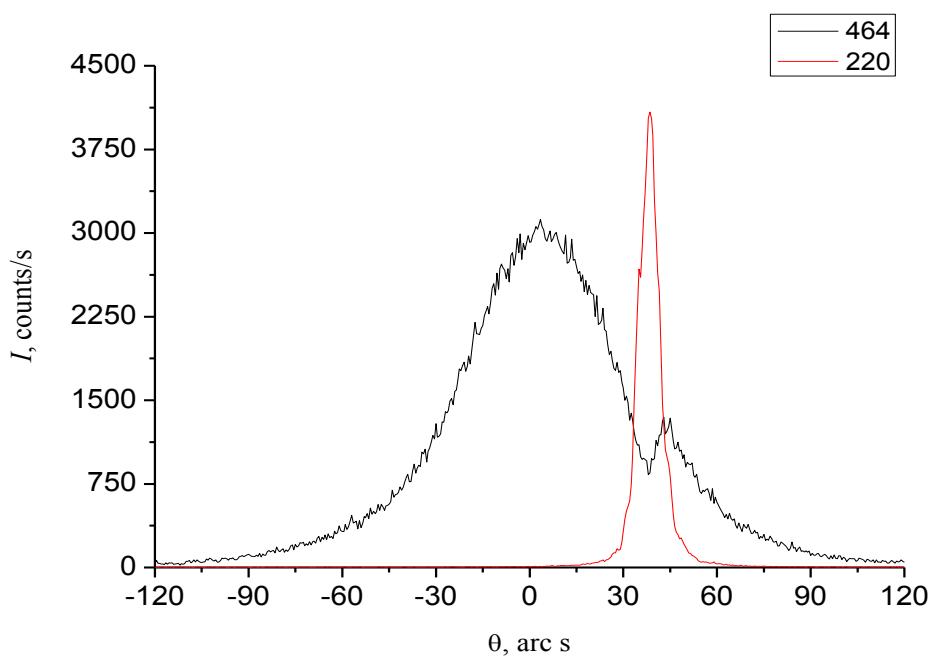


Рис. 5.6 г Кривые дифракционного отражения рефлексов (220, 464) при азимутальной отстройке 3.00° от компланарности.

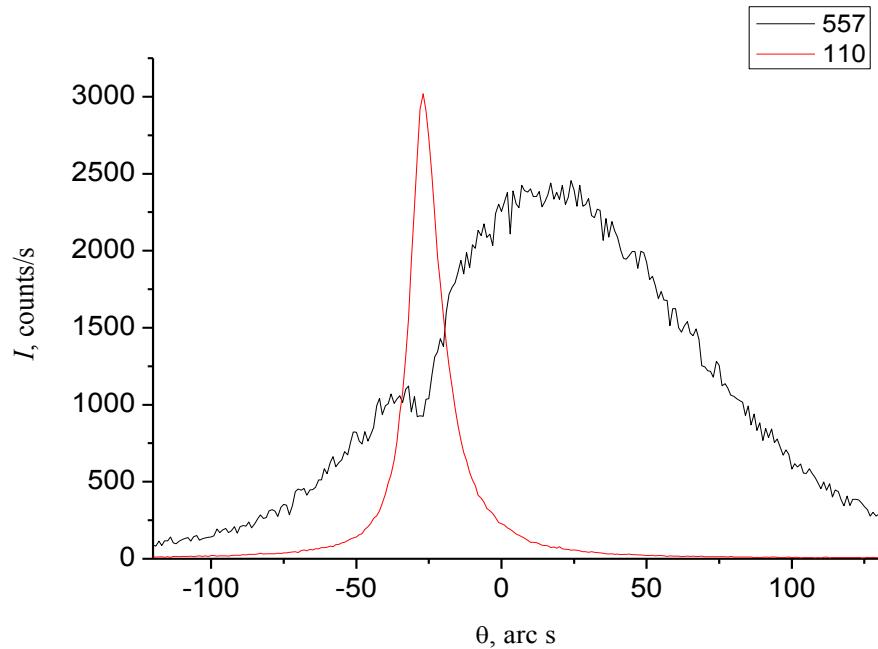


Рис. 5.7 а Кривые дифракционного отражения рефлексов (110, 557) при азимутальной отстройке 1.84° от компланарности.

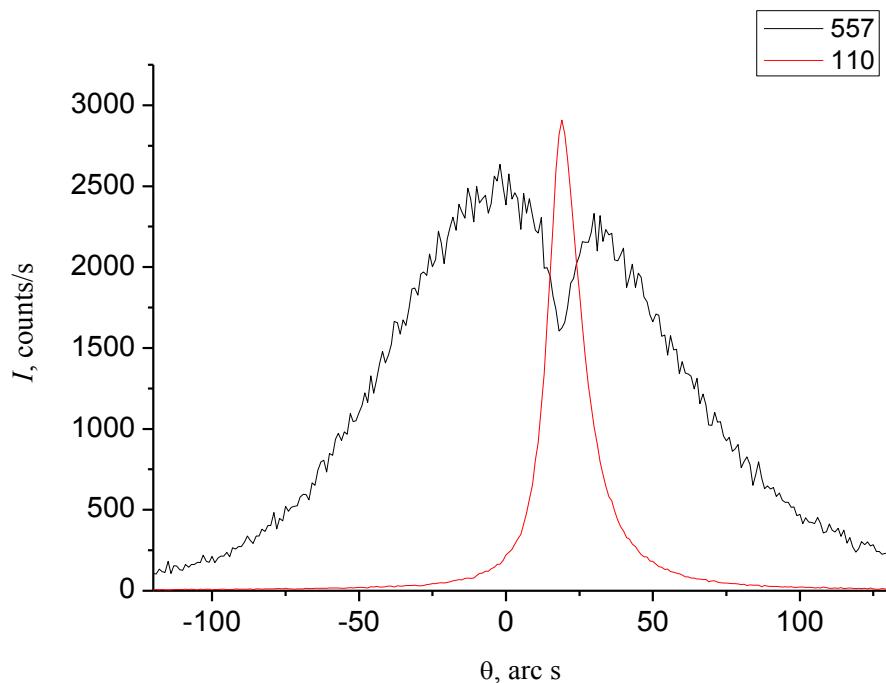


Рис. 5.7 б Кривые дифракционного отражения рефлексов $(110, 557)$ при азимутальной отстройке 2.66° от компланарности.

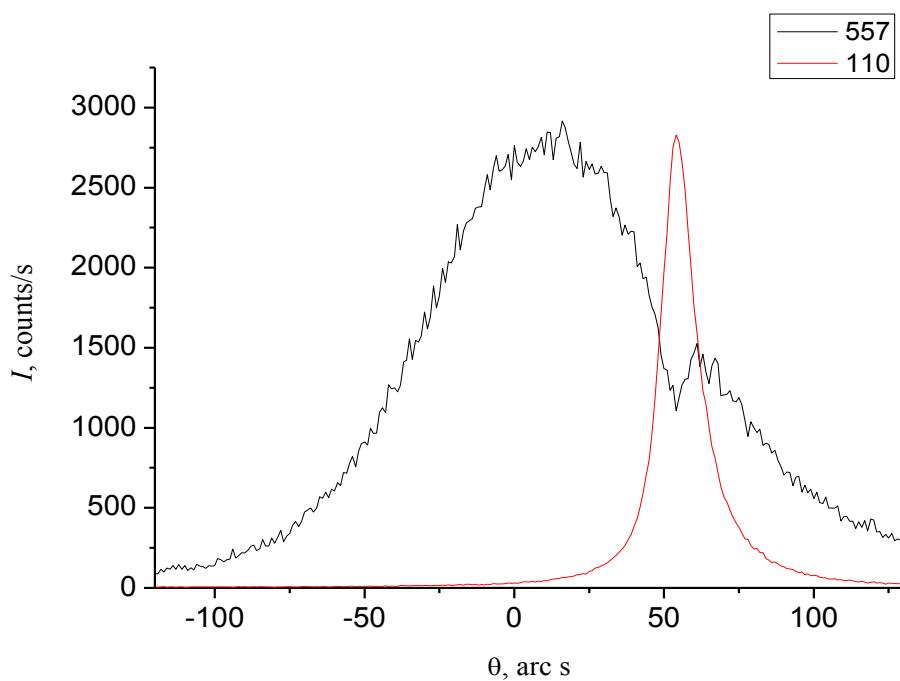


Рис. 5.7 в Кривые дифракционного отражения рефлексов $(110, 557)$ при азимутальной отстройке 2.84° от компланарности.

Теория и компьютерное моделирование

С целью дальнейшего обсуждения экспериментальных результатов рассмотрим теорию и проведем компьютерное моделирование угловых зависимостей дифракционных отражений в двухкристальной схеме (см. рис. 5.4).

Парателлурит – кристалл тетрагональной сингонии, в элементарной ячейке содержится 4 молекулы. Параметры элементарной ячейки для вычисления параметров дифракции составляют: $a = b = 4,810 \text{ \AA}$, $c = 7,613 \text{ \AA}$ [354]. Данный кристалл также изучался в [355], где приведены весьма близкие величины параметров ячейки.

Трехволновая компланарная дифракция в TeO_2 для случая (220, 371) реализуется при $\lambda = 0,71006 \text{ \AA}$ (см. таблицы 5.1, 5.2), что отличается от длины волны $\lambda[\text{MoK}_{\alpha 1}] = 0,70932 \text{ \AA}$. Поскольку в эксперименте используется характеристическая линия рентгеновской трубки и длину волны менять нельзя, то позиционирование кристалла соответственно положению многоволновой дифракции осуществлялось путем малого поворота по азимутальному углу, что позволяло обеспечить любую «степень расстройки» многоволновой схемы. В теории полагается, что компланарная геометрия сохраняется, а отстройка от положения многоволновой дифракции осуществляется при изменении длины волны излучения. Допуская малые азимутальные углы и, соответственно, малые изменения длины волны, различие в таких подходах незначительное.

Таким образом, в рамках вышеуказанного подхода, в компланарной геометрии интенсивность рефлексов не зависит от азимутального поворота (угла θ_1), но зависит от угла θ_2 , угла сканирования при записи дифракционных кривых (угол θ на рис. 5.4), и изменения длины волны $\Delta\lambda$. В этой связи, введем параметр $\theta_3 = -\Delta\lambda/\lambda_0$.

При теоретическом анализе кривых отражения в двухкристальной дифрактометрии, главным образом, применяется плосковолновой подход. Падающий рентгеновский пучок представляется набором некогерентных

плоских волн, определяемых тремя параметрами (θ_1 , θ_2 , θ_3). Задача трехволновой дифракции в таком случае решается для каждой из набора плоских волн, и затем проводится интегрирование интенсивностей дифрагированных волн по трем указанным параметрам с необходимым весом и в соответствующих схеме эксперимента пределах. Поскольку при малых величинах угла θ_1 интенсивности рефлексов от него не зависят, а пределы задаются входной щелью, то интегрирование по θ_1 сводится к умножению на постоянный множитель.

Интегрирование по θ_3 проводится с весовой функцией, характеризующей спектр линии характеристического излучения рентгеновского источника. При проведении расчетов для этой цели использовалась функция Лоренца с полушириной 340 мкрад и с центром в точке $\Delta\theta_3$, нулевое значение которого соответствует λ_0 . Пределы интегрирования по θ_2 задаются полосой монохроматора – его областью полного отражения.

Были проведены расчеты дифракционных зависимостей интенсивности рефлексов от угловой отстройки образца $\Delta\theta_2$ относительно монохроматора. При изменении величины $\Delta\theta_3$ были получены зависимости, демонстрирующие разделение трехволновой дифракции на два независимых двухволновых случая.

Построение на диаграмме Дю-Монда [341], приведенной на рис. 5.8, весьма наглядно для определения пределов интегрирования и характера подынтегральной функции. Условия двухволновой дифракции выполняются в пределах полосы параллельно линии $\theta_2 = -\theta_3 \operatorname{tg}(\theta_B)$, где θ_B – угол Брэгга; ее ширина пропорциональна параметру дифракции, равному Фурье компоненте поляризуемости кристалла на данном векторе обратной решетки. В экспериментальной схеме монохроматором служил симметричный монохроматор Si 220 ($\theta_B = 10.645^\circ$). Полуширина отражения составляет 10 мкрад. Углы Брэгга θ_B для отражений 220 и 371 в TeO_2 равны 12.037° и 34.292° , соответственно. Рефлекс 220 тоже симметричный, а для рефлекса

371 угол между поверхностью кристалла и рентгеновским пучком составляет 56.547° .

На рис. 5.8 представлена диаграмма, аналогичная диаграмме Дю-Монда, в координатах параметров (θ_3, θ_2) . Серая полоса – область полного отражения монохроматора Si 220, вдоль которой проводится интегрирование. На рисунке также отмечены границы областей полного отражения для отражений 220 (широкая) и 371 (узкая) кристалла TeO_2 .

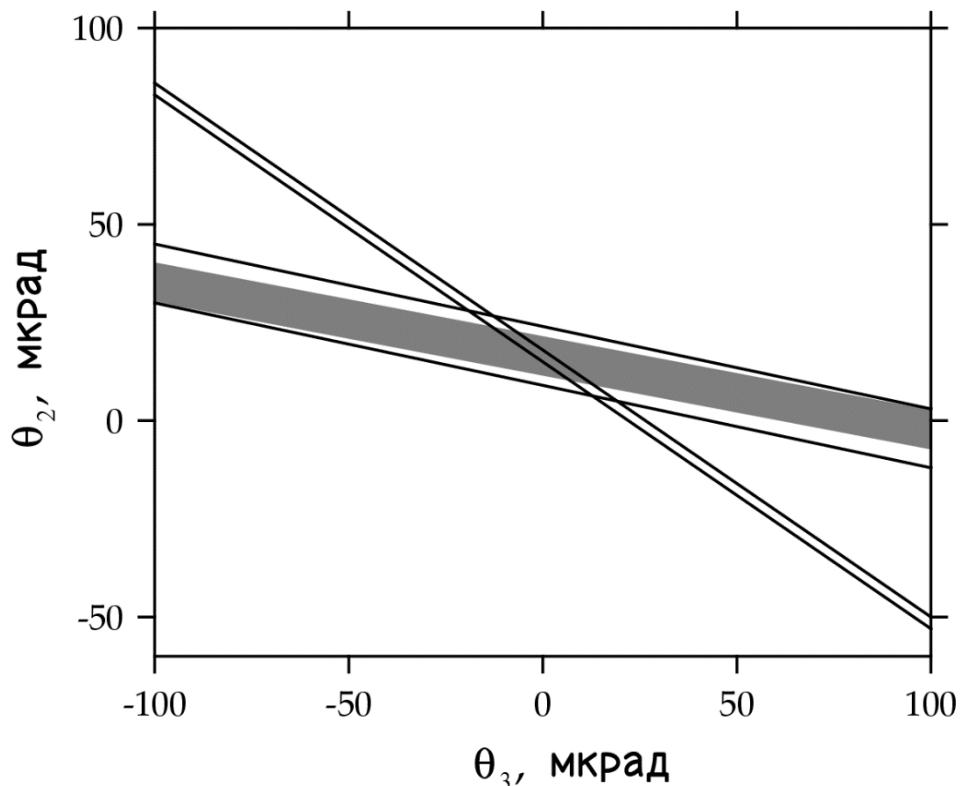


Рис.5.8. Диаграмма, демонстрирующая взаимное положение двухволновых областей полного отражения рефлексов 220 (широкая) и 371 (узкая) в TeO_2 на плоскости параметров (θ_3, θ_2) (относительная энергия излучения, полярный угол). Серая полоса отвечает сильному отражению от монохроматора.

Из рис. 5.8 видно, что при угле $\Delta\theta_2$ в центре полосы рефлекса TeO_2 220, интегрирование почти полностью проводится внутри полосы сильного отражения 220, а при изменении параметра быстро из нее выходит. При этом область интегрирования пересекается с полосой слабого рефлекса 371 лишь на небольшом участке при всех $\Delta\theta_2$. Важно, что в такой двухкристальной

схеме кривую интенсивности рефлекса можно получить только для первого отражения, поскольку ее угол Брэгга близок к углу Брэгга монохроматора.

Однако для второго отражения профиль кривой определяется интегральной по θ_2 интенсивностью, значение которой пропорционально интенсивности падающего излучения при θ_3 в месте пересечения полос монохроматора и второго рефлекса. Профиль пика второго рефлекса при этом будет иметь вид функции, которой аппроксимируется спектр излучения, в нашем случае это функция Лоренца. Это реализуется в области кривой второго рефлекса, где вклад многоволнового взаимодействия незначителен.

В настоящей работе стандартная схема, описанная в [356] для падающей плоской волны, применялась в расчетах трехволной дифракции в исследуемом кристалле TeO_2 . Для этого вычислялась двумерная карта зависимости от θ_2 и θ_3 , при заданном значении $\Delta\theta_3$, а затем проводилось суммирование по полосе, вырезаемой монохроматором при различных значениях угловой расстройки $\Delta\theta_2$. Результаты расчета показаны на рис. 5.9 и 5.10a. Все углы измеряются в микrorадианах.

На графиках рис. 5.10a интенсивность сильного пучка (узкий пик) нормирована на единицу, а интенсивность слабого пучка (широкий пик) умножена на 50, чтобы привести кривые к одному интервалу значений. Вследствие малой разности углов Брэгга для монохроматора и первого рефлекса, пик отражения для него незначительно уширен. Область отражения для второго рефлекса 371, как уже отмечалось выше, фактически описывает форму спектральной линии характеристического излучения. Угловое расстояние между центрами двух пиков (первый минус второй) определяется формулой:

$$\Delta\theta_{2d} = \Delta\theta_3(\operatorname{tg}\theta_{B1} - \operatorname{tg}\theta_{B2}). \quad (5.11)$$

Положение пиков показано с учетом сдвига за счет преломления в кристалле.

Как следует из расчетов, весьма заметное изменение интенсивности отражения слабого рефлекса происходит далеко за пределами области

трехволнового взаимодействия, то есть там, где отражение сильного рефлекса уже очень мало. На картах двумерной зависимости хорошо видно, что в этих областях отражение практически двухволновое, но полоса полного отражения имеет ширину больше, чем в двухволновом случае, с одной стороны и меньше с другой стороны. Это прямо указывает на изменение параметра двухволновой дифракции из-за виртуального рассеяния на первом рефлексе.

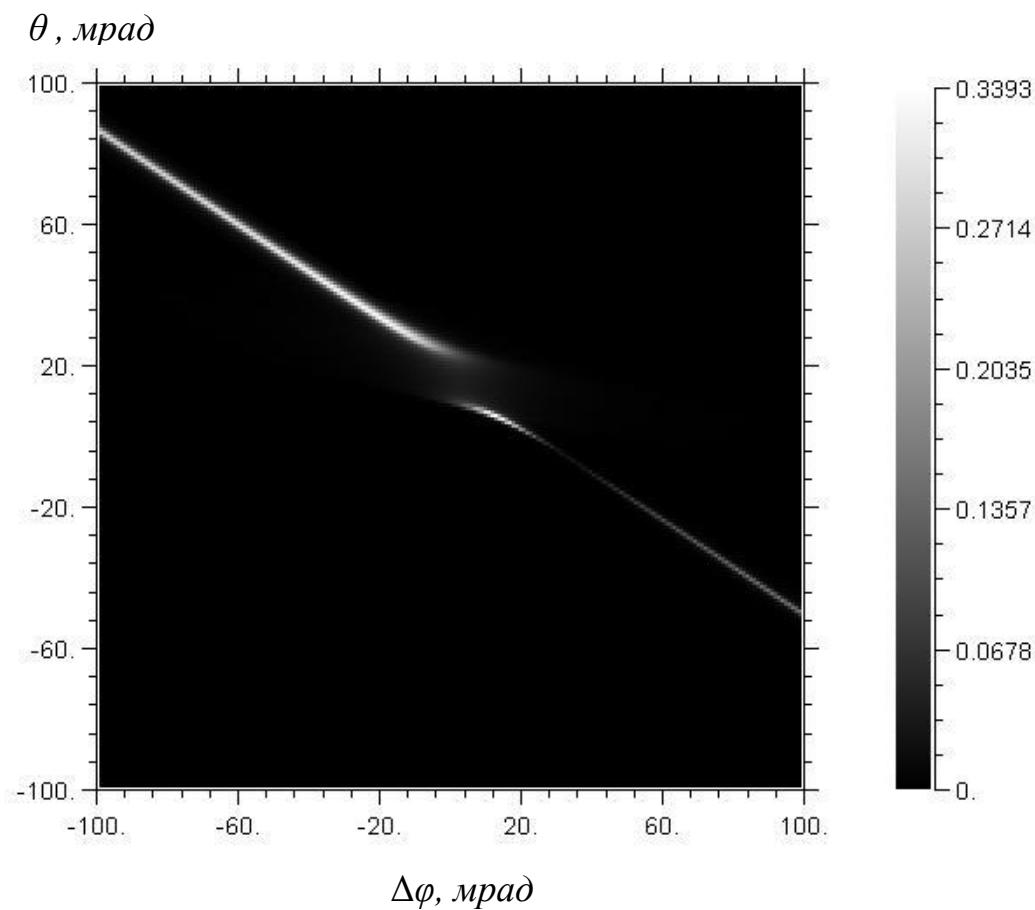


Рис. 5.9. Диаграмма, показывающая распределение интенсивности отдельно по полосе отражения 371 (полярный угол θ ; относительная энергия фотонов, соответствующая азимутальной отстройке $\Delta\phi$).

Рассмотрим простейший случай трехволновой дифракции плоской монохроматической волны в компланарной геометрии. Пусть падающая волна поляризована в направлении нормали к плоскости рассеяния. Комплексные амплитуды трех волн E_0 , E_1 и E_2 в этом случае находятся из следующей системы уравнений:

$$\begin{aligned}\chi_{00}E_0 + \chi_{01}E_1 + \chi_{02}E_2 &= \gamma_0 \varepsilon E_0 \\ \chi_{10}E_0 + (\chi_{11} - \alpha_1)E_1 + \chi_{12}E_2 &= \gamma_1 \varepsilon E_1 \\ \chi_{20}E_0 + \chi_{21}E_1 + (\chi_{22} - \alpha_2)E_2 &= \gamma_2 \varepsilon E_2\end{aligned}\tag{5.12}$$

где χ_{mn} – компонента Фурье комплексной поляризуемости кристалла на векторе обратной решетки $\mathbf{h}_m - \mathbf{h}_n$; α_1 и α_2 – параметры отклонения от выполнения условия Брэгга для двух дифрагированных волн; γ_0 , γ_1 и γ_2 – косинусы углов между внутренней нормалью к поверхности кристалла и направлениями трех волн; ε – комплексная дисперсионная поправка к волновым векторам, учитывающая преломление волн на границе кристалла и поглощение при прохождении в глубь кристалла.

При тех значениях параметров, когда отражение в волну 2 достаточно сильное, но отражение в волну 1 уже довольно слабое, мы имеем неравенство $\alpha_1 \gg \chi_{mn}, \varepsilon$. Тогда очевидно, что второе уравнение решается только при очень малом значении амплитуды E_1 , которая приближенно равна:

$$E_1 = \frac{\chi_{10}E_0 + \chi_{12}E_2}{\alpha_1}\tag{5.13}$$

Подставляя это значение в (5.12), получаем систему из двух уравнений для двухвольновой дифракции в виде:

$$\begin{aligned}g_{00}E_0 + g_{02}E_2 &= \gamma_0 \varepsilon E_0 \\ g_{20}E_0 + (g_{22} - \alpha_2)E_2 &= \gamma_2 \varepsilon E_2\end{aligned}\tag{5.14}$$

где

$$\begin{aligned}g_{00} &= \chi_{00} + \frac{\chi_{01}\chi_{10}}{\alpha_1}, & g_{02} &= \chi_{02} + \frac{\chi_{01}\chi_{12}}{\alpha_1} \\ g_{20} &= \chi_{20} + \frac{\chi_{21}\chi_{10}}{\alpha_1}, & g_{22} &= \chi_{22} + \frac{\chi_{21}\chi_{12}}{\alpha_1}\end{aligned}\tag{5.15}$$

Уравнения двухвольновой дифракции можно решить точно. Известно, что интегральная интенсивность пропорциональна величине $|g_{02}g_{20}|^{1/2}$. С учетом формул (5.15) можно легко сделать вывод, что интегральная интенсивность зависит от триплетного фазового инварианта $\phi_{01} + \phi_{12} - \phi_{02}$, где ϕ_{mn} обозначает фазу комплексной величины χ_{mn} . Но кроме этого, она зависит от знака параметра отклонения от условия Брэгга. Именно поэтому

интегральная интенсивность возрастает с одной стороны и уменьшается с другой по сравнению с чистым двухволновым случаем.

Используя известные геометрические формулы [357] и указанные выше параметры, легко вычислить, что в условиях трехволновой дифракции для Mo K_{α1} излучения второй пучок 371 должен составлять угол $\theta_g = 56,55^\circ$ с поверхностью кристалла и угол $\varphi_g = 1,14^\circ$ с плоскостью рассеяния для первого отражения 220. Азимутальный угол $\Delta\theta_1 = 2,67^\circ$ поворота кристалла из компланарной геометрии в многоволновую позицию вычисляется по формуле:

$$\operatorname{tg}(\Delta\theta_1) = \sin(\varphi_g)/[\cos(\theta_{B1}) - \cos(\theta_g)\cos(\varphi_g)]. \quad (5.16)$$

С другой стороны, применяя формулу (1), при $\Delta\theta_3 = 1043$ мкрад для разности углового положения двух пиков в компланарном случае получаем оценку $\Delta\theta_{2d} = -488$ мкрад, которая практически совпадает с экспериментальными данными.

Сравнение экспериментальных результатов с теорией

При прохождении многоволновой области дифракции путем изменения азимутальной угловой отстройки была получена серия экспериментальных дифракционных зависимостей пары рефлексов (220, 371) исследуемого кристалла TeO₂, представленная на рис. 5.10б. Кривая, показанная на верхнем графике, отвечает положению кристалла близкому к компланарности. Регистрация каждой следующей кривой проводилась с шагом $0,17^\circ$ по шкале азимутальной угловой отстройки. Интенсивность на графиках для отражения 371 умножена на некоторый коэффициент, чтобы их было сравнительно хорошо видно на одном рисунке с графиками для яркого рефлекса 220, интенсивность которого нормирована на единицу. Абсолютное отношение интенсивностей рефлексов в эксперименте не измерялось, однако, нормировка для всех графиков одна и та же.

Несмотря на то, что коллимация по азимутальному углу специально не проводилась, и в измерениях была реализована не строго компланарная

геометрия, главные особенности дифракционных кривых совпадают. В этом легко убедиться при сравнении рисунков 5.10 *а* и *б*. Отметим, что коллимация по азимутальному углу в описанной схеме определяется лишь теми щелями, которые всегда присутствуют в эксперименте. Вероятно, вследствие этого профиль кривой отражения 371 не в точности совпадает с кривой лоренцевой функции, а ее ширина немного больше теоретической.

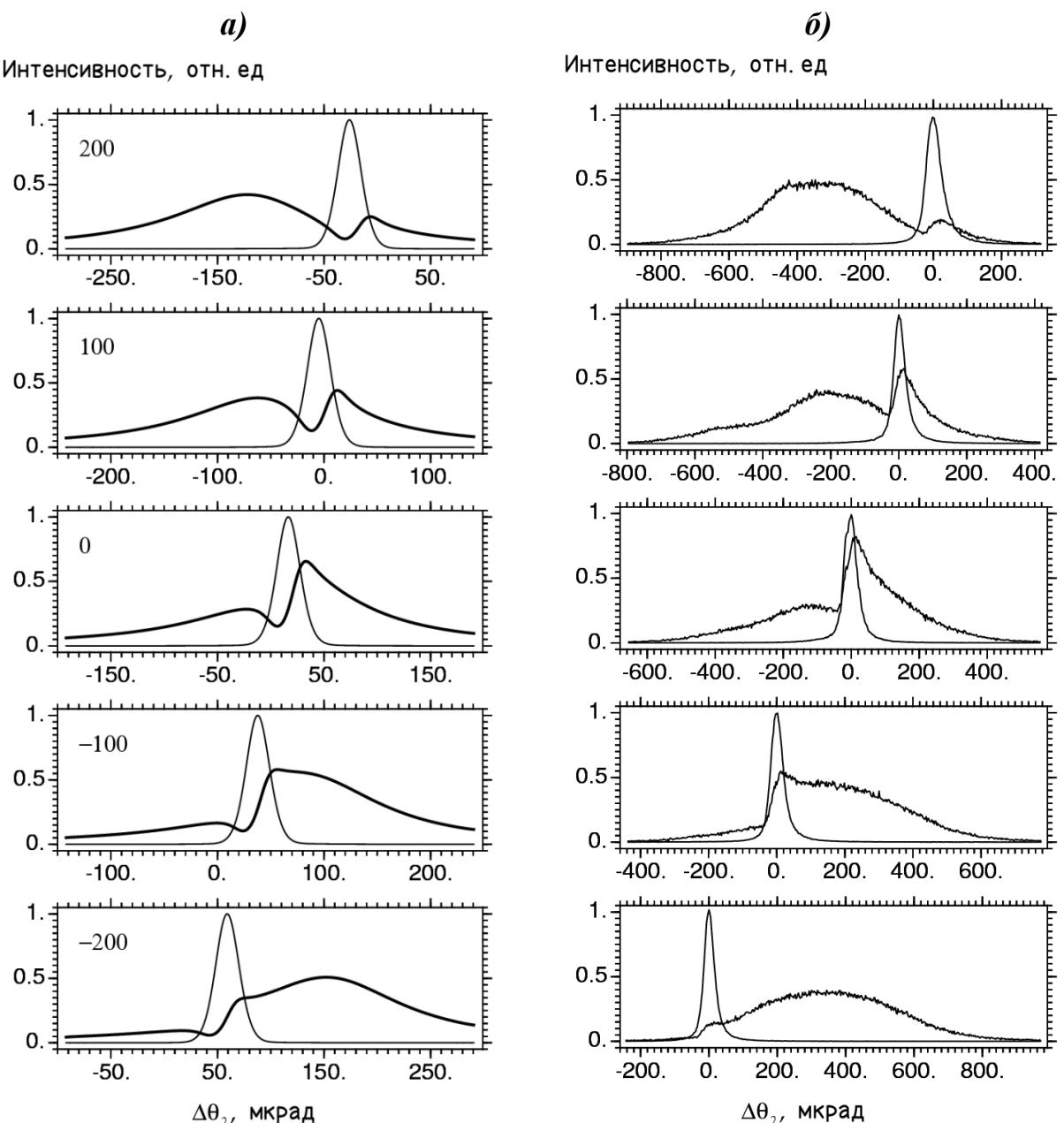


Рис. 5.10. Результаты расчета (*а*) и экспериментальные результаты по измерению (*б*) кривых дифракционного отражения многоволновых рефлексов при изменении полярного угла при различных значениях азимутального угла. Шаг 10 угловых минут.

Также, на верхних зависимостях видны искажения (артефакты) в виде дополнительных изгибов кривой отражения 371. Это может быть связано с тем, что исследуемый кристалл TeO_2 не был в достаточной степени совершенным. При этом поверхность кристалла была подвергнута химическому травлению на существенную глубину перед проведением экспериментов. КДО до травления демонстрировали значительное увеличение полуширины кривой даже для сильного отражения 220. Интересно, что даже в случае непротравленного образца, многоволновое взаимодействие было хорошо заметно. Однако сравнить указанные результаты с теорией не представляется возможным, поскольку теория для искаженного кристалла еще не развита и, кроме того, характер деформации кристалла был неизвестен.

Таким образом, изучение многоволновых эффектов в технически важных кристаллах представляется весьма перспективным подходом к исследованию их структуры и степени совершенства. Это позволит получить более полную структурную информацию в сравнении с двухволновым случаем дифракции.

Далее будут представлены исследования многоволновой дифракции в кристалле TeO_2 в дефектной области образца, и наглядно продемонстрировано, что многоволновые кривые в значительной степени более чувствительны к несовершенствам кристаллической структуры в сравнении с двухволновыми кривыми.

Исследование дефектной структуры кристалла парамеллурита

С применением методов многоволновой дифракции и двухкристальной (двухволновой) дифрактометрии проводились эксперименты по пространственному исследованию локальной дефектной структуры кристалла TeO_2 с использованием полуавтоматического рентгеновского спектрометра АССВ. С точки зрения двухкристального эксперимента

конструкция спектрометра АССВ аналогична конструкции трехкристального спектрометра ТРС (см. главу 2).

На рис. 5.11 схематично показаны геометрия и направление пространственного сканирования образца (сканирование вдоль поверхности). Проводилась регистрация двухволновых и многоволновых КДО в различных точках вдоль поверхности исследуемого образца, расположенных на одной прямой по диаметру кристаллической були, составляющей угол 7° с направлением $[1\bar{1}0]$.

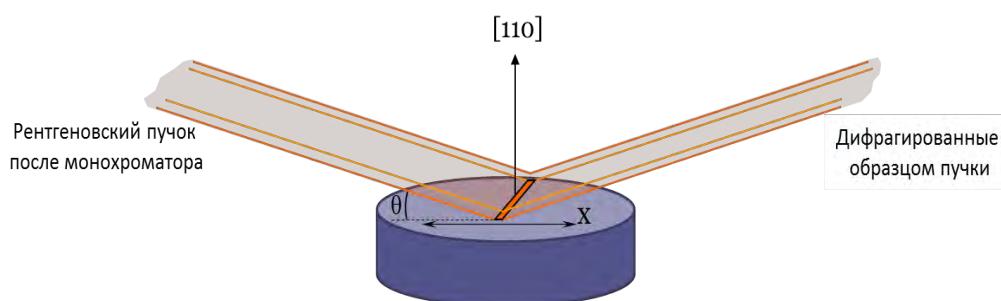


Рис. 5.11. Схема дифракции рентгеновского пучка на кристалле парамеллурита для изучения дефектной структуры.

В данном направлении проведено локальное исследование структуры кристалла TeO_2 с целью изучения распределения неоднородности кристаллической решетки вдоль фронта кристаллизации. Сканирование включало в себя 18 точек, с шагом 0,5 см (рис. 5.12) поверхности исследуемого образца.

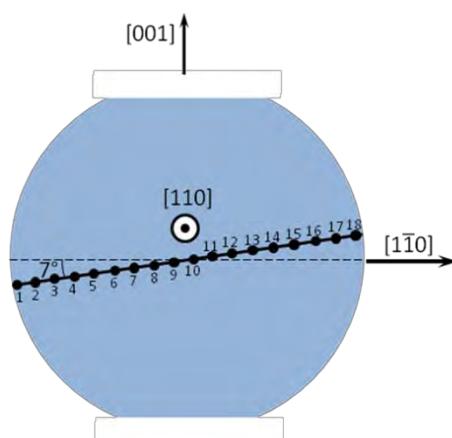


Рис. 5.12. Положение рентгеновского пучка и направление сканирования поверхности кристаллической пластины парамеллурита и направления кристаллографических осей.

В экспериментах использовалась одна из выбранных (см. таблицу 5.2) многоволновых схем дифракции в кристалле TeO_2 . Для юстировки компланарной геометрии дифракции была выбрана пара (220, 371).

Выбор указанной схемы дифракции был обусловлен как ориентацией поверхности исследуемого кристалла, так и реализацией для данных отражений условий трехволновой дифракции. Как отмечалось ранее, для наблюдения интерференционных эффектов многоволнового взаимодействия, весьма важным является то, что первое отражение 220 по интенсивности на порядок ярче второго отражения 371.

В условиях трехволновой дифракции (220, 371) в кристалле TeO_2 кроме однократных отражений 220 и 371 (лучи, отмеченные 1 и 2 на рис. 5.13, соответственно) существует также рефлекс, сформированный при последовательном отражении от плоскостей (220) и (151) (луч, отмеченный 3 на рис. 5.13). В этом случае отражение 151 называется связующим [358]. При этом его вектор обратной решетки равен разности векторов первого и второго отражений 220 и 371. Как и пучок 2, отраженный плоскостями (371), пучок 3, в результате переотражения, будет распространяться в том же

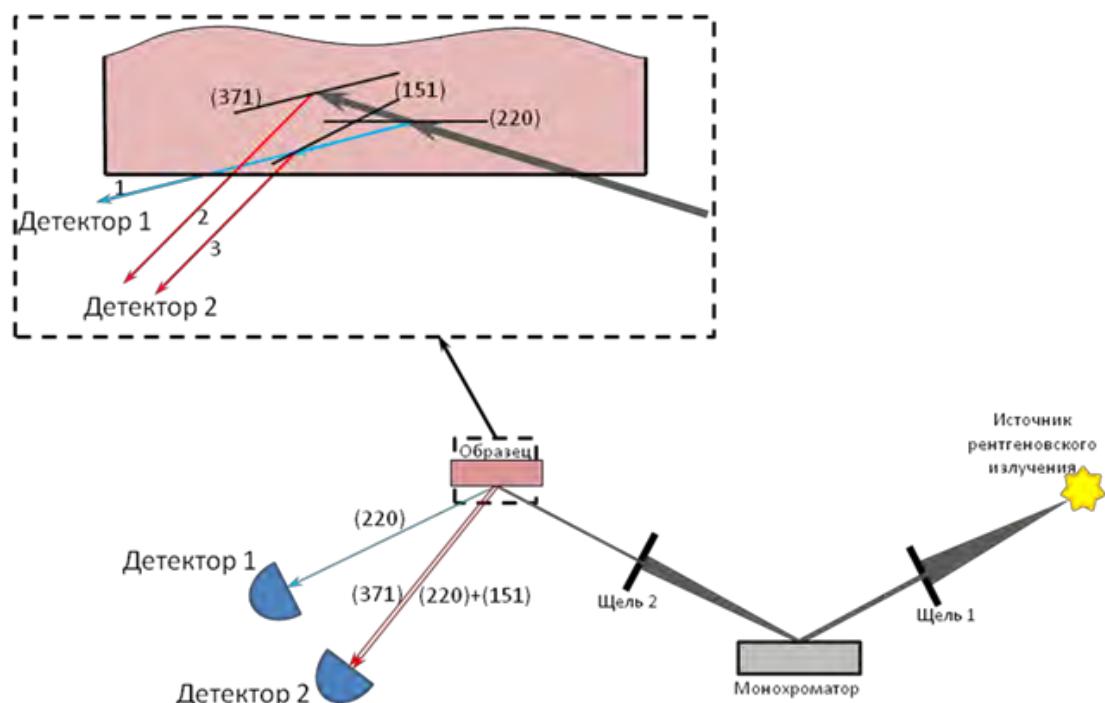


Рис. 5.13. Рентгенооптическая схема эксперимента по реализации многоволновой дифракции (220)-(371) в кристалле парамеллурита.

направлении. Поскольку все отражения дифракционные, условия когерентности сохраняются, и имеет место интерференция падающих и дифрагированных волн. При этом разность фаз между отражениями фактически определяет вид этого интерференционного взаимодействия, т.к. пучки 2 и 3 проходят разный путь в исследуемом образце. Пройденное пучками 2 и 3 расстояние в образце будет меняться при изменении угла падения рентгеновского излучения на кристалл. Вследствие чего будет изменяться разности фаз рентгеновских волн и, как следствие, характер интерференционного взаимодействия.

Измерения КДО проводились в геометрии Брэгга в двухкристальной рентгенодифракционной схеме. С целью реализации слабодисперсионной дифракционной схемы для первого отражения 220 исследуемого кристалла, в качестве монохроматора был выбран монокристалл Si и рефлекс (220). С помощью двух сцинтиляционных NaI детекторов одновременно осуществлялась регистрация интенсивностей двух дифрагированных рентгеновских пучков в условиях трехволновой дифракции.

В угловой области частично отраженного плоскостями (151) рефлекса (220), в трехвольновой области взаимодействия, при регистрации КДО отражений 220 и 371 наблюдается искажение профиля кривой 371 (рис. 5.14). Вид указанного искажения имеет дисперсионный характер и определяется, главным образом, фазовыми соотношениями взаимодействующих рентгеновских волн, участвующих в трехвольновой дифракции отражений.

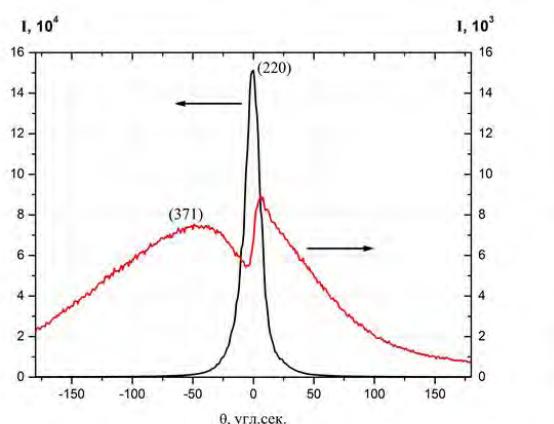


Рис. 5.14. КДО рефлексов (220) и (371) кристалла парателлурита в условиях многоволнового взаимодействия в компланарной схеме.

Также, данный профиль является очень чувствительным к деформациям кристаллической решетки, т.к. деформации в значительной степени изменяют расстояния, пройденные дифрагированными волнами в кристалле, а, следовательно, и их фазовые соотношения. При регистрации КДО отражений 220, 371 требуется угловое сканирование, реализуемое путем вращения исследуемого образца с помощью прецизионного гoniометра с шагом не более 1".

На рис. 5.15 представлены графики КДО отражений 220, 371 исследуемого кристалла TeO_2 полученные в ходе пространственного сканирования вдоль его поверхности. Типичная дисперсионная кривая, отражающая многоволновое взаимодействие прямой дифракции на рефлексе (371) и окольного отражения от атомных плоскостей (220), (151) (рис. 5.14),



Рис. 5.15. КДО рефлексов (220) и (371) кристалла парателлурита, в условиях многоволнового взаимодействия. а) участок с высоким совершенством, б-г) дефектная область кристаллической структуры. На в) и г) показана высокая чувствительность многоволновой дифракции к дефектам. В то время как двухволновая кривая имеет идеальную «гауссову» форму, многоволновая кривая проявляет чувствительность к дефектам в дисперсионной области.

видна на КДО отражения 371 в трехволновой области в точке 3 исследуемого кристалла (рис. 5.12). В большинстве из 18 полученных КДО наблюдался аналогичный профиль кривых.

В точках 4 и 5 на рис. 5.12 зависимость КДО (220) была зарегистрирована несколько уширенной, а при этом дисперсионная область отражения 371 искажена весьма значительно (рис. 5.15 a). В точке 6 на рис. 5.12 зависимость КДО (220) практически возвращается к профилю, соответствующему совершенному кристаллу. При этом для трехволновой области дисперсионная часть, которая зависит от соотношений фаз взаимодействующих волн (волны дифракционного отражения 371 и окольного отражения 151), по-прежнему значительно отличается от КДО для совершенного кристалла (рис. 5.15 b). В остальных точках (рис. 5.12) зависимости КДО приобретают прежний вид, представленный на рис. 5.14 и характеризующий достаточно совершенную кристаллическую (без дополнительных искажений) структуру.

Представленные результаты свидетельствуют о том, что трехволновая дифракция с учетом влияния фазовых соотношений рентгеновских волн, обладает существенно большей чувствительностью к наличию дефектов в кристалле, по сравнению с широко используемой для анализа дефектной структуры двухволновой дифракцией [359]. Данный эффект проявляется при сильном различии в амплитудах многоволновых отражений для слабого рефлекса в области точного многоволнового взаимодействия.

5.2. Квазимноговолновая дифракция. Особенности реализации и настройки схемы. Относительные и абсолютные измерения распределения параметра кристаллической решетки.

В основе метода квазимноговолновой рентгеновской дифракции лежит регистрация КДО двух отражений, для которых реализуются условия, близкие к многоволновой дифракции в компланарной геометрии.

Метод состоит в определении угла Ψ , соответствующего повороту кристалла между дифракционными пиками, выбранных заранее отражений. Если этот угол мал (т.е. не превышает нескольких угловых минут) тогда реализуются условия, близкие к многоволновой дифракции [348, 360, 361].

В настоящее время метод эффективно применяется в исследованиях тетрагональных (например, TeO_2) и тригональных (лантан-галлиевый танталат, ЛГТ) кристаллов [362]. Но был впервые разработан для исследования кристаллов кубической сингонии [360]. Метод может применяться более чем для двух компланарных отражений с целью повышения его информативности, однако имеет место ряд трудностей и ограничений в процессе поиска и выбора рефлексов, соответствующих необходимым условиям.

К указанным трудностям следует отнести ограничения, возникающие в процессе поиска и выбора схем отражений, удовлетворяющих одновременно условиям квазимноговолновой компланарной дифракции и геометрии схемы экспериментальной установки.

Алгоритм расчета и подбора кристаллических плоскостей, описанный ранее в предыдущем разделе, аналогичен поиску многоволновых отражений. Поскольку указанная методика расчета подробно описана ранее, здесь приведем краткое описание методики с учетом дальнейших особенностей экспериментов по измерению вариаций относительных величин параметров кристаллической решетки.

Методика расчета основана на вычислении углов Брэгга отражений от двух семейств плоскостей $(h_1k_1l_1)$ и $(h_2k_2l_2)$, вычислении угла между этими

плоскостями и определении углового расстояния Ψ между дифракционными пиками $(h_1k_1l_1)$ и $(h_2k_2l_2)$ выбранных отражений (рис. 5.16).

Расстояние $\Psi = \varphi - |\theta_1 - \theta_2|$, где θ_1, θ_2 – углы Брэгга первого и второго отражений, φ – угол между плоскостями.

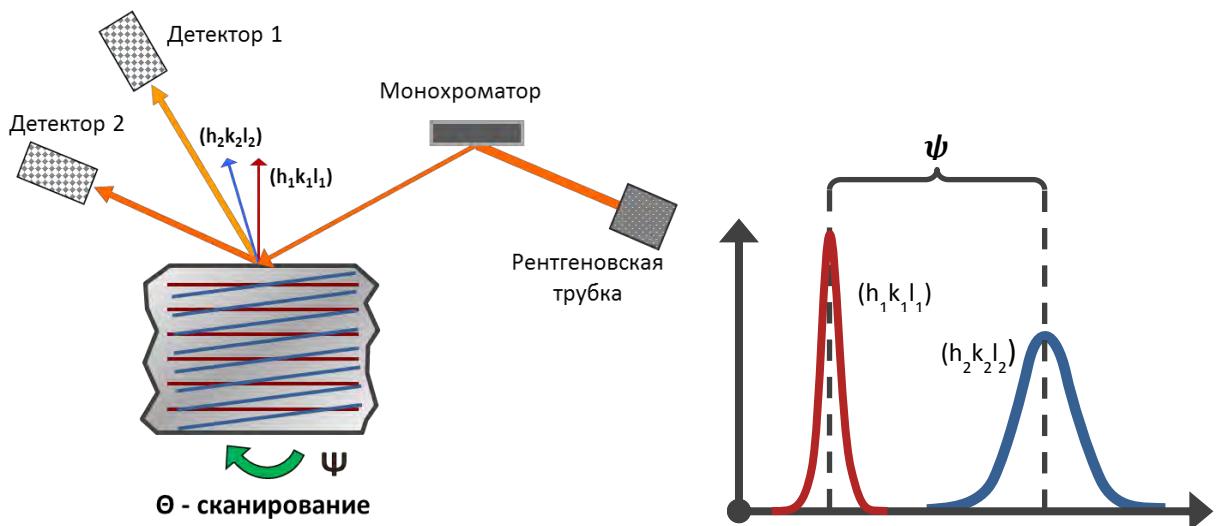


Рис. 5.16. Принципиальная схема метода с использованием нескольких компланарных рентгеновских рефлексов.

Межплоскостное расстояние семейства плоскостей (hkl) для кристаллов тригональной сингонии определяется по формуле:

$$d_{hkl}^2 = [(h^2 + k^2 + hk) \frac{4}{3a^2} + l^2 c^{-2}]^{-1}, \quad (5.17)$$

где a, c – параметры кристаллической решетки в нанометрах; h, k, l – индексы Миллера; d_{hkl} – межплоскостное расстояние в нанометрах.

Угол φ между плоскостями $(h_1k_1l_1)$ и $(h_2k_2l_2)$ определяется по формуле:

$$\cos \varphi = \frac{h_1h_2 + k_1k_2 + \frac{1}{2}(h_1k_2 + h_2k_1) + \frac{3}{4}\frac{a^2}{c^2}l_1l_2}{[(h_1^2 + k_1^2 + h_1k_1 + \frac{3}{4}l_1^2\frac{a^2}{c^2})(h_2^2 + k_2^2 + h_2k_2 + \frac{3}{4}l_2^2\frac{a^2}{c^2})]^{\frac{1}{2}}}. \quad (5.18)$$

В настоящей работе критерием пригодной схемы дифракции для дальнейших теоретических расчетов и реализации экспериментов служили условия, когда угловое расстояние $\Psi \leq 600''$ и параметр ε (задающий

точность определения параметра решетки формулами $\delta a/a = \varepsilon(\delta\Psi)$, $\varepsilon = 1/(|\operatorname{tg}\theta_1 - \operatorname{tg}\theta_2|) \approx \cos\theta_1 \cos\theta_2 / \sin\varphi$ [360, **Ошибка! Закладка не определена.**]) не превышал величину 5×10^{-5} . Затем при реализации в эксперименте выбирались пары рефлексов с учетом дополнительных параметров, в том числе, коэффициенты отражения выбранных рефлексов и отсутствие «запрещенных» отражений с нулевыми структурными факторами.

Результаты расчета многоволновых отражений

В результате вычислений по описанным ранее алгоритмам расчета и поиска компланарных схем дифракции были получены пары рефлексов, приведенные ниже в таблице 5.3.

Таблица 5.3 – трехволновые схемы для отражений hkl кристалла ланганата (ЛГТ).

$(hkl)_1$	$(hkl)_2$	Ψ_0 , град.	$ \theta_2 - \theta_1 $, MoK_{a1} , град.	θ_1 , град	θ_2 , град
2 9 0	2 2 0	-0,2362	20,40977502	30,33721122	9,9274362
3 8 0	3 3 0	0,340884	14,3637719	29,35085057	14,9870787
4 7 0	4 4 0	0,436248	8,512027925	28,68171335	20,1696854
5 7 0	5 5 0	-0,27731	5,773676967	31,3048437	25,5311667
5 6 0	5 5 0	0,192273	2,8122189	28,34338563	25,5311667
6 7 0	6 6 0	-0,42724	2,970159665	34,1149405	31,1447808
5 6 0	6 6 0	0,203096	2,801395205	28,34338563	31,1447808
6 7 0	7 7 0	-0,45613	2,999055984	34,1149405	37,1139965
5 7 0	7 7 0	-0,31279	5,809152787	31,3048437	37,1139965
2 6 0	7 7 0	0,019601	16,08251306	21,03148343	37,1139965
1 5 0	7 7 0	0,02466	21,02706394	16,08693254	37,1139965
3 8 0	8 8 0	0,456799	14,247857	29,35085057	43,5987076
2 9 0	9 9 0	-0,36717	20,54073626	30,33721122	50,8779475

Точность определения параметров решетки зависит от ошибок, как в случае относительного изменения параметров элементарной ячейки, так и при изменении их абсолютных величин. В обоих случаях ошибки складываются из инструментальной погрешности и относительной ошибки, которая зависит от условий эксперимента (схемой выбранных отражений,

ошибкой их юстировки, точностью определения углового положения дифракционного пика, и т.д.)

С целью повышения относительной точности метода в эксперименте важным также является выявление оптимальных условий регистрации и анализа КДО – шаг сканирования по углу, время накопления сигнала в точке, интенсивность дифракционного отражения, время регистрации зависимостей КДО.

Далее, путем аппроксимации экспериментальных КДО полученные зависимости обсчитываются в аналитической среде обработки данных. Достаточно хорошее совпадение при аппроксимации данных давала модель с использованием функции Гаусса. Угловая координата пика гауссовой кривой X_c , которая является одним из параметров, задающим аппроксимирующую кривую, принималась за положение дифракционного максимума. Так, для каждой КДО, используемой пары рефлексов, была получена пара значений углов X_{c1}, X_{c2} .

Отметим, что результаты анализа данных, в том числе, значение X_c , содержат также погрешности определения каждого из параметров гауссовой модели аппроксимации. В частности, ошибка определения угла между дифракционными пиками вычисляется по формуле $\delta\Psi_0 = [(\delta X_{c1})^2 + (\delta X_{c2})^2]^{1/2}$, где δX_{c1} и δX_{c2} – ошибки определения угловых координат дифракционных пиков используемых отражений.

Экспериментальная реализация многоволновой дифракции

Одним из решающих факторов проведения прецизионного эксперимента для определения абсолютного значения параметра кристаллической решетки методом квазимноговолновой дифракции в компланарной геометрии рентгеновской дифракции является предельно точная юстировка исследуемого кристалла. От нее в значительной степени зависят также и точность определения локальных значений параметров ячейки, и экспериментальные ошибки.

Точная юстировка исследуемого кристалла, строго соответствующая компланарной геометрии квазимноговолновой дифракции, не представляется столь существенной при измерениях вариаций относительных величин параметров элементарной ячейки. Поскольку при вычислении относительных величин параметров ячейки ошибка, которая определяется отстройкой экспериментальной схемы от компланарной геометрии дифракции, остается постоянной величиной и взаимно вычитается (компенсируется) в разных точках по образцу.

В задаче определения вариаций абсолютных значений параметров элементарной ячейки проблема точной юстировки исследуемого кристалла является ключевой. От нее существенным образом зависит и точность определения значений параметров ячейки, и минимальная погрешности измерений.

Стереографические проекции для двух отражений в компланарной геометрии, соответствующей брэгговской квазимноговолновой дифракции, показаны на рис. 5.17. Из рисунка следует, что предельное расстояние $A_1A_2 = \Psi_0$, расстояние между дифракционными максимумами пары отражений $h_1k_1l_1, h_2k_2l_2$ (точки O_1, O_2 – выходы нормалей к кристаллографическим плоскостям этих отражений $h_1k_1l_1, h_2k_2l_2$, соответственно), может быть определено только, если точки A_1 и A_2 расположены на одной прямой, лежащей в плоскости дифракции. Это и есть данной геометрии дифракции условие компланарности.

Таким образом, для определения величины угла Ψ_0 в эксперименте требуется реализовать азимутальное вращение исследуемого образца вокруг нормали к плоскостям $(h_1k_1l_1)$, т.е. чтобы вектор обратной решетки данного отражения при азимутальном повороте оставался в плоскости дифракции. Также, необходимо точное позиционирование исследуемого кристалла при таком вращении для установки азимутального угла, строго соответствующего компланарной геометрии. Указанные условия и азимутальное вращение исследуемого кристалла необходимо обеспечить

тонкой юстировкой, на основе азимутального поворота образца вокруг вектора обратной решетки первого (симметричного) отражения.

Для проведения экспериментов с использованием компланарной квазимноговолновой геометрии дифракции удобно выбрать ориентацию исследуемой кристаллической пластины так, чтобы первое отражение выбранной пары рефлексов было симметричным. Однако поверхность

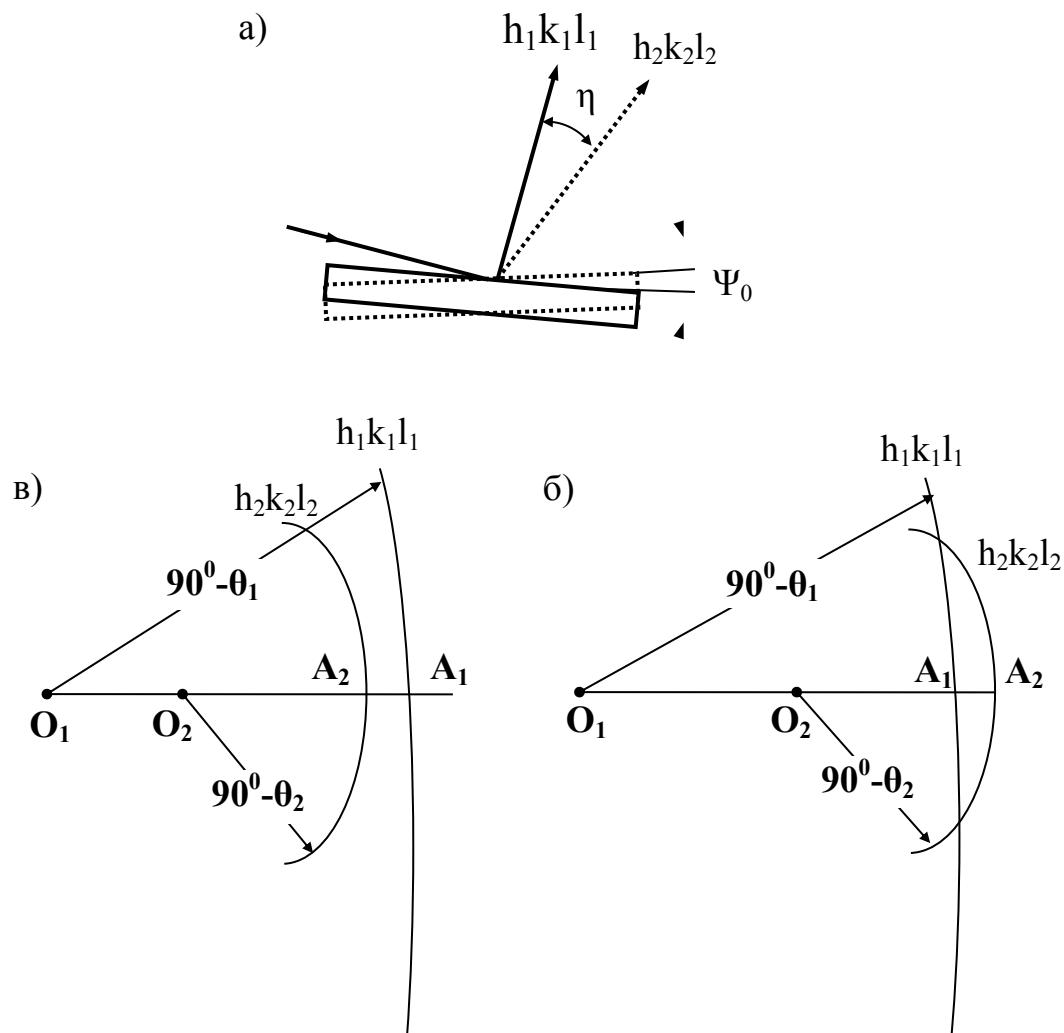


Рис. 5.17. а) Схема квазимноговолновой дифракции для геометрии Брэгга для пары рефлексов $(h_1 k_1 l_1)$, $(h_2 k_2 l_2)$. η - угол между дифрагированными пучками, Ψ_0 - угловое расстояние между дифракционными пиками в условиях точного брэгговского положения рефлексов; б, в) – стереографические проекции данной схемы квазимноговолновой дифракции для двух случаев: б) $\Psi_0 < 0$, в) $\Psi_0 > 0$.

O_1 , O_2 – точки выхода $(h_1 k_1 l_1)$, $(h_2 k_2 l_2)$; $A_1 A_2 = \Psi_0$; кривые $(h_1 k_1 l_1)$ и $(h_2 k_2 l_2)$ удовлетворяют условиям дифракции

пластины всегда ориентирована относительно кристаллических плоскостей с конечной точностью и, соответственно, направление вектора обратной решетки симметричного отражения не будет в точности совпадать с направлением нормали к поверхности.

Гониометрические головки и кристаллодержатели, позволяющие провести описанную выше прецизионную настройку вращения исследуемого образца, в стандартную комплектацию рентгеновских дифрактометров (в частности, ТРС) не входят. Обычно используются кристаллодержатели, которые позволяют вращать пластину вокруг нормали к ее тыльной поверхности. В то время как методика требует обеспечение вращения вокруг вектора обратной решетки симметричного отражения. Указанное несоответствие влияет в значительной степени на точность измерений абсолютных значений параметров элементарной ячейки. Однако, как отмечалось ранее, при изучении относительных изменений параметров ячейки по образцу не оказывает существенного влияния.

Использование специального кристаллодержателя (гониометрического узла), обеспечивающего настройку вращения исследуемого кристалла вокруг вектора обратной решетки симметричного отражения, позволяет проводить измерения абсолютных величин параметров ячейки. Такой кристаллодержатель должен обеспечивать настройку положения кристалла в двух плоскостях после оси азимутального вращения кристалла.

В общем случае в качестве критерия правильной настройки схемы можно пользоваться следующим условием: в съюстированной схеме при азимутальном повороте образца полуширина КДО ассиметричного отражения минимальна при предельном значении углового расстояния Ψ_0 .

В условиях правильной юстировки компланарной геометрии методика квазимноговолновой дифракции позволяет проводить изучение вариаций относительных величин параметров элементарной ячейки по образцу с высокой степенью локальности.

В настоящей работе спроектирован и изготовлен специальный кристаллодержатель (рис. 5.18), позволяющий провести юстировку исследуемой кристаллической пластины для азимутального вращения, при котором ось вращения в точности совмещена с вектором обратной решетки симметричного отражения. Разработанный кристаллодержатель позволяет с высокой точностью проводить специальную юстировку образца, необходимую для реализации экспериментов по измерению абсолютных значений параметров ячейки кристаллов, и обеспечивающий относительную точность метода не хуже 5×10^{-5} .



Рис. 5.18 Специальный кристаллодержатель, обеспечивающий возможность юстировки исследуемого образца (кристаллической пластины), позволяющей реализовать азимутальное вращение пластины вокруг вектора обратной решетки симметричного рефлекса. Кристаллодержатель обеспечивает наклон и азимутальное вращение подложки для крепления пластины независимо от наклона и азимутального вращения массивной головной части кристаллодержателя.

Также была разработана усовершенствованная система позиционирования исследуемого образца для точной установки исследуемой пластины по азимутальному углу, соответствующему компланарной

геометрии дифракции. Система предназначена для проведения прецизионных экспериментов и позволяет устанавливать разработанный кристаллодержатель на χ -кольце (рис. 5.19), расположенном на главном гониометре рентгеновского спектрометра. Также она позволяет осуществлять вращение χ -кольца автоматизировано (с использованием шагового двигателя), что обеспечивает установку исследуемого кристалла по азимутальному углу с точностью 1.0'.

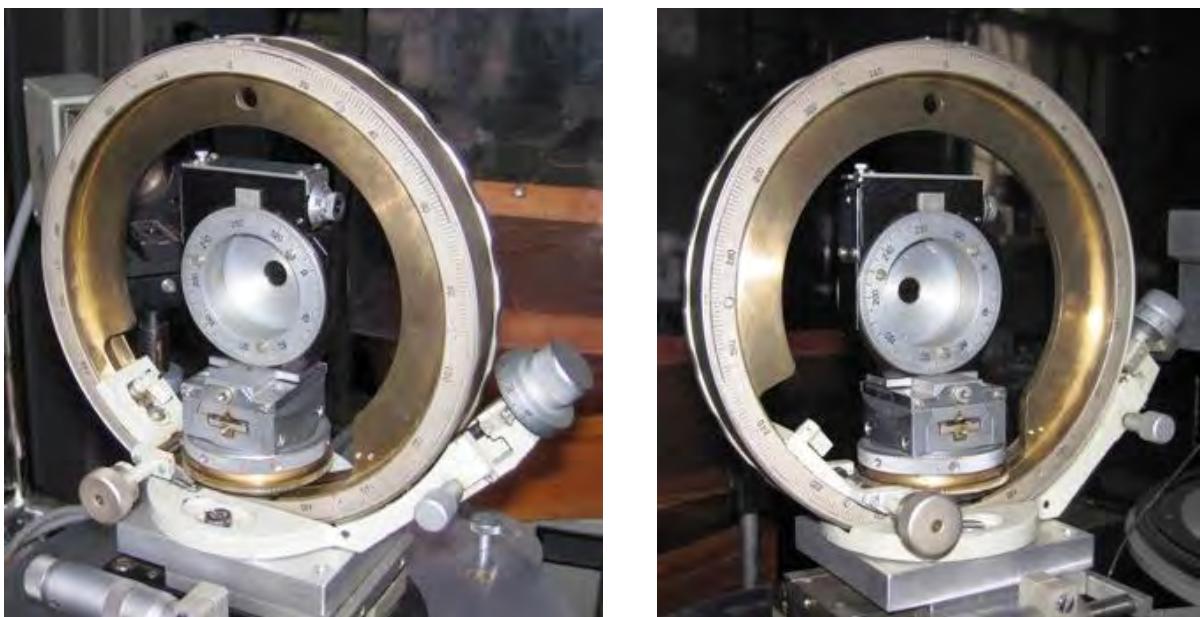


Рис. 5.19 Система позиционирования и азимутального сканирования исследуемого образца с использованием специального кристаллодержателя обеспечивающего вращение исследуемой кристаллической пластины вокруг вектора дифракции симметричного рефлекса.

Основу юстировки компланарной геометрии представляют следующие операции. Сначала образец устанавливается в положение, соответствующее брэгговской дифракции для симметричного отражения. Затем путем точной подстройки по углу Брэгга и углу наклона в поперечном направлении образец необходимо установить так, чтобы при азимутальном повороте вокруг горизонтальной оси, лежащей в плоскости дифракции, вектор обратной решетки симметричного рефлекса оставался в дифракционной плоскости.

Далее, в соответствии с условиями компланарной геометрии дифракции для выбранной пары отражений образец устанавливается на расчетный азимутальный угол, соответствующий теоретической величине расстояния между пиками Ψ_0 . После вышеописанной процедуры проводится угловое азимутальное сканирование исследуемого образца вблизи установленного положения (рис. 5.20, 5.21) – измерение серии КДО пары отражений в

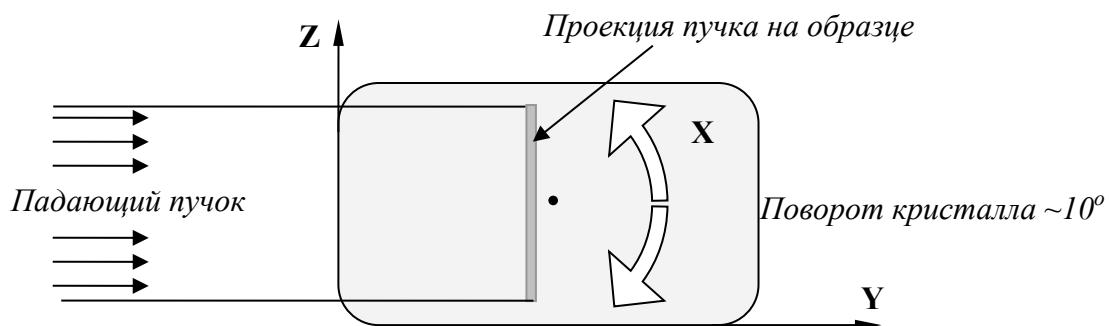


Рис. 5.20 Азимутальное сканирование кристаллической пластины.

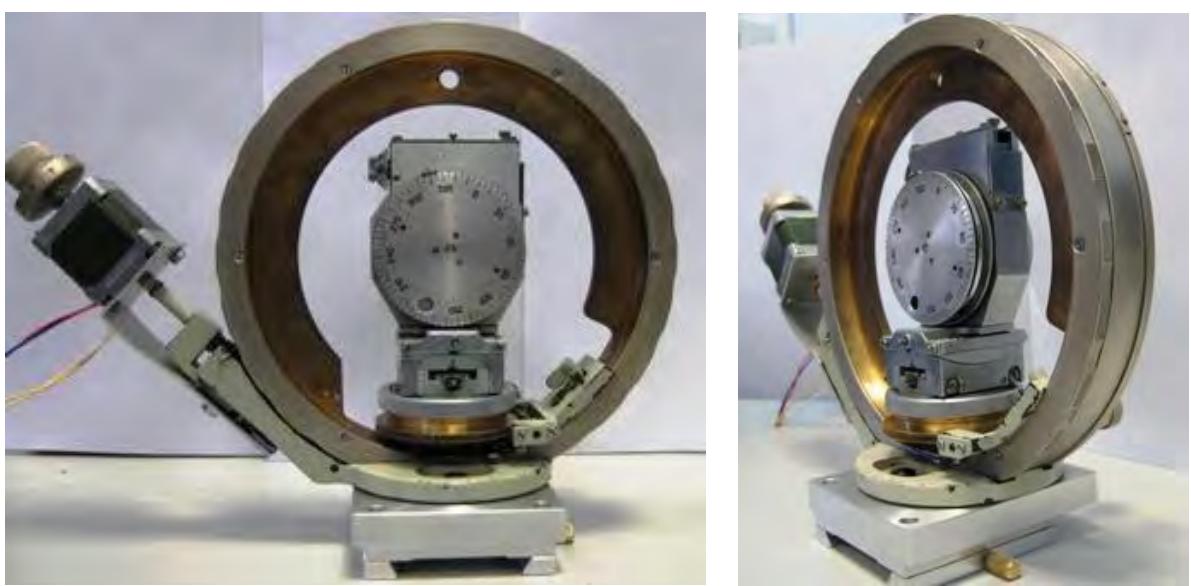


Рис. 5.21. Система позиционирования и автоматизированного азимутального сканирования исследуемого образца с использованием специального кристаллодержателя обеспечивающего вращение исследуемой кристаллической пластины вокруг вектора дифракции симметричного рефлекса. Вращение χ -кольца осуществляется с помощью шагового двигателя и обеспечивает установку углового азимутального положения исследуемого образца с точностью 10,0'.

зависимости от азимутальной угловой отстройки, при небольших углах отстройки образца ($+/- 2^\circ$). Положение кристалла, при котором фиксируется экстремум полученной зависимости расстояния Ψ_0 от азимутальной отстройки, есть положение, отвечающее точной настройке компланарной геометрии.

Таким образом, описанный эксперимент позволяет получить фактическое предельное угловое расстояние между дифракционными максимумами Ψ_0 в любой точке исследуемого образца, что позволяло измерить значение параметра кристаллической решетки, при условии выбора соответствующих рефлексов. При этом эксперимент так же определяет юстировку асимметричного отражения и компланарность геометрии дифракции.

Проведение измерений вариации и абсолютных значений параметра кристаллической решетки в тригональных кристаллах семейства лангасита в зависимости от особенностей условий роста кристаллов

В экспериментах по измерению вариаций параметра решетки a рентгенодифракционным методами проводилась регистрация отражений от двух различных кристаллических плоскостей, и была выбрана пара компланарных рефлексов (260) – (770). Брэгговские углы и расчетное угловое расстояние для этой пары для линии MoK $_{\alpha 1}$ ($\lambda = 0.70932 \text{ \AA}$) представлены в *Таблице 5.4*. Рефлекс 770 является симметричным, а 260 ассиметричным.

Таблица 5.4

h₁k₁l₁			h₂k₂l₂			Ψ₀ , град.	ΘB₁ , град.	ΘB₂ , град.	φ , град.	d_{h₁k₁l₁} , м.	d_{h₂k₂l₂} , м.
2	6	0	7	7	0	0,01960	21,03148	37,11340	16,10211	8,23E ⁻¹⁰	5,12E ⁻¹⁰

Образцы для исследований представляли собой кристаллические пластины ориентацией [110] длиной по [-110], с размерами $15 \times 10 \times 0,5 \text{ mm}^3$, вырезанные из различных частей були (верх, середина и низ).

Измерения проводились на рентгеновском спектрометре ТРС, схема эксперимента представлена на рис. 5.22.

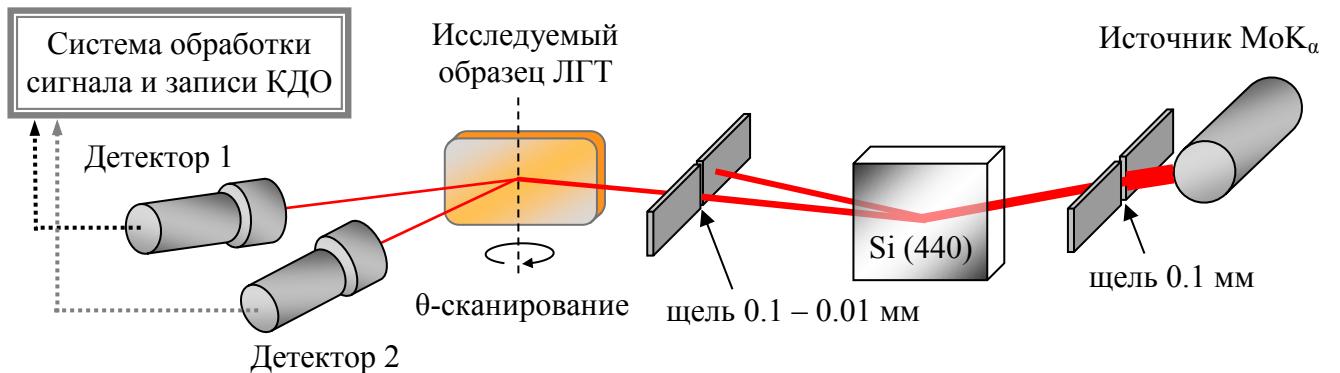


Рис. 5.22. Рентгенооптическая схема эксперимента.

Параллельный $\Delta\theta/\theta \sim 0,0001$ и монохроматичный $\Delta\lambda/\lambda \sim 0,00004$ рентгеновский пучок формировался при однократном отражении от кремниевого монохроматора и ограничивался щелью перед образцом. Для одного из рефлексов реализуется бездисперсионная схема (как правило, им выбирается симметричный поверхности образца рефлекс), а второй рефлекс оказывается в дисперсионной схеме. В данном случае наличие дисперсии для одного из рефлексов не влияет на точность определения углового положения максимума дифракционного пика и, следовательно, не влияет на точность измерения. Регистрация интенсивности дифрагированных рентгеновских пучков проводилась двумя сцинтилляционными детекторами с использованием независимых каналов счета. В экспериментах измерялись кривые дифракционного отражения обоих рефлексов.

Экспериментальные результаты

Для определения статистической ошибки проводились последовательные измерения кривых дифракционного отражения от двух компланарных квазимноговолновых рефлексов (260)-(770) при дифракции в одной и той же точке в течение 3 часов. Результаты расчета углового

расстояния между пиками квазимноговолновых отражений по экспериментальным кривым представлены на рис. 5.23.

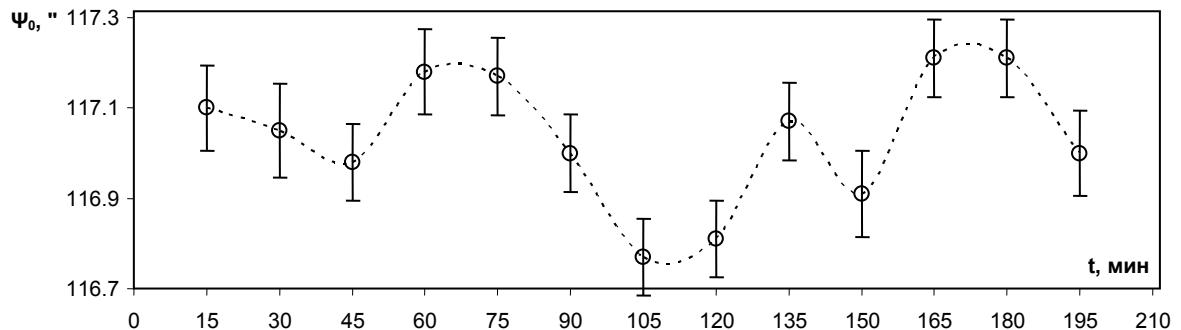


Рис. 5.23. Результаты измерения инструментальной ошибки – статистическое изменение углового расстояния между пиками дифракционных максимумов компланарных квазимноговолновых рефлексов (260)-(770).

При настройке компланарной схемы квазимноговолновой дифракции проводилось азимутальное сканирование образца. В экспериментах измерялось угловое расстояние между пиками рефлексов (260)-(770). На рис. 5.24 представлены результаты азимутального сканирования кристаллических пластин лангатата X-среза.

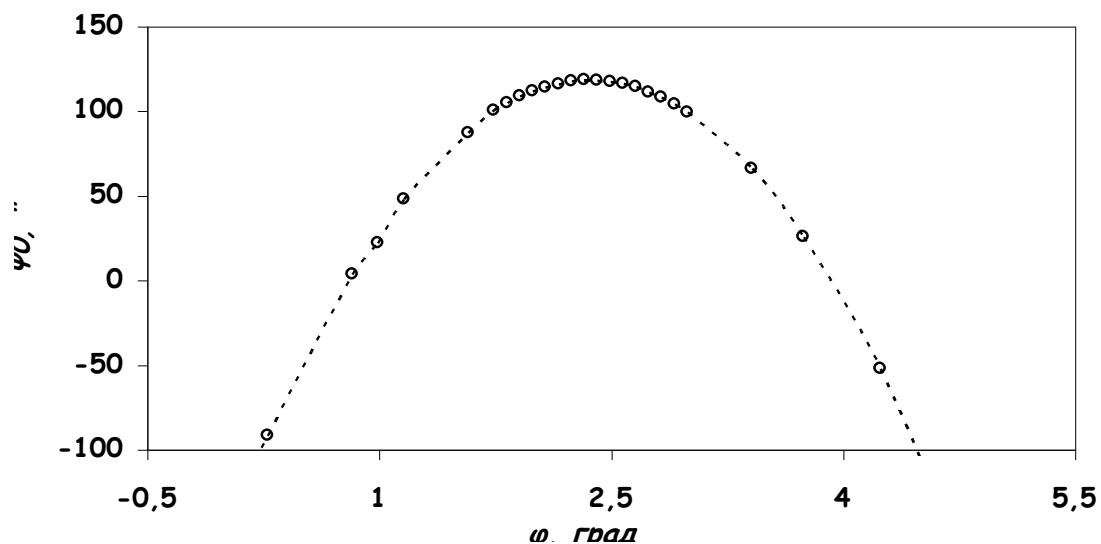


Рис. 5.24. Результаты азимутального сканирования при юстировке компланарных рефлексов (260)-(770) кристаллической пластине X-среза.

Ниже представлены измерения относительного изменения параметра кристаллической решетки кристалла лангатата. Сканирование проводилось в направлении Y на кристаллической пластине X-среза (см. рис. 5.25, 5.26) с разрешением 150 мкм, диапазоном сканирования 14 мм и шагом сканирования 0,66 мм.

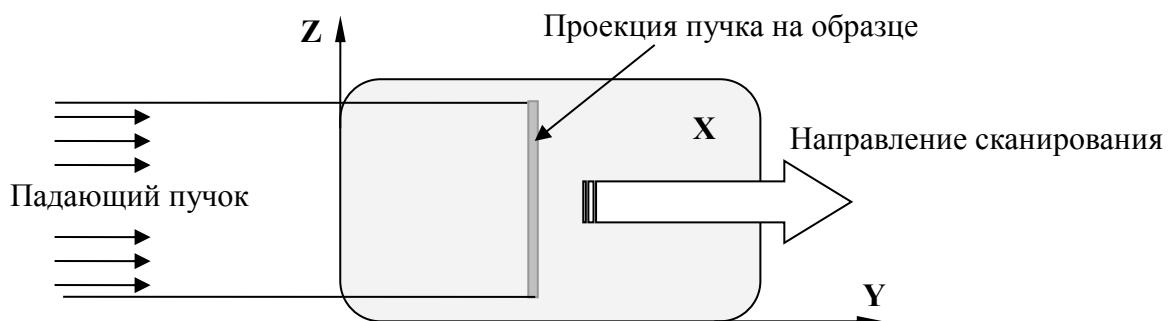


Рис. 5.25. Пространственное сканирование кристаллической пластины X-среза лангатата.

Экспериментально измеренное угловое расстояние между пиками составило для средней $117,97''$. соответствовало параметру решетки $a = 8,23398$. Относительное изменение параметра решетки составило $1,6 \cdot 10^{-4}$.

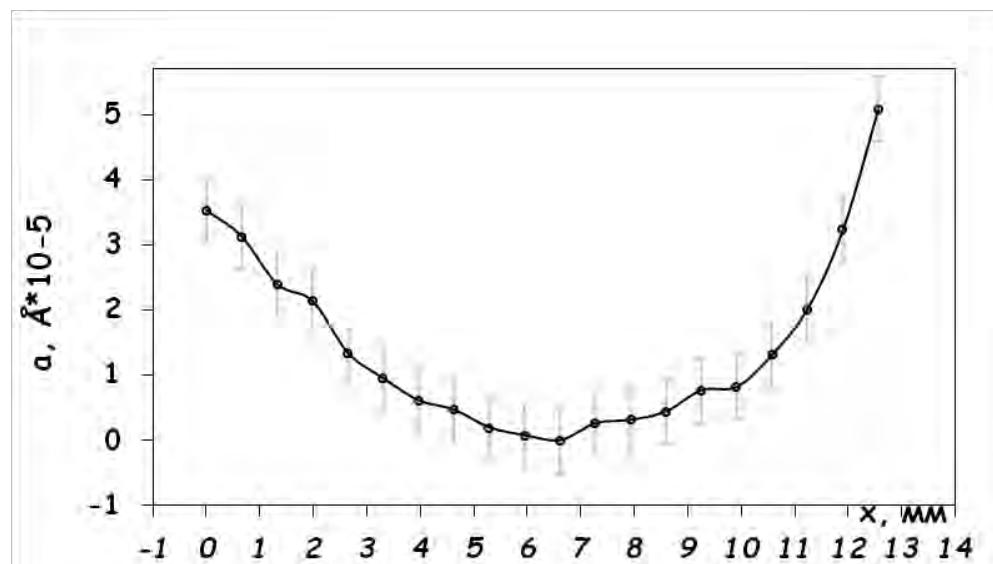


Рис. 5.26. Вариация параметра кристаллической решетки a, измеренное в направлении Y кристаллической пластины лангатата.

На рис. 5.27–5.28 представлены результаты измерения микромасштабных неоднородностей параметра кристаллической решетки кристалла лангатата (с разрешением 150 мкм, диапазон сканирования 3 мм, шаг сканирования 145 мкм). Измерения проводились на кристаллических пластинах X-реза при сканировании пластины вдоль оси Y. На рис. 5.27 представлены изменения углового расстояния между рефлексами (260)-(770), измеренные при съюстированной схеме компланарной квазимноговолновой

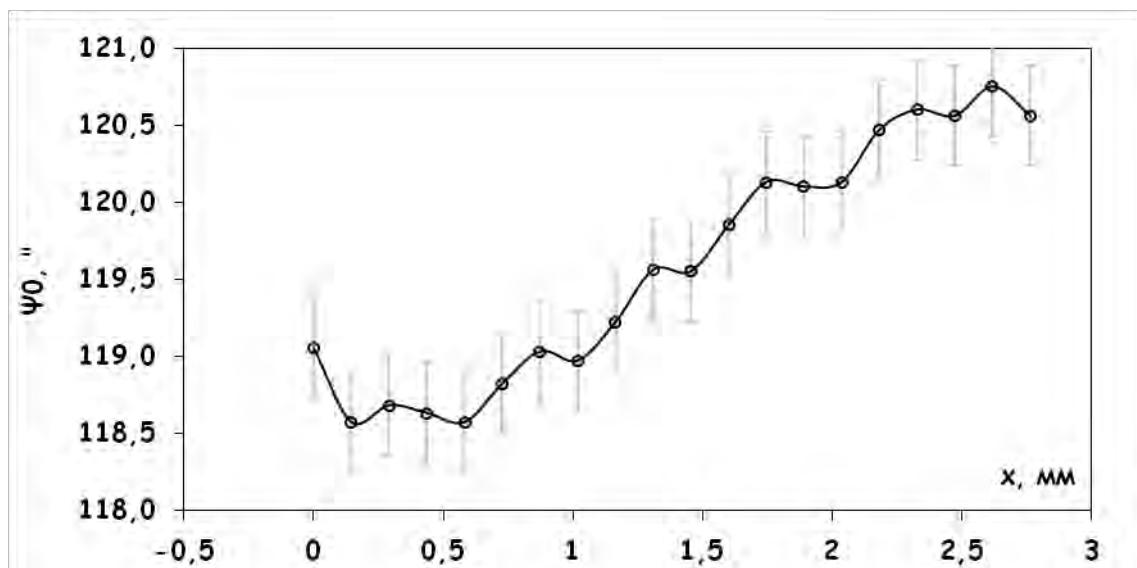


Рис. 5.27. Изменение углового расстояния Ψ_0 между рефлексами (260)-(770) при перемещении рентгеновского пучка в направлении Y кристаллической пластины лангатата X-реза.

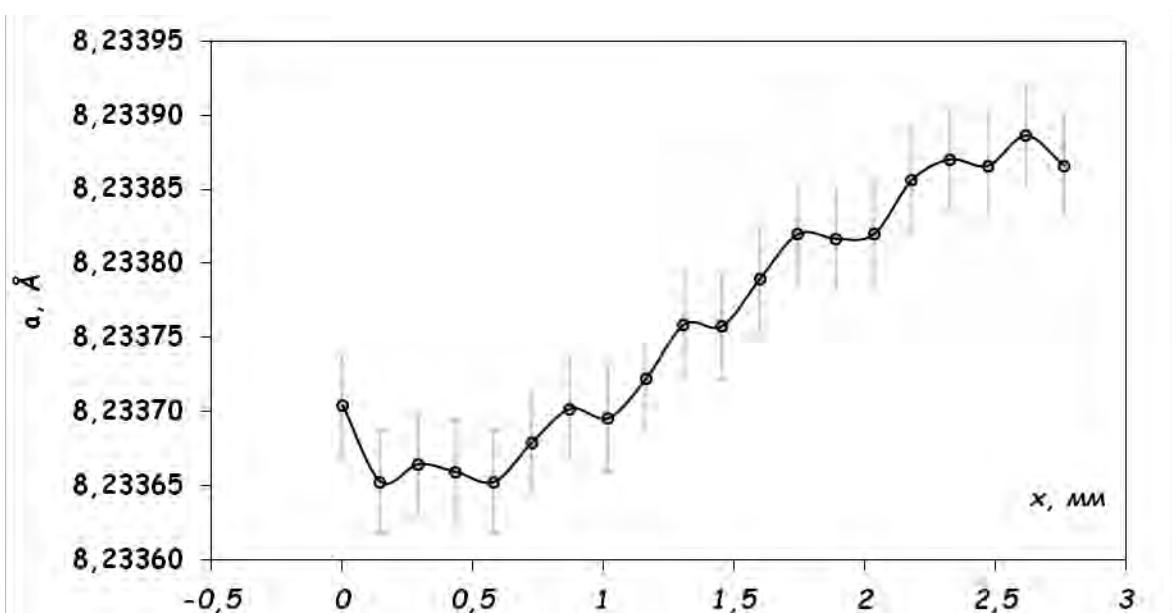


Рис. 5.28. Вариация параметра кристаллической решетки a , измеренное в направлении Y кристаллической пластины лангатата X-реза.

дифракции; на рис. 5.28 представлен результат расчета изменения параметра кристаллической решетки a , выполненных на основе этих измерений.

Для экспериментального определения точного азимутального положения исследуемого кристалла, соответствующего компланарной геометрии дифракции, удобно использовать методику, которая заключается в измерении серии кривых дифракционного отражения пары рефлексов (путем θ -сканирования) и определении углового расстояния между ними в зависимости от поворота кристалла вокруг вектора дифракции симметричного рефлекса, – таким образом, проводится угловое азимутальное сканирование (рис. 5.29).

Азимутальное сканирование проводилось для трех исследуемых кристаллических пластин, вырезанных из верхней, средней и нижней частей були и отражающих разные этапы кристаллизации.

На рис. 5.30, 5.31, 5.32 представлены экспериментальные зависимости углового расстояния Ψ_0 между дифракционными максимумами пары рефлексов (770)-(260) при азимутальном сканировании трех исследуемых пластин лангатата вблизи расчетного азимутального положения, соответствующего компланарной геометрии дифракции.

Полученные кривые позволяют определить максимальное экспериментальное значение Ψ_0 и, соответственно, определить абсолютную величину параметра кристаллической решетки a для кристалла лангатата. Угловое расстояние между пиками Ψ_0 для пластины, вырезанной из верхней части були составило $121,9 \pm 0,2''$, для средней – $118,0 \pm 0,2''$, для нижней –

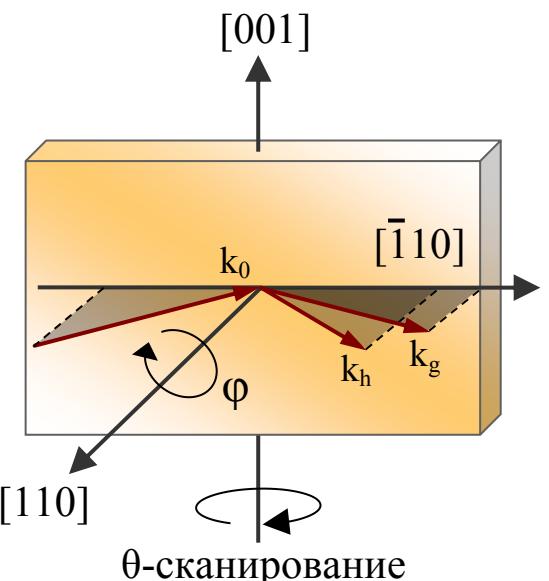


Рис. 5.29. Ориентация исследуемых кристаллических пластин и направления вращения при азимутальном сканировании (φ) и θ -сканировании.

$130,1 \pm 0,2''$. что соответствует значениям параметра решетки $a = 8,23398 \pm 0,00003\text{\AA}$, $8,23358 \pm 0,00003\text{\AA}$, $8,23486 \pm 0,00003\text{\AA}$.

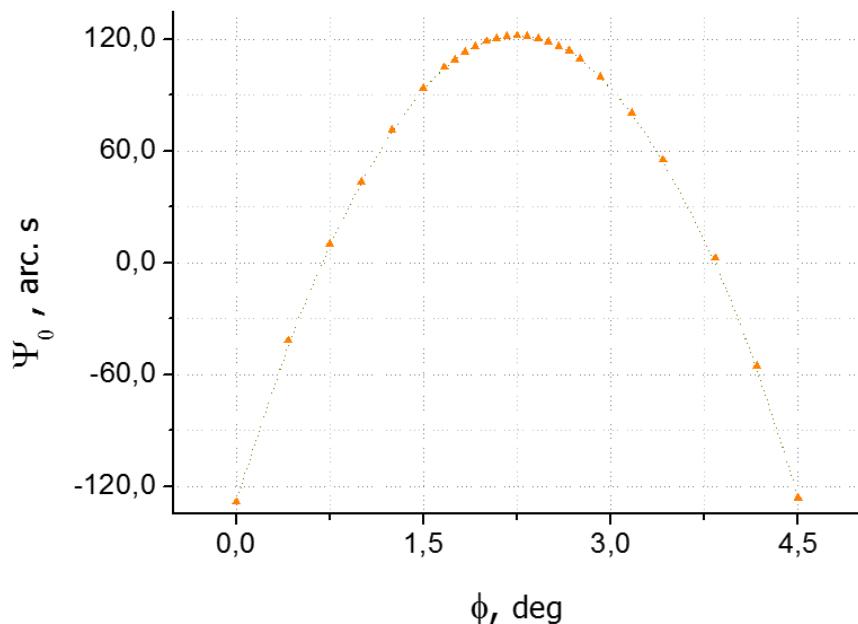


Рис. 5.30. Результаты азимутального сканирования кристаллической пластины лангатата, вырезанной из верхней части були, при настройке компланарной геометрии дифракции с использованием пары рефлексов (260) - (770).

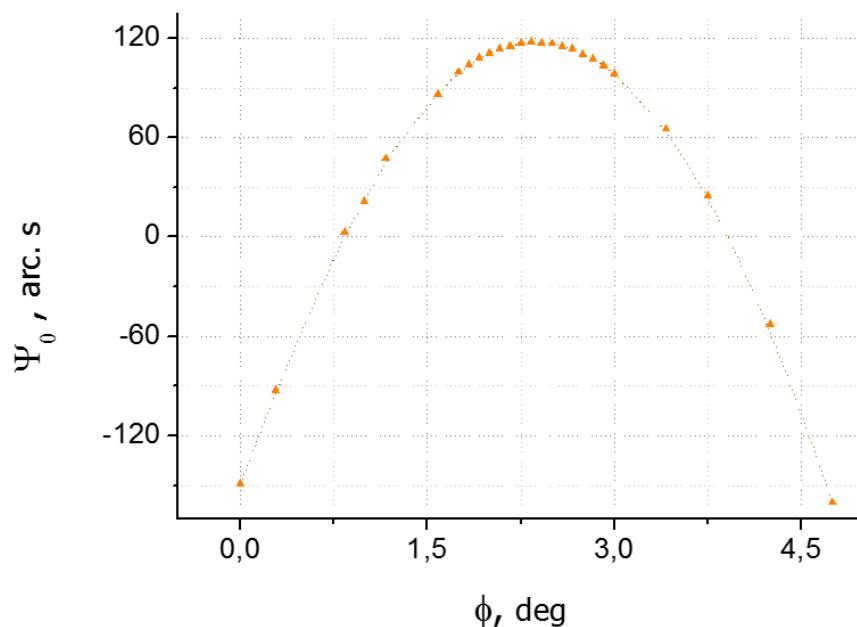


Рис. 5.31. Результаты азимутального сканирования кристаллической пластины лангатата, вырезанной из средней части були, при настройке компланарной геометрии дифракции с использованием пары рефлексов (260) - (770).

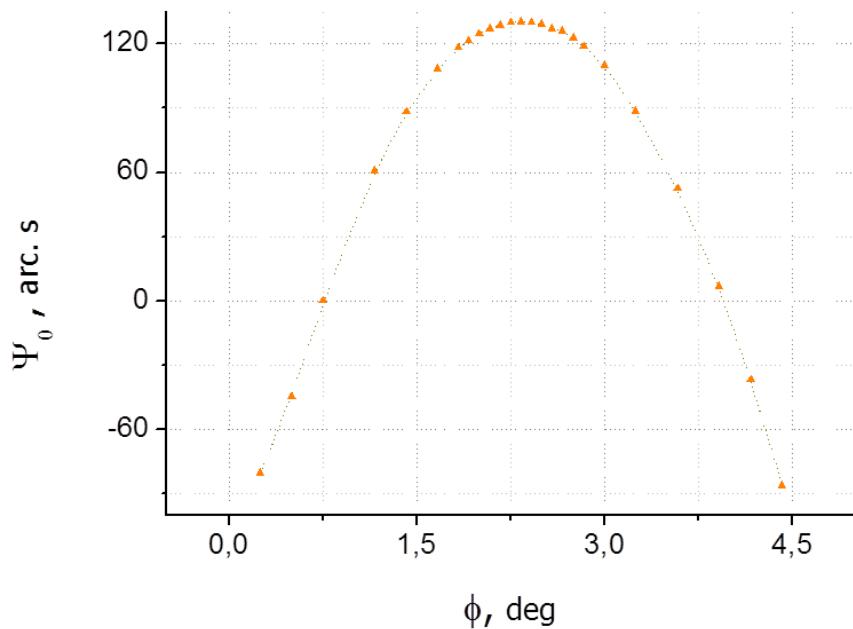


Рис. 5.32. Результаты азимутального сканирования кристаллической пластины лангатата, вырезанной из нижней части були, при настройке компланарной геометрии дифракции с использованием пары рефлексов (260) - (770).

После настройки компланарной геометрии дифракции проводилось пространственное сканирование выделенной области каждого из трех исследуемых кристаллов лангатата. В эксперименте в каждой точке сканирования регистрировалось расстояние Ψ_0 между дифракционными максимумами рефлексов (260), (770) при параллельном перемещении пучка по длине кристаллической пластины, вдоль [-110].

В результате пространственного сканирования были получены экспериментальные кривые распределения параметра кристаллической решетки a кристалла лангатата (с разрешением 133 мкм, диапазон сканирования 3 мм, шаг сканирования 145 мкм).

На рис. 5.33 представлены результаты расчета относительного изменения параметра кристаллической решетки a , выполненного на основе измерений углового расстояния Ψ_0 .

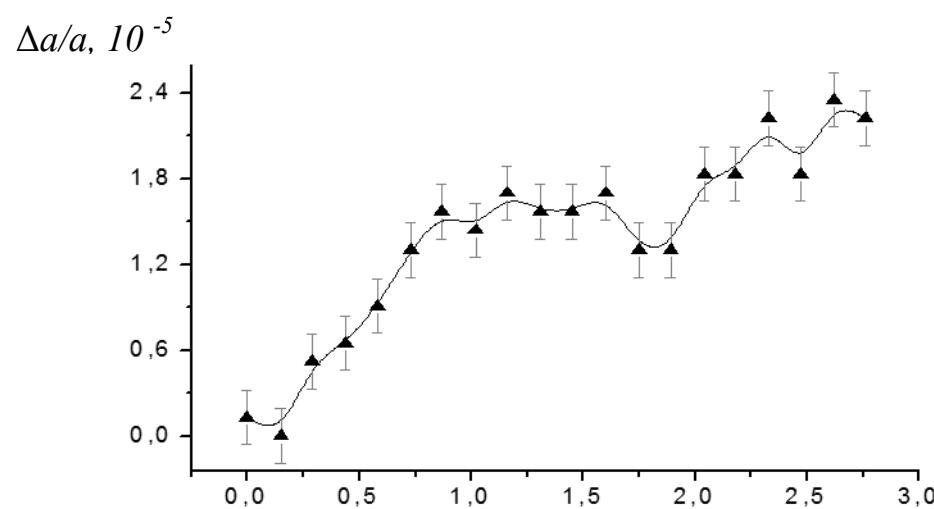
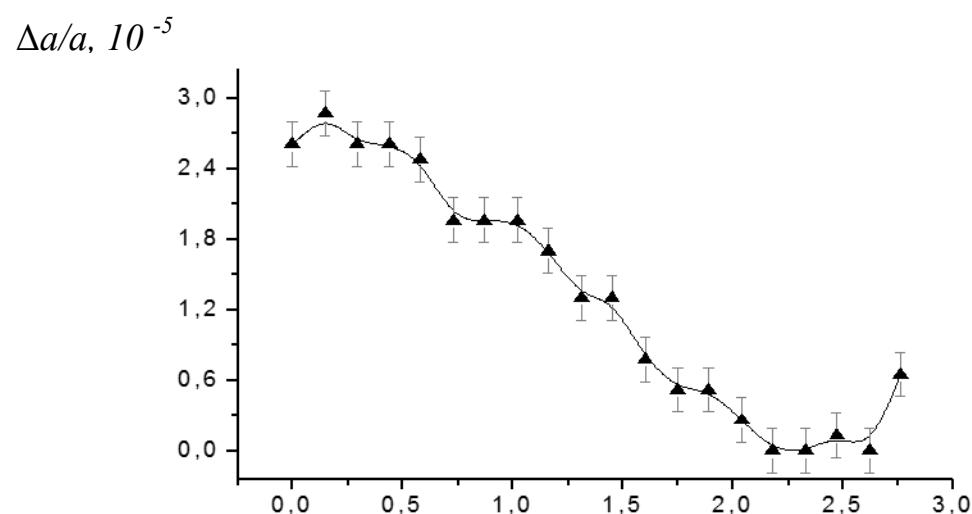
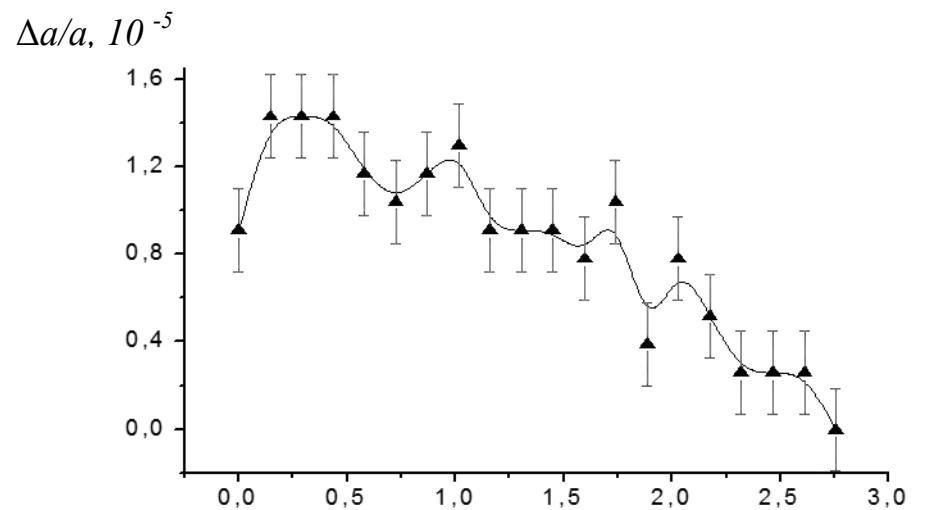


Рис. 5.33. Вариация параметра кристаллической решетки, a вдоль $[-110]$ кристаллической пластины лангатата ориентацией $[110]$, вырезанной из верхней (а), средней (б) и нижней (в) частей були.

Измерения температурных зависимостей параметра кристаллической решетки лангатата

При выполнении работы проведен анализ температурных изменений параметра кристаллической решетки и анализ изменения брэгговского угла, вызванного преломлением рентгеновских лучей на границе кристалла. Измерение температурных зависимостей проводились на примере кристалла лангатата углового расстояния Ψ_0 между дифракционными максимумами рефлексов (260), (770).

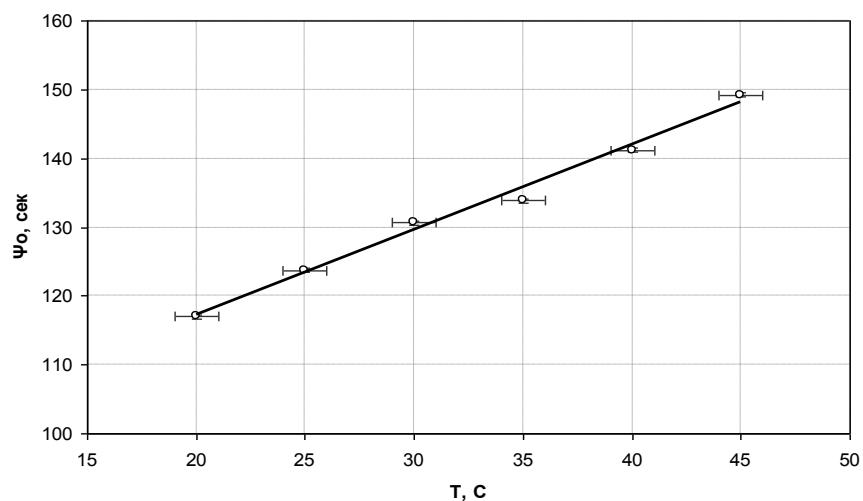


Рис. 5.34. Температурная зависимость углового расстояния между рефлексами (260-770) кристалла лангатата.

При проведении расчетов абсолютных значений параметров кристаллической решетки следует учитывать преломление лучей на поверхности кристалла. Изменение угла Брэгга рассматривается как результат преломления на поверхности кристалла:

$$1 - \delta = \frac{\lambda}{\lambda'} = \frac{\cos(\theta_n)}{\cos(\theta'_n)}$$

где $1 - \delta$ – показатель преломления,

Формулу Брэгга можно переписать в виде:

$$2d(1 - \frac{4d^2}{n^2} \frac{\delta}{\lambda^2}) \sin(\theta_n) = n\lambda$$

Измерив два разных порядка отражения можно определить показатель преломления.

$$\delta = \left(\frac{\sin(\theta_1)}{n_1} - \frac{\sin(\theta_2)}{n_2} \right) / \left(\frac{1}{n_1 \sin(\theta_1)} - \frac{1}{n_2 \sin(\theta_2)} \right)$$

Проведение измерений вариации параметра кристаллической решетки в тетрагональных кристаллах парателлурита

Для пары рефлексов TeO_2 (220-371) изменение угла между максимумами интенсивности рефлексов на одну угловую секунду ($\Delta\Psi_0 = 1''$) соответствует относительному изменению параметров решетки «а» $\Delta a/a = 10^{-5}$ и «с» $\Delta c/c = 4*10^{-4}$. Таким образом, чувствительность Ψ_0 для рефлексов (220-371) к изменению «а» в 40 раз превышает чувствительность к изменениям параметра «с». Для пары (220-464) чувствительность к изменению «а» всего лишь в 3.5 раза превышает чувствительность к изменениям параметра «с».

На рис. 5.35 представлены результаты измерений углового расстояния между рефлексами (220-371) парателлурита при перемещении рентгеновского пучка по поверхности (220) образца в направлении [100] с шагом 150 мкм. Проекция рентгеновского пучка на образце составляла 150 мкм, просканированная область 15 мм. Угловое положение (координата) максимума интенсивности каждого рефлекса и ошибка определены

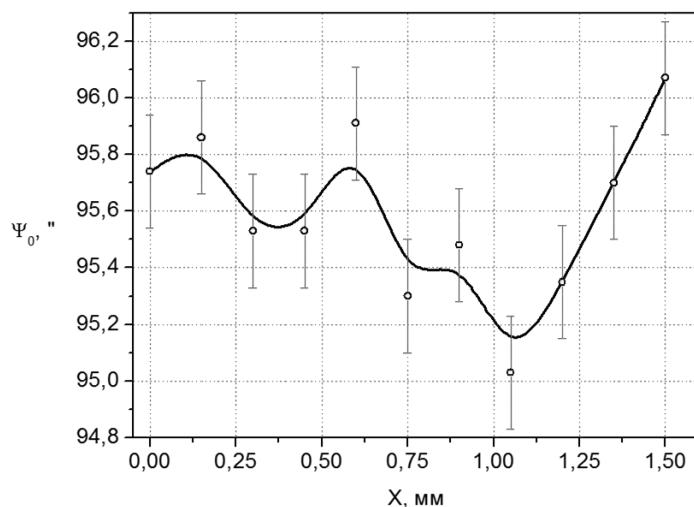


Рис. 5.35. Зарегистрированная в эксперименте зависимость углового расстояния Ψ между квазимноговолновыми рефлексами кристалла парателлурита (220)-(371) вдоль направления 100, с шагом 150 мкм.

«гауссовой» аппроксимацией КДО рефлексов.

Зарегистрированное в эксперименте изменение углового расстояния Ψ_0 позволяет изучать характерное соотношение параметров кристаллической решетки « a » и « c » вдоль поверхности образца по направлению сканирования. Поверхность, изображенная на рис. 5.36, получена в результате численных расчетов и представляет собой множество решений трансцендентной функции отражающей зависимость относительного изменения параметров « a » и « c » от Ψ_0 .

Расчеты показывают, что при относительном изменении параметра решетки « a » $\Delta a/a = 10^{-5}$ угловое расстояние между рефлексами (220-371) изменяется на одну угловую секунду ($\Delta \Psi_0 = 1$), изменению параметра « c » $\Delta c/c = 10^{-5}$ будет соответствовать ($\Delta \Psi_0 = 0,025$). Таким образом, угловое расстояние между дифракционными максимумами рефлексов (220-371) практически не чувствительно к малым изменением параметра « c », относительные изменения которого вплоть до 10^{-4} не превышают ошибку определения Ψ_0 .

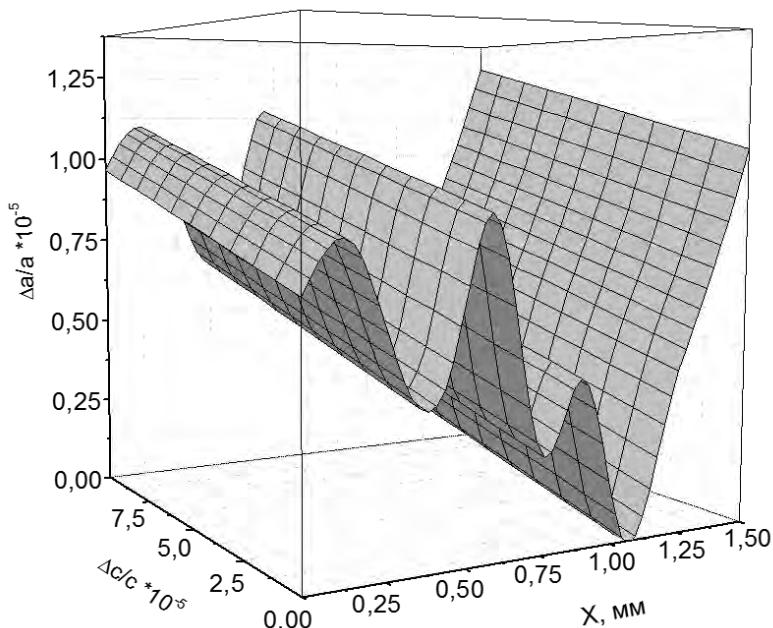


Рис. 5.36. Соотношение параметров решетки a и c вдоль поверхности (110) пирателлурита, рассчитанное на основе экспериментально зарегистрированного изменения углового расстояния Ψ_0 между рефлексами (220)-(371).

На рис. 5.37, представлено относительное изменение параметра кристаллической решетки «а», вдоль поверхности грани (110), рассчитанное на основании экспериментальных данных.

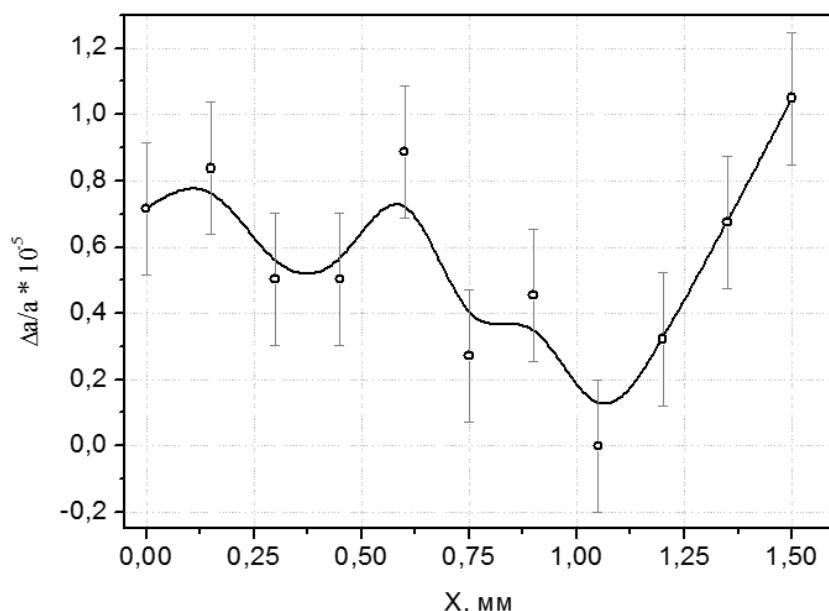


Рис. 5.37. Относительное изменение параметра кристаллической решетки парамеллурита. Поверхность (110), направление [100].

На рис. 5.38 представлена зависимость относительного изменения

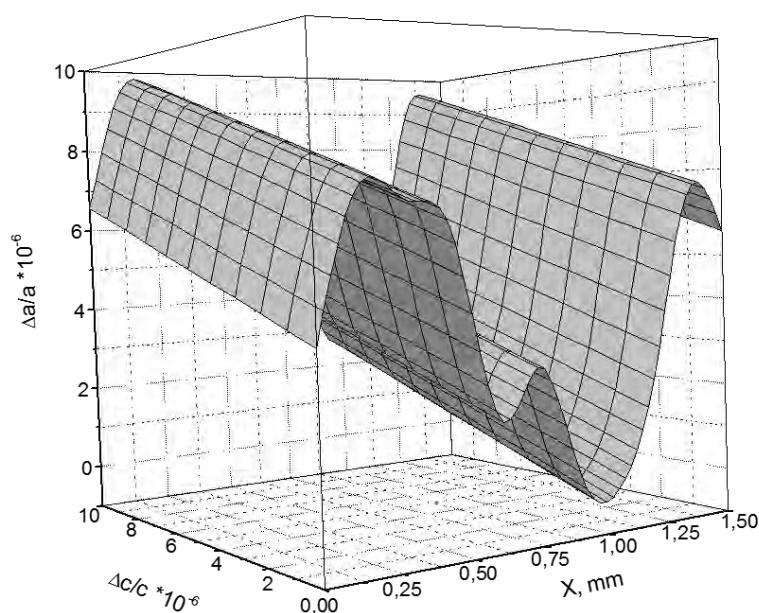


Рис. 5.38. Соотношение параметров решетки a и c вдоль поверхности (110) парамеллурита, рассчитанное на основе экспериментально зарегистрированного изменения углового расстояния Ψ_0 между рефлексами (220)-(464).

параметров «а» и «с» от углового расстояния Ψ_0 рефлексов (220)-(464).

Определение предельного пространственного разрешения методики измерения параметра кристаллической решетки на основе квазимноговолновой рентгеновской дифракции

Теоретические ограничения на минимальный размер проекции рентгеновского пучка складываются из геометрии пучка, геометрии съемки, угловой расходимости рентгеновского пучка, глубины экстинкции и максимальной интенсивности рентгеновского излучения.

Эксперименты по оценке минимального разрешения были проведены для трехкристального рентгеновского спектрометра. Источник рентгеновского излучения – рентгеновская трубка Seifert DX-Mo12×0,4-S 3kW ($M_{K\alpha 1}$). Для измерения был выбран режим близкий к максимальному (60кВ*40mA). Схема эксперимента точно соответствовала рис. 5.22.

На рис. 5.39 представлена схема трехволевой дифракции в кристалле лангатата для рефлексов 260 – 770. Рефлекс 770 в данном случае находится в симметричном положении. Рисунок демонстрирует уширение рентгеновского пучка при дифракции на кристалле, за счет экстинкционной составляющей. В данном случае значение имеет не пространственное разрешение метода, а область кристалла, в которой происходит дифракция.

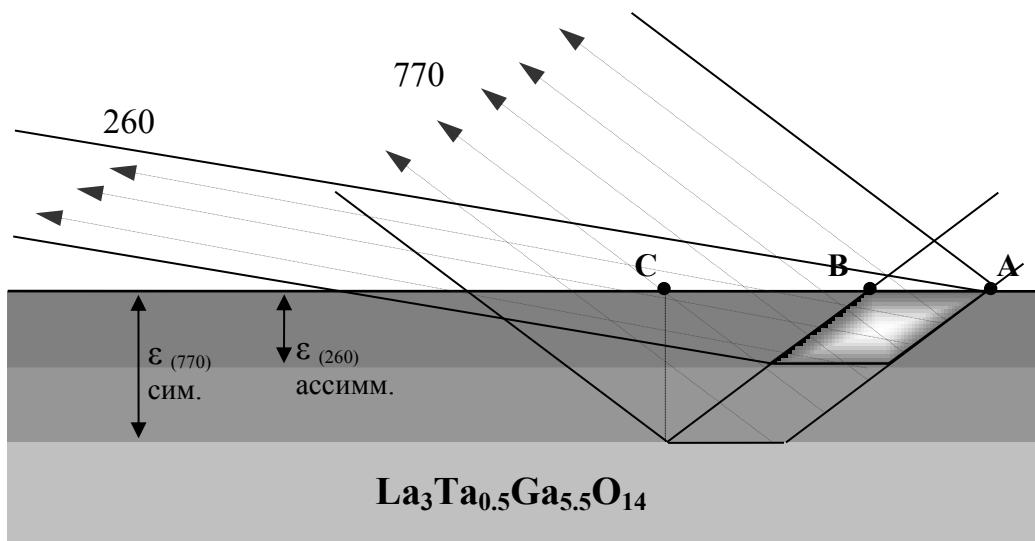


Рис. 5.39. Схема квазимноговолновой дифракции для рефлексов 260-770. AB – проекция пучка, AC – разрешение.

Для отражения 260, находящемся в ассиметричном положении, глубина экстинкции заведомо меньше и, следовательно, возможно рассматривать только уширение от симметричного рефлекса.

Угловая расходимость исходного пучка определяется используемым монохроматором, в нашем случае это кристалл Ge (440), с расходимостью пучка $4 \cdot 10^{-4}$ град. Расстояние от выходной щели до образца составляет 0,2 м, что дает уширение пучка в 1,4 мкм. Минимальная ширина выходной щели устанавливается в пределах 1 мкм, минимальный размер пучка на образце равен 2,4 мкм. Глубина экстинкции вычисляется по формуле $L_{ex} = 2\sin(\theta_B)/Re[K\chi_h\chi_{-h}]^{1/2}$. Так для молибденовой длины волны и отражения 770 получаем: $K\chi_h = (2,10 + i 5,51) \cdot 10^{-2}$, $K\chi_{-h} = (1,12 - i 5,45) \cdot 10^{-2}$, $\theta_B = 37,11^\circ$. Подставляя числа в формулу, получаем $L_{ex} = 22,6$ мкм.

В таблице 5.4 представлены результаты расчета проекции рентгеновского пучка на кристалле и разрешение, при различных размерах щели перед кристаллом, ограничивающей пучок.

Таблица 5.4. результаты расчета проекции рентгеновского пучка на кристалле

	Размер щели, мкм	Проекция АВ, мкм (рис 19)	Расстояние АС, мкм (рис 19)
770 (симм.)	1	3,8	37,6
770 (симм.)	2	5,6	39,4
770 (симм.)	3	7,4	41,2
770 (симм.)	4	9,2	43
770 (симм.)	5	11	44,8
770 (симм.)	6	12,8	46,6
770 (симм.)	7	14,6	48,4
770 (симм.)	8	16,4	50,2
770 (симм.)	9	18,2	52
770 (симм.)	10	20	53,8
770 (симм.)	20	38	71,8
770 (симм.)	30	56	89,8
770 (симм.)	40	74	107,8
770 (симм.)	50	91,9	125,8
770 (симм.)	60	109,9	143,8
770 (симм.)	70	127,9	161,8

На рис. 5.40 представлены кривые дифракционного отражения, измеренные для размеров щели перед детектором 10 мкм и ~3 мкм.

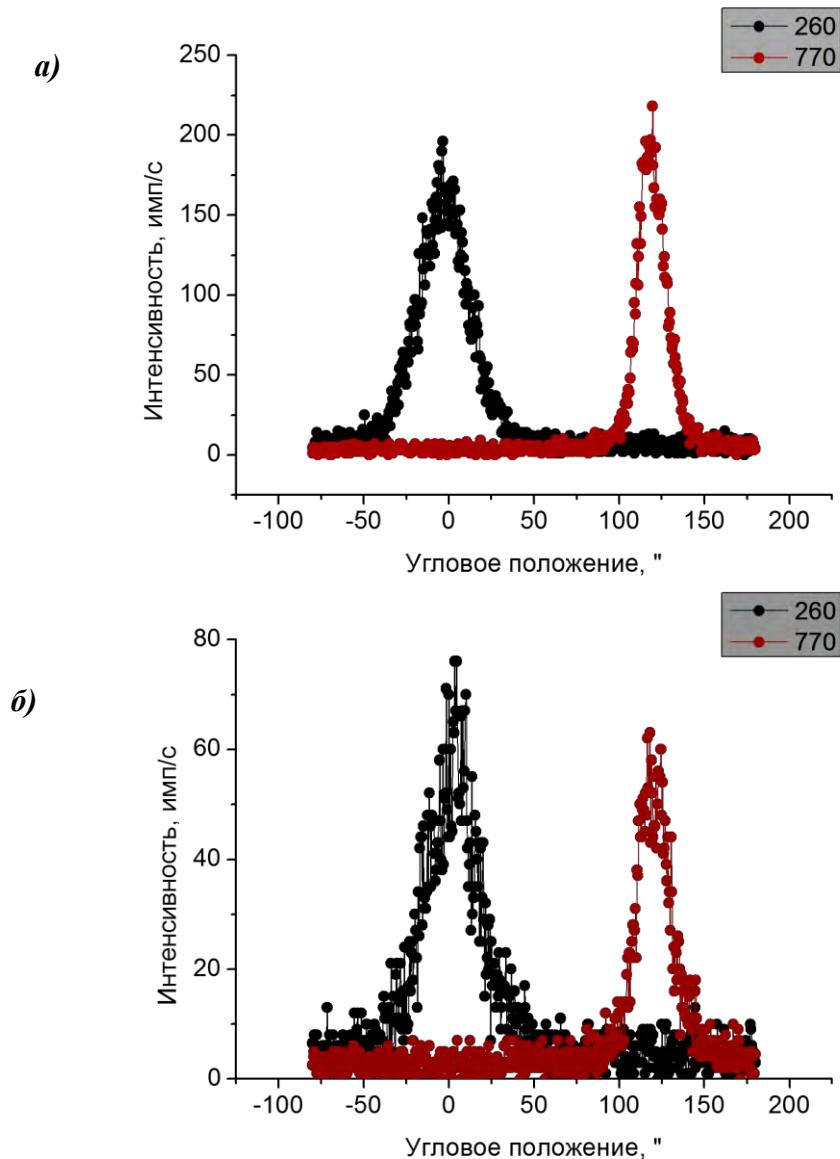


Рис. 5.40. Кривые дифракционного отражения, измеренные для размеров щели перед кристаллом 10 мкм (а) и 3 мкм (б).

Как видно из рисунка при размере щели 10 мкм, интенсивность дифрагированного пучка не велика, отношение сигнал шум $\sim 20-25$ и ошибка в определении положения пика не превышает 0,3 угловых секунды, что позволяет получить относительную точность измерения параметра кристаллической решетки 10^{-5} . При размере щели 3 мкм интенсивность дифрагированного пучка становится недостаточной, для обеспечения

точности 10^{-5} , т.к. ошибка в определении положения пика при гауссовой аппроксимации близка к 1 угловой секунде,

Ниже приведена таблица 5.5, показывающая разрешение метода (для рефлексов 260-770) при размерах щели 3 и 10 мкм. Следовательно, минимальное разрешение методики составляет ~ 50 мкм (см. таблицы 5.4, 5.5). Следует отметить, что при расчетах не учитывалась дифракционная расходимость пучка, численно равная $\sim 1,22 * \lambda / d$, где d – ширина пучка или щели, λ – длина волны рентгеновского пучка, которая при размере щели 3 мкм даст угловую расходимость пучка $3 * 10^{-5}$.

Таблица 5.5. Размеры щелей и разрешение метода.

	Размер щели, мкм	Проекция, мкм	Расстояние АС, мкм
770 (симм.)	3	7,4	41,2
770 (симм.)	10	20	53,8

В общем случае разрешение данного метода зависит от ширины проекции пучка на образце, но при пучках в несколько десятков микрон или меньших, а также при использовании сильно ассиметричного второго рефлекса при расчете пространственного разрешения надо учитывать уширение дифрагированного пучка за счет проникновения рентгеновского излучения внутрь кристалла на глубину экстинкции. Использование рефлексов с малыми брэгговскими углами и сильно асимметричных отражений приводит к ухудшению пространственного разрешения метода.

При реализации схем компланарной квазимноговолновой рентгеновской дифракции юстировка образца является одним из решающих факторов проведения прецизионных измерений. Именно от юстировки существенно зависят и точность измерений, и ошибка. Для точного азимутального позиционирования исследуемого кристалла, соответствующего компланарной геометрии дифракции, проводилось его угловое азимутальное сканирование - измерение серии кривых дифракционного отражения первого и второго рефлексов при различных угловых положениях кристалла относительно вектора дифракции симметричного рефлекса.

5.3. Трехкристальная рентгеновская дифрактометрия для измерения абсолютного значения и относительного изменения параметра кристаллической решетки

Метод с использованием кристалла-анализатора

Данный метод позволяет измерить двойной угол Брэгга исследуемого кристалла или его относительное изменение с секундной точностью, рассчитать межплоскостное расстояния d и определить параметры кристаллической решетки [363]. В отличие от двухкристальной дифрактометрии трехкристальный метод при измерении двойного брэгговского угла позволяет отделить влияние изгиба от деформации кристаллической решетки образца [364]. Схема дифракции основана на использовании трех кристаллов: монохроматора (первый кристалл), исследуемого образца (второй кристалл) и анализатора (третий кристалл). Рентгенооптическая схема трехкристального метода представлена на рис. 5.41.

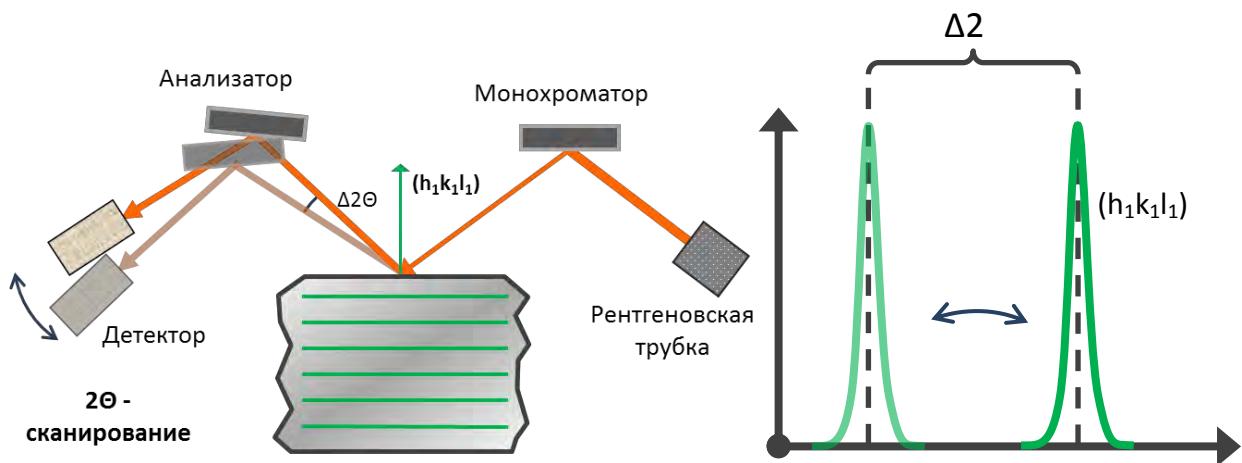


Рис. 5.41. Схема проведения эксперимента с использованием кристалла-анализатора.

Благодаря кристаллу-анализатору достигается высокая точность определения двойного угла и, соответственно, параметра решетки, обеспечивая точность измерений сравнимую с методом Бонда [365].

Анализатор, также как и монохроматор, должен обладать высоким совершенством кристаллической решетки и яркими отражениями, и в связи с этим чаще всего используются кристаллы кремния или германия. Для обеспечения бездисперсионности трехкристальной схемы углы Брэгга монохроматора, исследуемого образца и анализатора должны совладать или быть близкими. Такая схема называется параллельной, так как все кристаллы имеют близкое (из-за незначительного различия в углах Брэгга) к параллельному расположение. Анализатор устанавливается после исследуемого кристалла перед детектором в положение дифракции по Брэггу или в геометрии Лауэ. Детектор, как правило, устанавливается на одном гoniометре с анализатором, должен быть выставлен на двойной угол Брэгга для кристалла-анализатора т.е. поворачиваться вместе с кристаллом анализатором. Если детектор обладает большой апертурой и расположен близко к кристаллу анализатору, то его поворот необязателен, т.к. он вполне может захватывать дифрагированный анализатором пучок в широком диапазоне углов (в пределах нескольких градусов). Для измерения абсолютного значения двойного угла Брэгга гoniометр с установленным на нем кристаллом анализатором должен иметь возможность поворачиваться вокруг исследуемого кристалла в широком диапазоне углов. Ось поворота исследуемого кристалла и кристалла-анализатора должны быть совмещены. Следует отметить, что дифрактометры TPC и SmartLab выполнены именно по такой конфигурации – совмещение осей вращения.

Основное же преимущество трехкристального метода перед методом с использованием нескольких компланарных рефлексов заключается возможности исследовать кристаллы любых сингоний с любыми значениями параметров решетки, при этом отсутствует необходимость предварительного подбора пары квазимноговолновых рефлексов.

Настройка образца в методе с использованием третьего кристалла-анализатора является аналогичной двухкристальной схеме.

Для измерения относительного изменения параметра кристаллической решетки при изучении его распределения по длине кристалла проводилось сканирование системой детектор-анализатор в малом угловом диапазоне. Учет ошибки оборудования проводился на основе набора статистики многократного измерения положения пика в каждой точке кристалла, и после этого проводился расчет параметра решетки и погрешности измерений. Для расчета применялось выражение:

$$S\left(\frac{\Delta a}{a}\right) = \sqrt{\left(-\frac{\cos(\theta_B)}{\sin(\theta_B)}\right)^2 S^2(\Delta\theta_B)} \quad (5.19),$$

где θ_B – теоретически известное значение угла Брэгга, а $S(\Delta\theta_B)$ погрешность определения брэгговского угла.

В экспериментах по измерению локальной вариации параметра решетки проводилось сканирование вдоль поверхности кристалла-образца с фиксированным шагом при помощи микрометрической подвижки. Поскольку параметр решетки в каждой точке может отличаться, требуется подстройка исследуемого кристалла по углу θ в положение, соответствующее максимальному значению интенсивности, и подстройка анализатора. После чего производится сканирование анализатор, и определяется смещение брэгговского пика, то есть изменение угла $2\theta_B$, в каждой точке. Выбирается нулевое значение и строится кривая относительного изменения параметра решетки.

Измерение относительной вариации параметра решетки в кристалле парателлурита с использованием анализатора

При реализации экспериментов в данной работе использовался монохроматор $Si(110)$, выставленный в отражающее положение (220) или (440), углы Брэгга которых составляют соответственно $\theta_B = 10,6^\circ$ и $\theta_B = 21,6^\circ$. В экспериментах по реализации трехкристального метода, использовался

анализатор Si (440). Всего было проведено 2 серии экспериментов; в каждой серии определялась относительная вариация параметра кристаллической решетки для кристалла TeO_2 при прямом и обратном направлении сканирования. В соответствии с отражением монохроматора был использован рефлекс (440) с теоретическим значением угла Брэгга $\theta_B = 24,7^\circ$. Погрешность для трехкристального метода определялась статистически, и при пересчете в относительное изменение параметра решетки оказалась равна $S(\Delta a/a) = 1,4 \cdot 10^{-6}$.

Производилось сканирование с шагом 2.5 мм вдоль того же азимутального угла φ , но в центральной области образца длиной 30 мм. Изменение углового положения системы детектор-анализатор $\Delta 2\theta_B$ в различных точках образца переводилось в значения относительного параметра решетки по формуле (5.19). Сканирование было выполнено 2 раза для контроля повторяемости эксперимента, результат показан на рисунке 5.43, результаты занесены в таблицу 5.6.

Рис. 5.42. Относительное изменение параметра решетки вдоль поверхности образца TeO_2 , измеренное с помощью кристалла-анализатора в прямом (зеленый график) и обратном (синий график) направлениях

На рис. 5.43 для сравнения представлен результат сканирования того же кристалла с применением методики квазимноговолновой дифракции. Оба распределения имеют схожий характер.

Таблица 5.6. – Определение относительного распределения параметра решетки методом с использованием анализатора в кристалле парамеллурита при сканировании образца в прямом (слева) и обратном (справа) направлениях.

№	X, мм	$\Delta 2\theta_B$, угл сек	$\frac{\Delta a}{a}$, $* 10^{-6}$	$S \left(\frac{\Delta a}{a} \right)$, $* 10^{-6}$	№	X, мм	$2\theta_B$, угл сек	$\frac{\Delta a}{a}$, $* 10^{-6}$	$S \left(\frac{\Delta a}{a} \right)$, $* 10^{-6}$
1	10	-1,6743	6,5	1,4	1	10	-1,3124	12,2	1,4
2	12,5	-1,8363	5,6		2	12,5	-1,1957	12,6	
3	15	-1,8740	5,4		3	15	-1,6302	11,0	
4	17,5	-1,8294	5,7		4	17,5	-2,1598	9,1	
5	20	-1,9530	5,0		5	20	-3,7028	3,4	
6	22,5	-2,3177	3,1		6	22,5	-5,1641	-2,0	
7	25	-2,9001	0,0		7	25	-4,3285	1,1	
8	27,5	-2,7428	8,3		8	27,5	-3,2895	4,9	
9	30	-1,9988	4,8		9	30	-3,6377	3,6	
10	32,5	-1,9718	4,9		10	32,5	-4,2463	1,4	
11	35	-2,8295	3,7		11	35	-3,5465	4,0	
12	37,5	-1,7349	6,2		12	37,5	-2,1685	9,0	
13	40	-1,5471	7,2		13	40	-1,5374	11,4	

Рис. 5.43. Относительное изменение параметра решетки вдоль поверхности образца TeO_2 , измеренное методом пары компланарных рефлексов в прямом (синий график) и обратном (красный график) направлениях.

Дополнения на основе двухкристальной дифрактометрии

Методы двухкристальной дифрактометрии позволяют эффективно дополнить методы квазимноговолновой дифракции и трехкристальный методы. Двухкристальная кривая несет интегральную смешанную информацию о разориентации и напряжениях и в комбинации с методами чувствительными к изменению параметра кристаллической решетки позволяет строить двумерные карты напряжений в кристалле. В настоящей работе развиты методы по исследованию напряжений кристаллической решетки на основе комплементарного использования двухкристальной, трехкристальной и многоволновой дифракции.



*Рис. 5.44. Образец кристалла парателлурита (нижняя часть були).
Видна неравномерность ростового фронта кристалла, в
результате чего нижней край були сильно искажен.*

Для исследований был выбран специфический образец TeO_2 , представляющий собой нижний срез були. Образец имеет характерную неравномерную форму кристаллизации (нижняя граница були), что дает основание сделать предположение о неравномерном распределении параметра решетки вдоль диаметра (рис. 5.44). Сканирование осуществлялось с шагом 2,5 мм, всего было проведено 18 измерений. Записывалась двухкристальная КДО рефлекса (220) парателлурита в каждой точке с угловым шагом в одну секунду. В ходе обработки данных определялись характеристики КДО, такие как угловая полуширина кривой, максимальная интенсивность пика, положение пика, интегральная

интенсивность. Однако наиболее интересными с визуальной точки зрения оказался результат, представленный на Рис. . Данное изображение представляет собой распределение интенсивности в зависимости от углового положения образца и пространственной координаты вдоль кристалла. Данный способ представления был выбран исходя из того, что в средней части образца кристаллическая структура нарушена и на КДО возникают пики, соответствующие двойникам, которые затрудняют обработку результатов. В этом случае аппроксимация становится бесполезной, так как при построении вариации параметра решетки подразумевается наличие лишь одного пика КДО. Таким образом, представление в трех координатах становится наиболее наглядным и оправданным средством анализа полученных данных.

Рис. 5.45. Трехмерный результат серии угловых сканирований второго образца парамеллурита: зависимость углового положения дифракции от пространственной координаты образца. Цветом представлена интенсивность.

Из рис. 5.45. видна форма фронта кристаллизации нижней части були, соответствующая форме кристаллической були, а также распределение дефектов вдоль фронта. В центре нижней части були наличие дефектов может быть объяснено центробежной силой, возникающей при вращении и

вытягивании затравки во время производства, а также наличием восходящих конвективных потоков расплава.

Уширение и изменение формы КДО приводит к тому, что в точках 8-11мм КДО делится на несколько пиков (рис. 5.46), каждый из которых удовлетворяет условию Брэгга при постоянной длине волны, а это означает, что в данной области присутствуют объемные дефекты, которые могут быть областями с разориентацией как по углу, так и по параметру решетки. Комплементарное применение этих методов позволяет определить тип разориентации, используя метод θ - 2θ сканирования для выявления разброса по параметру решетки в центральной части, а также метод серии θ - 2θ сканирований с фиксированной отстройкой кристалла по углу, что позволяет выявить смешанный случай, когда двойники имеют обе разориентации одновременно.

Рис. 5.46. Двойники в центре нижней части були. Каждый пик соответствует отдельной области кристалла, удовлетворяющей закону Брэгга при различном угловом положении относительно монохроматичного рентгеновского пучка.

5.4. Воздействие ультразвука на многоволновую дифракцию

Методики эксперимента

При выполнении лабораторных экспериментов по многоволновой дифрактометрии в схеме высокого разрешения из-за отсутствия возможности корректировки углового расстояния между дифракционными максимумами посредством изменения длины волны, реализация точного многоволнового взаимодействия достигается путем азимутальной отстройки экспериментальной схемы, что оказывается на угловом разрешении и чувствительности.

С помощью ультразвуковой модуляции межплоскостного расстояния $\Delta d(110)$ проводилось изучение возможностей перестройки углового расстояния квазимноговолновых рефлексов в компланарной геометрии. Схема эксперимента показана на рис. 5.47. Эксперименты проводились в геометрии Лауз-дифракции в условиях возбуждения в исследуемом образце

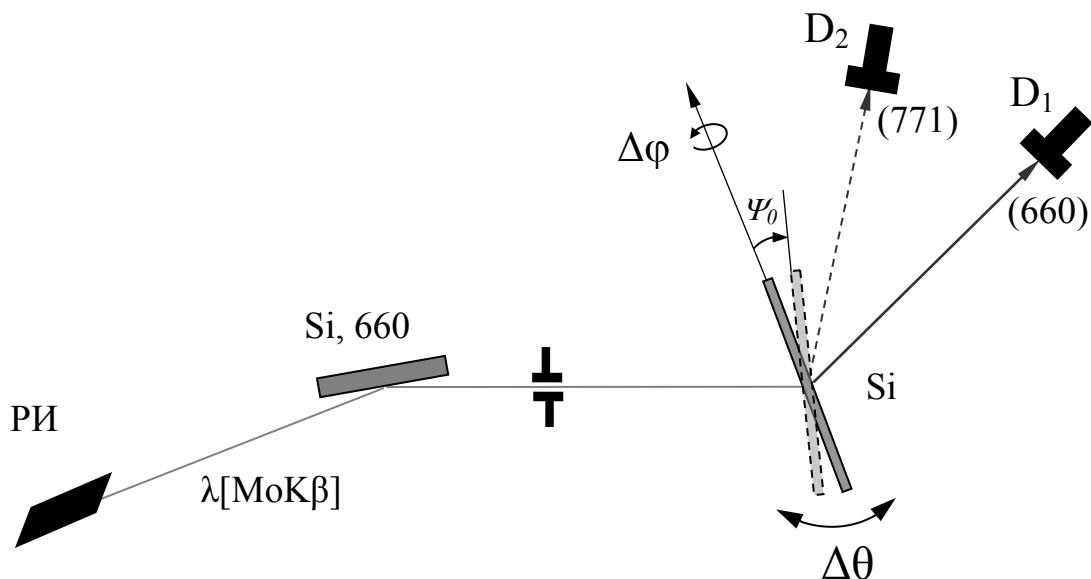


Рис. 5.47. Схема квазимноговолновой компланарной дифракции в геометрии Лауз для пары отражений Si (660, 771). РИ – источник рентгеновского излучения; Si , 660 – кремниевый монохроматор и используемый рефлекс (660); TeO_2 – исследуемый образец парамеллурита; Ψ_0 – угловое расстояние между дифракционными максимумами рефлексов (660) и (771), которые регистрируются двумя детекторами D_1 , D_2 с использованием независимых каналов счета.

продольных низкочастотных ультразвуковых колебаний с помощью схемы составного резонатора. Пара рефлексов (660 - 771), используемая для реализации квазимноговолновой дифракции в кристалле Si, была предварительно найдена с использованием алгоритмов расчета и методик поиска, представленных в разделе 5.1 настоящей главы. Для найденной пары соответствует стереографическая проекция, изображенной на рис. 5.17 (б).

В экспериментах коллинированный рентгеновский пучок от анода (Mo) рентгеновской трубы формировался при однократном отражении от симметричного монохроматора Si, 660 и ограничивался щелью перед исследуемым образцом Si. Щель позволяла выделить одну характеристическую линию K_{β} . При такой коллимации рентгеновского пучка для рефлекса (660) была реализована слабодисперсионная схема дифракции, а для второго рефлекса (771) – дисперсионная, вследствие чего КДО рефлекса 770 была существенно уширена по сравнению с двухкристальной собственной КДО.

На рис. 5.48 представлена схема, используемого в экспериментах составного рентгеноакустического резонатора. В качестве электроакустического кристалла-резонатора использовался кварцевый пьезоэлектрический преобразователь, а для дифракции рентгеновского пучка использовался кристалл Si, изготовленный в виде пластины ориентацией [100] длиной по [110],

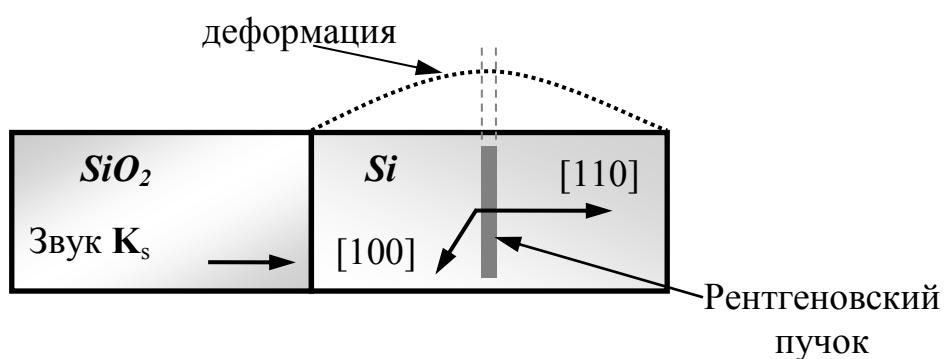


Рис. 5.48. Схема составного резонатора, позиционирование рентгеновского пучка, пространственное и временное распределения амплитуды деформации в рентгенооптическом элементе – кристалле Si и в пьезокристалле – резонаторе – SiO_2 .

С использованием системы возбуждения и контроля ультразвука, интегрированной в состав измерительного комплекса, составной резонатор возбуждался на частоте $f = 160,30$ кГц. При этом рентгеновский пучок позиционировался таким образом, чтобы распределение амплитуды ультразвуковой деформации ($\Delta d/d_0$) по его ширине (в плоскости дифракции) имело квазиоднородный характер (см. рис. 5.45). В главе 3 было показано, что в этом случае можно управлять угловым положением пика рентгеновского отражения, что в данном случае может быть использовано для регулировки взаимного углового положения пары квазимноговолновых рефлексов в компланарной геометрии дифракции.

В ходе эксперимента запись КДО исследуемого образца (рентгеноакустического кристалла) Si осуществлялась путем сканирования по малому полярному углу $\Delta\theta \approx \Psi_0$. Вывод кристалла в положение, соответствующее компланарной геометрии дифракции, осуществлялся вращением по азимутальному углу $\Delta\varphi$. Лабораторный измерительный комплекс был оснащен системой стробоскопической регистрации КДО рентгеноакустического кристалла. Система позволяла измерять интенсивность дифрагированного пучка в зависимости от фазы ультразвуковых колебаний, т.е. регистрировать КДО кристалла Si при заданной фазе колебаний составного резонатора. Подробно техника стробоскопической регистрации КДО рентгеноакустического кристалла описана в главе 2, а также в работе [**Ошибка! Закладка не определена.**].

Экспериментальные результаты

На первом этапе в экспериментах проводилось измерение серии КДО пары рефлексов (660, 771) кристалла Si (дифракция в одной и той же точке кристалла) при включенном ультразвуке в фазе колебаний составного резонатора $\Phi = 0$, что соответствует состоянию кристаллической решетки рентгенооптического элемента в отсутствие ультразвуковых деформаций.

Таким образом, было определено экспериментальное угловое расстояние Ψ_0 и ошибка его определения, которая задается, как инструментальной ошибкой, так и ошибкой аппроксимации КДО каждого из рефлексов. Полученная величина составила $\Psi_0 = (100 \pm 1)^\circ$.

На следующем этапе проводилось измерение КДО пары рефлексов (660, 771) рентгеноакустического кристалла Si в фазах колебаний составного резонатора $\Phi = +\pi/2$ и $\Phi = -\pi/2$, что соответствует состояниям максимального растяжения и максимального сжатия кристаллической решетки рентгенооптического элемента.

Измерения проводились при мощности переменного сигнала $U = 2,0$ В, и результаты эксперимента представлены на Рис. 5.49 и 5.50.

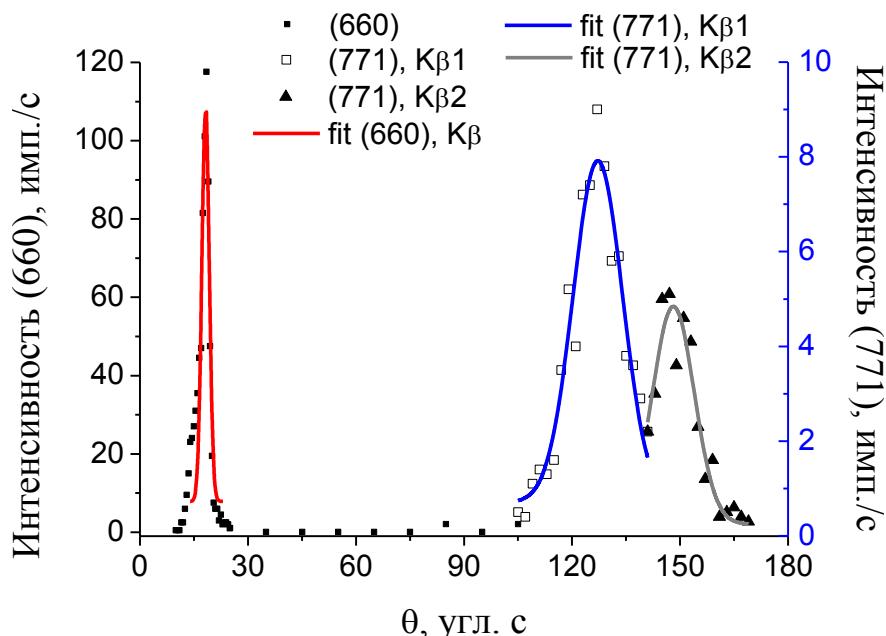


Рис. 5.49. КДО пары рефлексов (660, 771), измеренные в фазе максимального растяжения кристалла $\Phi = +\pi/2$ при мощности переменного сигнала $U = 2,0$ В.

Далее проводилось измерение КДО пары рефлексов (660, 771), аналогично предыдущему эксперименту, в фазах колебаний составного резонатора $\Phi = +\pi/2$ и $\Phi = -\pi/2$ при увеличении амплитуды ультразвуковых деформаций (амплитуда переменного сигнала составляла $U = 5,0$ В). Результаты эксперимента представлены на Рис. 5.51 и 5.52.

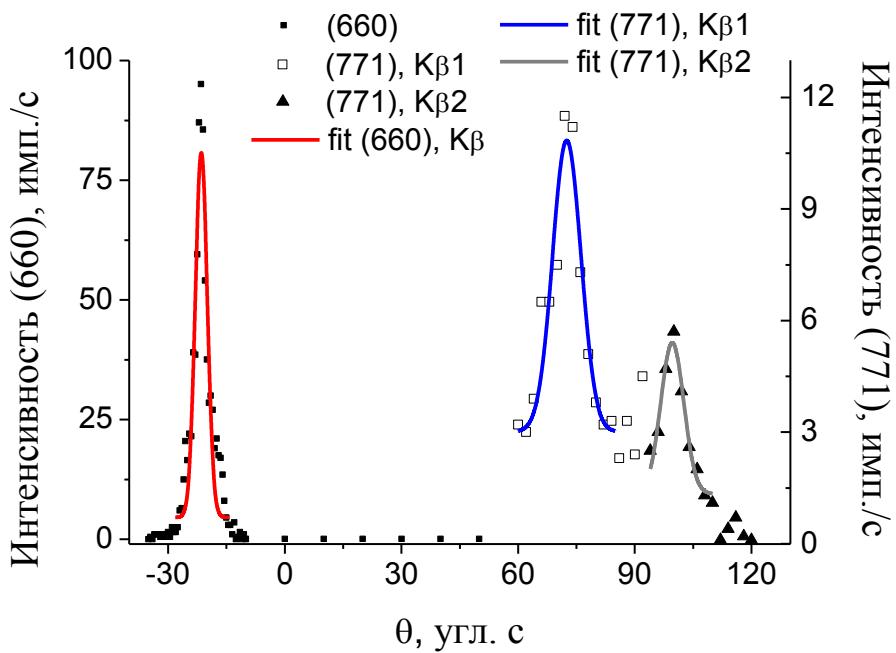


Рис. 5.50. КДО пары рефлексов (660, 771), измеренные в фазе максимального сжатия кристалла $\Phi = -\pi/2$ при мощности переменного сигнала $U = 2,0 \text{ В}$.

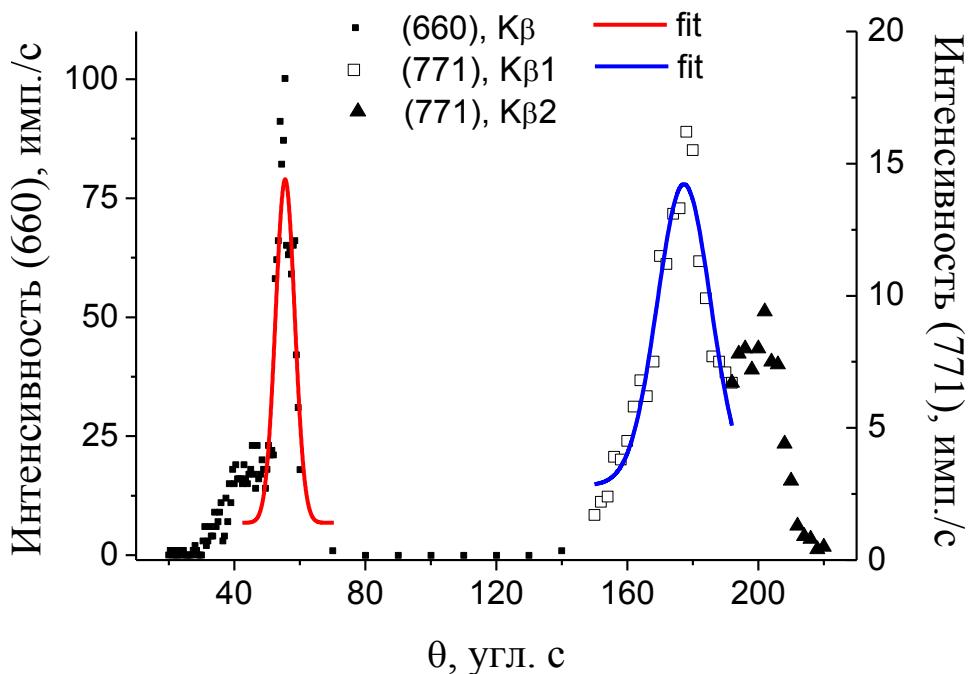


Рис. 5.51. КДО пары рефлексов (660, 771), измеренные в фазе максимального растяжения кристалла $\Phi = +\pi/2$ при мощности переменного сигнала $U = 5,0 \text{ В}$.

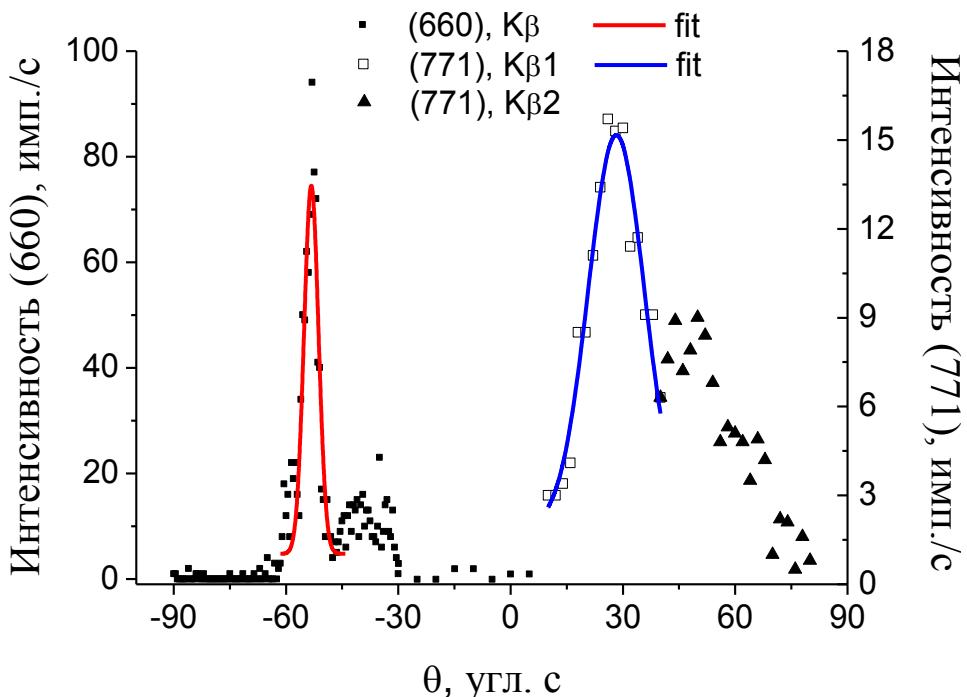


Рис. 5.52. КДО пары рефлексов (660, 771), измеренные в фазе максимального сжатия кристалла $\Phi = -\pi/2$ при мощности переменного сигнала $U = 5,0 \text{ В}$.

Полученные после обработки дифракционных данных экспериментальные величины углового расстояния Ψ_0 представлены в Таблице 5.7 и на Рис. 5.53.

Таблица 5.7 – Экспериментальные величины углового расстояния Ψ_0 , измеренные в фазах Φ составного резонатора, – фазах максимального растяжения ($+\pi/2$), сжатия ($-\pi/2$) и в отсутствие колебаний (0). Величины Ψ_0 получены при значениях мощности переменного сигнала $U = 2,0 \text{ В}$ и $5,0 \text{ В}$.

фаза Φ	$\Psi_0, "$	Мощность $U, \text{ В}$
0		0
$-\pi/2$	94 ± 1	2,0
	81 ± 1	5,0
$+\pi/2$	109 ± 1	2,0
	122 ± 1	5,0

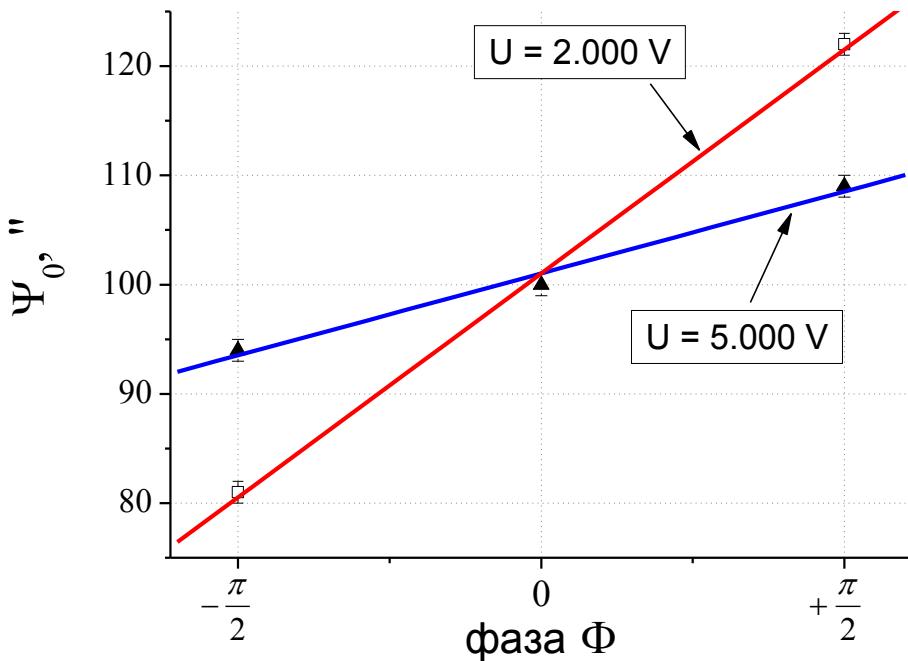


Рис. 5.53. Экспериментально зафиксированная перестройка углового расстояния Ψ_0 пары рефлексов (660, 771) в зависимости от фазы колебаний составного резонатора при изменении мощности переменного сигнала ультразвука.

На Рис. 5.54 представлено относительное изменение (при фиксированном положении пика 771 в фазе $\Phi = 0$) углового расстояния Ψ_0 при амплитуде возбуждающего ультразвукового сигнала $U = 5,0$ В для фазах максимального сжатия и растяжения 0 и $+\pi/2$. Графики КДО рефлекса (660) в фазах $\Phi = \pm\pi/2$ не показаны, чтобы не загромождать рисунок.

Рис. 5.53 и 5.54 демонстрируют возможность перестройки взаимного углового положения Ψ_0 пары компланарных рефлексов (660, 771) кристалла Si путем варьирования амплитуды ультразвуковой деформации $\Delta d/d_0$ кристаллической решетки.

В условиях данного эксперимента была достигнута амплитуда перестройки углового расстояния $\Delta\Psi_0 = (41 \pm 1)''$, что соответствует амплитуде ультразвуковой деформации $\Delta d/d_0 = 1,4 \times 10^{-3}$.

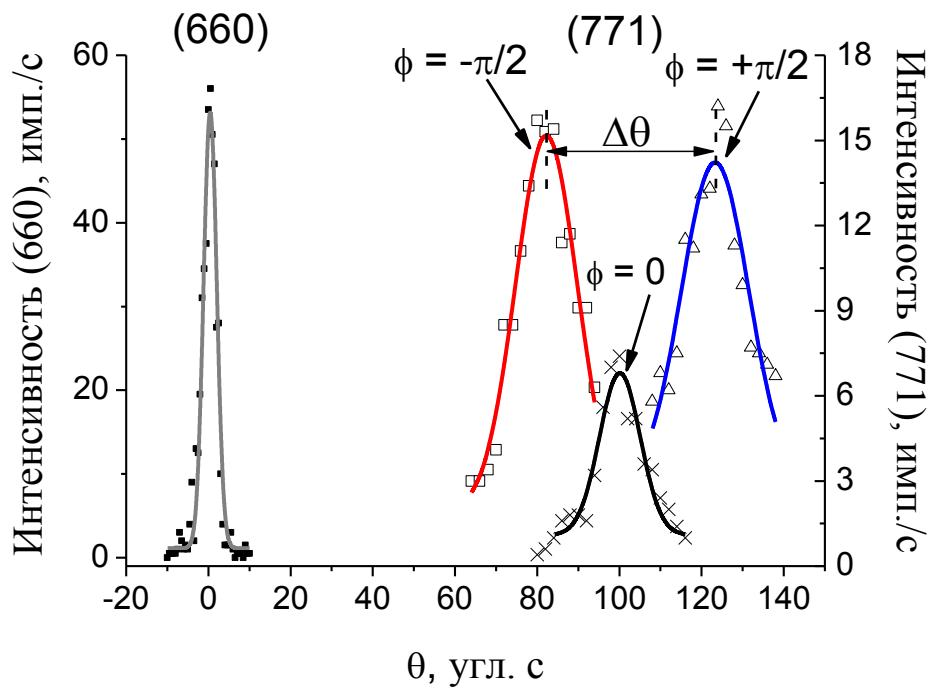


Рис. 5.54. Результаты экспериментов по изменению углового расстояния Ψ_0 квазимноговолновых рефлексов кремния $Si(660, 771)$ с помощью ультразвукового воздействия.

5.5. Выводы к 5 главе

Разработаны методические основы по изучению дефектной структуры образцов кристаллов, применяемых в работе на основе комбинации различных дифракционных методов и подходов. Многоволновая и квазимноговолновая дифракция использована в комплексе с двухволновыми двух- и трехкристальными методами. Для изучения особенностей возникающих эффектов проведены экспериментальные и теоретические исследования многоволновой и квазимноговолновой дифракции в схеме высокого разрешения. Для реализации многоволновой дифракции в лабораторных условиях разработаны методики расчета и поиска отражений. Для расширения возможностей лабораторных источников проведены исследования многоволновой дифракции в условия акустического воздействия на кристаллическую решетку. Разработаны методы подстройки лабораторной схемы многоволновой дифракции на основе рентгеноакустических взаимодействий.

В схеме двухкристальной многоволновой дифрактометрии высокого разрешения проведены исследования особенностей трехволнового взаимодействия в кристалле TeO_2 с использованием лабораторного источника рентгеновского излучения. Исследованы условия взаимодействия и многоволновые эффекты, возникающие при различных соотношениях интенсивностей взаимодействующих рефлексов для нескольких предварительно рассчитанных пар $(110, 557)$, $(220, 371)$, $(220, 464)$, $(220, 370)$, характерные различными величинами вклада виртуального брэгговского рассеяния. Обнаружены важные проявления трехволнового взаимодействия, возникающие только при сильной разнице интенсивностей взаимодействующих рефлексов, в дали от точки многоволнового взаимодействия и при наличии весьма сильного эффекта виртуального брэгговского рассеяния, которые заключаются в образовании тонкой структуры взаимодействия в трехволновой области и сильных искажениях формы кривой дифракционного отражения за счет перераспределения

интенсивностей. Показано, что форма и характер искажений кривой зависит от взаимного положения многоволновых рефлексов.

Продемонстрированы возможности и проведенных эксперименты по комплементарному использованию трехволновой дифракции и двухволновой дифракции для характеристики локальной дефектной структуры кристаллов парателлурита. В этой связи такая комбинация методов открывает широкие перспективы в изучении и визуализации и численной оценки напряжений в кристаллах.

Метод высокоразрешающей дифрактометрии, разработанный и используемый до настоящего времени для кубических кристаллов в квазимноговолновой геометрии, успешно развит и применен для исследования локальных параметров кристаллов более низких сингоний. Показано, что точность, локальность и информативность метода тесно связаны и зависят от набора компланарных отражений, выбранных для реализации схем квазимноговолновой дифракции.

С использованием лабораторного источника проведены эксперименты по излучению микромасштабных неоднородностей параметра решетки «*a*» в кристаллах ЛГТ и TeO_2 , представляющих собой перспективный материал для созданий рентгеновской акустооптики. Для кристалла ЛГТ эксперименты проведены с использованием пары отражения (770, 260) и длины волны $\lambda[\text{MoK}\alpha]$ с пространственным разрешением 140 мкм и 90 мкм; для кристалла TeO_2 с использованием пары (220, 371) и длины волны $\lambda[\text{MoK}\alpha]$ с пространственным разрешением 150 мкм; точность метода составила $\delta/a = 2,6 \times 10^{-6}$. Показано что кристаллы обладают высоким совершенством кристаллической структуры и могут быть применимы в качестве рентгенооптического элемента. Т.к. кристаллы обладают пьезоэлектрическими свойствами, то на их основе возможно изготовлений как составных, так и монолитных кристаллических резонаторов.

Интенсивности дифрагированных рентгеновских пучков показывают возможность увеличения пространственного разрешения в несколько раз при

исследовании дефектной структуры кристаллов. При повышении разрешения из-за сравнительно невысокой интенсивности лабораторных источников появляются ограничения на точность определения положения пиков используемой пары квазимноговолновых рефлексов, а, следовательно, – на точность метода.

Экспериментально впервые реализован способ управления угловым смещением пиков брэгговских отражений, участвующих в квазимноговолновом взаимодействии на основе ультразвуковой модуляции межплоскостного расстояния в кристалле. Реализована перестройка углового расстояния для пары рефлексов в компланарной геометрии квазимноговолновой дифракции, позволяющая подстраивать квазимноговолновую схему и сканировать условия многоволновой дифракции без азимутальной расстройки рентгенооптической схемы.

Перестройка осуществлена при реализации квазимноговолновой дифракции для отражений (660, 771) кристалла Si для длины волны $\lambda[\text{MoK}_\beta]$ рентгеновского излучения. Достигнута перестройка углового расстояния $\Delta\Psi_0 = (41 \pm 1)''$, амплитуда ультразвуковой деформации составляла $\Delta d/d_0 = 1,4 \times 10^{-3}$, а.

Глава 6. Воздействие электрического поля на кристаллическую и дефектную структуру

6.1. Исследуемые кристаллы

Как показано в предыдущих главах, деформацию кристаллической решетки можно эффективно использовать для управления рентгеновскими пучками. При этом существует множество способов создания деформаций в кристалле. Вызывать деформацию можно как непосредственно при помощи, например, ультразвуковых колебаний, так и посредством приложения электрического поля, используя пьезоэлектрические свойства кристалла. С другой стороны, возбуждение ультразвука в кристаллах также напрямую связано с приложением электрического поля.

На примере кристаллов парателлурита и лангатата (ЛГТ) на основе подходов предложенных в пятой главе исследовано поведение кристаллической решетки и дефектной структуры, при воздействии на пьезоэлектрические кристаллы электрического поля. Пьезоэлектрический свойства кристаллов задаются в первую очередь их структурой, поэтому вначале будут рассмотрены особенности кристаллической структуры, применяемых в исследованиях кристаллов.

Структура и свойства кристаллов семейства лантан-галлиевых силикатов

Лантан-галлиевый силикат $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ (ЛГС - лангасит) впервые синтезирован в СССР в 1983 году как оптически нелинейный кристалл для управления частотой излучения твердотельных лазеров. Несмотря на то, что лангасит оказался непригоден для этой цели, он оказался весьма интересен для исследований, в том числе из-за существования срезов, у которых температурный коэффициент частоты первого порядка при температуре 20°C равен нулю, а частота от температуры имеет параболическую зависимость [366].

В 1983 г. были измерены и опубликованы величины упругих, диэлектрических и пьезоэлектрических постоянных лангасита [367]. В

далнейшем было опубликовано несколько десятков работ, посвященных уточнению материальных констант этого кристалла [368]. Вскоре после открытия лангасита были синтезированы изоморфные ему кристаллы – лантан-галлиевый ниобат $\text{La}_3\text{Ga}_{5,5}\text{Nb}_{0,5}\text{O}_{14}$ (ланганит) и лантан-галлиевый танталат $\text{La}_3\text{Ga}_{5,5}\text{Ta}_{0,5}\text{O}_{14}$ (лангатат), которые вместе с лантан-галлиевым силикатом называют кристаллами семейством лангасита.

Кристаллы лангатата по сравнению с традиционной пьезокерамикой и кварцем имеют ряд преимуществ, таких как отсутствие фазовых переходов до момента плавления 1510°C [369], отсутствие пироэлектрического эффекта и гистерезисных зависимостей, более высокий коэффициент электромеханической связи, чем у кварца, постоянная до 600°C величина пьезомодуля d_{11} [370], высокое удельное сопротивление ($10^8 \text{ Ом}^*\text{м}$ при температуре 540°C).

Особенность строения лангасита заключается в наличии трех позиций атомов галлия: октаэдрическая ($1a$), тетраэдрическая ($3f$) (большой тетраэдр), тригонально-пирамидальная ($2d$) (малый тетраэдр), в которой в которой происходит частичное замещение атомов галлия атомами кремния (рис. 6.1). Атомы лантана занимают додекаэдрическую позицию ($3e$), кремний – тригонально-пирамидальную ($2d$) (малый тетраэдр). Два типа тетраэдров $2d$,

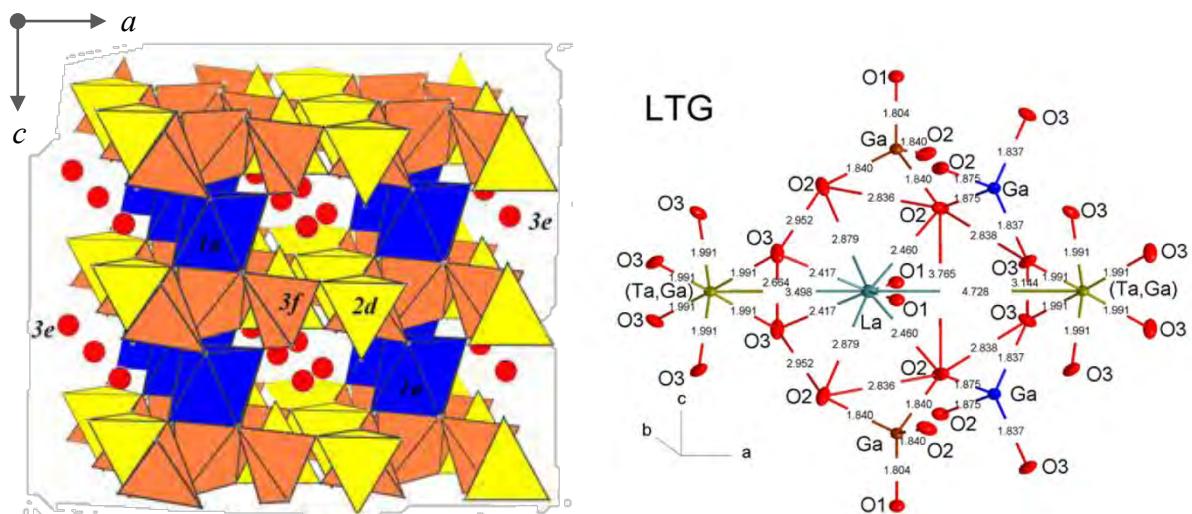


Рис. 6.1. Слева – общая кристаллическая структура лангасита.

$3e - \text{La}; 1a - \text{Ga}; 3f - \text{Ga}; 2d - \text{Ga}, \text{Si}$. Справа – структура элементарной ячейки кристалла лантан-галлиевого танталата.

$3f$ и октаэдр $1a$ представляют собой смешанный каркас структуры, в котором допускаются широкие замещения во всех позициях. Это позволило синтезировать на данный момент уже более 40 соединений разнообразных составов данного семейства [371].

Образцы, о которых пойдет речь в данной главе – кристаллы лантаногаллиевого танталата. В структуру ЛГТ входят атомы тантала Ta^{5+} , которые частично замещают в октаэдрической позиции $1a$ атомы галлия. Кристаллы имеют параметры ячейки $a = 8.228 \text{ \AA}$, $c = 5.124 \text{ \AA}$ [372], принадлежат пространственной группе Р321. Матрица пьезомодулей имеет следующий вид:

$$\begin{pmatrix} d_{11} & -d_{11} & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -d_{14} & 2d_{11} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (6.0)$$

Для системы атомных плоскостей (110) кристалла лангатата, связь межплоскостного расстояния с параметром решетки a однозначно определяется следующим образом:

$$a = \sqrt{\frac{4d^2(h^2 + k^2 + hk)}{3}} = 2d \quad (6.2)$$

В большинстве случаев для монокристаллов группы лангасита применяются стандартные приёмы обработки, такие как шлифовка и полировка, например, с применением оксида церия. В таком случае на поверхности образуется нарушенный слой и царапины глубиной до 15 микрон. При этом, не только структурные, но и физические свойства нарушенного приповерхностного слоя будут существенно отличаться от свойств кристаллической матрицы из-за образующихся дефектов. В связи с этим, для получения образцов пригодных для исследования их микроструктуры при помощи рентгеновских лучей, нарушенный слой удаляют химическим травлением. В работе для этого был выбран раствор 32% раствора соляной кислоты HCl и 66% раствор HNO_3 . В этом случае достигается наилучшее качество поверхности. Средняя скорость травления

кислотным реагентом составляет порядка 10 микрон в час при комнатной температуре.

Наличие тех или иных свойств кристалла определяется его строением и положением групп атомов друг относительно друга, однако для понимания того или иного эффекта, требуется детальное знание внутреннего строения. Например, для того, чтобы определить причину возникновения пьезоэффеkta в кристалле лангатата требуется понять взаимодействие групп атомов между собой. Так как пьезоэффеkt связan с изменением межплоскостного расстояния, а, следовательно, и параметра решетки кристалла, то рентгенодифракционный анализ в этом плане представляется достаточно перспективным методом для получения недостающих знаний о взаимодействии атомов при пьезоэффеkте.

Исследуемый образец ЛГТ

В части работы, посвященной исследованию пьезоэлектрических свойств, использовались кристаллы лангатата с размерами $16 \times 10 \times 0,2733$ мм., X -срез. Образец был предварительно протравлен в растворе царской водки (66% раствор HNO_3 и 32% раствор HCl) для снятия нарушенного слоя. При помощи микроскопа (рис. 6.2) контролировалось качество травления поверхности образца для дальнейшего нанесения на грани (110) проводящего слоя Au с подслоем Cr , выполняющего роль электродов для создания однородного во всем объеме образца электрического поля, направленного перпендикулярно срезу образца вдоль оси x . Поскольку, в связи с видом пьезоэлектрической матрицы (формула 6.1) для тригональной сингонии лангатата, поле, приложенное таким образом, вызывает продольный пьезоэлектрический эффект, то деформация кристалла (растяжение/сжатие) происходит в том же направлении пропорционально пьезоэлектрическому коэффициенту d_{11} . Это условие и зависимость деформации кристаллической решетки от электрического поля позволяют впоследствии определить данный пьезомодуль.

Для проведения эксперимента образец был закреплен на стеклянную подложку, что позволило равномерно распределить прижимное воздействие, а также предотвратить возможный изгиб кристалла.

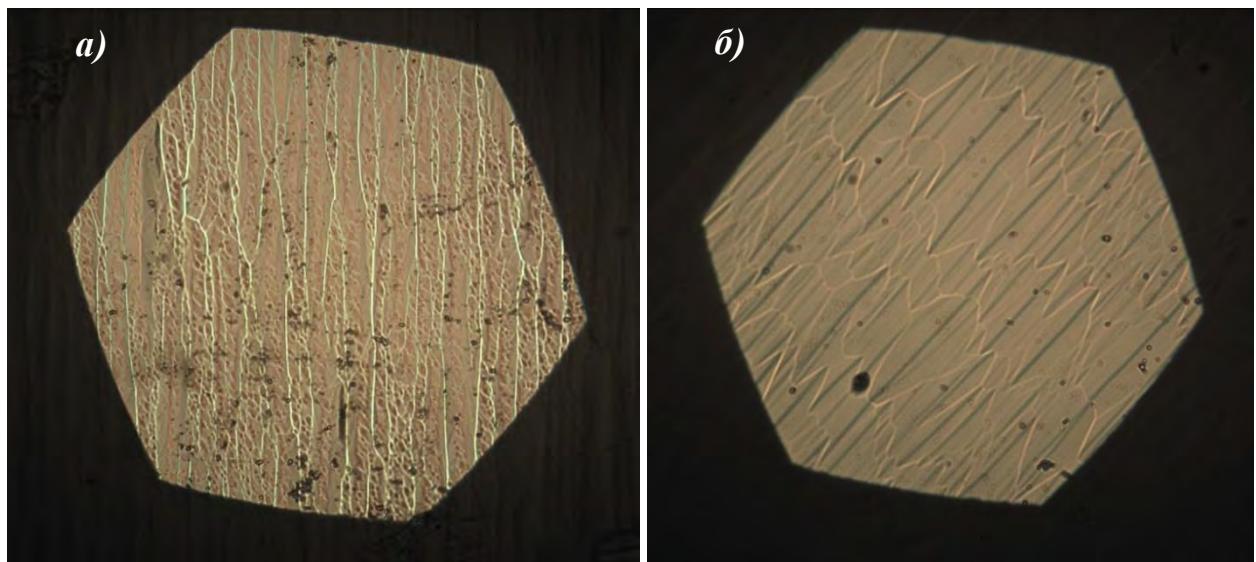


Рис. 6.2. Снимок поверхности кристалла лангатата, сделанный после травления в растворе HNO_3 (а) и в царской водке (б) при помощи микроскопа с 50-кратным увеличением в обратном световом поле.

Структура и свойства кристаллов парателлурита

Для контроля параметров оптического излучения в физике используется явление дифракции света на поверхностных акустических волнах. Взаимодействие света и ультразвука находит применение в оптоэлектронике и оптической обработке информации, а акустооптические устройства, основанные на данном принципе, успешно используются в таких областях как спектроскопия, лазерная техника, медицина, экология, астрономия и т.д., обеспечивая работу начиная с ультрафиолетового, заканчивая ближним и средним инфракрасным диапазоном оптического спектра. Такие приборы зачастую содержат в своей основе кристаллы с нелинейными характеристиками. Одними из наиболее используемых для данных целей являются пьезооптические монокристаллы парателлурита. Этот материал обладает высоким значением параметра акустооптического качества $M_2 = 1.2 \cdot 10^{-15} \text{ с}^3/\text{г}$, что позволяет использовать относительно небольшие

амплитуды управляющего сигнала в устройствах на парателлурите [373]. Еще одной примечательной особенностью является достаточно выраженная анизотропия упругих свойств [374]. Так, модуля Юнга, отличается в направлениях x и z на порядок [375, 376, 377]. Парателлурит характеризует и крайне низкая скорость распространения сдвиговых акустических волн вдоль кристаллографического направления 110, равная 616 м/с, в то время как эта же скорость вдоль направлений 100 и 010 в пять раз выше - 3050 м/с [378]. Коэффициент поглощения акустических волн в зависимости от направления меняется в пределах от 10 дБ/см до 300 дБ/см. Имеет место корреляция анизотропии поглощения гармонической высокочастотной звуковой составляющей с распределением в пространстве ангармонизма тепловых колебаний атомов.

Диоксид теллура при нормальных условиях может существовать в двух фазах: $\beta\text{-TeO}_2$ (теллурит) – природный минерал светло-желтого цвета ромбической сингонии и синтетический $\alpha\text{-TeO}_2$, собственно парателлурит, в виде бесцветного кристалла с более упорядоченной тетрагональной структурой (рис. 6.3). Большая часть информации о химических и физических особенностях данного материала, получена для фазы парателлурита. При комнатной температуре и нормальном атмосферном давлении кристалл $\alpha\text{-TeO}_2$ имеет структуру близкую к слегка искаженному рутилу с симметрией D_4^4 и числом формульных единиц в элементарной ячейке $z = 4$. Парателлурит не изменяет своей структуры и при нормальном давлении, и при низких температурах вплоть до 10 °К [379]. Однако, в работе [380] показано, что при комнатной температуре и повышении давления до $p = 8,86$ кБар, в парателлурите происходит переход второго рода в фазу с более низкой орторомбической симметрией (D_2^4), но сохраняет при этом число атомов в ячейке. Такой переход типичен для сегнетоэластиков. Ряд работ [14, 381, 382, 383, 384, 385] указывает на то, что парателлурит не только обладает частично сегнетоэластическими свойствами, но и является полным ферроэластоэлектриком. Помимо этого, в силу нарушенной центральной

симметрии ячейки, он, очевидно, является пьезоэлектриком и, как было упомянуто выше, пьезооптическим материалом, что есть следствие зависимости диэлектрической проницаемости от деформации.

Кристаллы $\alpha\text{-TeO}_2$ имеют параметры ячейки $a = 4.810 \text{ \AA}$, $c = 7.613 \text{ \AA}$. Температура перехода в жидкую фазу и плотность материала равны $T_{nl} = 732 \text{ }^{\circ}\text{C}$ и $\rho = 5.67 \text{ г/см}^3$. Для тетрагонального парателлурита матрица пьезоэлектрических коэффициентов обладает следующим простым видом:

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (6.3)$$

Параметр решетки выражается из межплоскостного расстояния для среза (110):

$$a = \sqrt{d^2(h^2 + k^2)} = \sqrt{2}d \quad (6.4)$$

Многочисленные исследования парателлурита позволили обнаружить его необычные акустические и нелинейные оптические свойства, получить

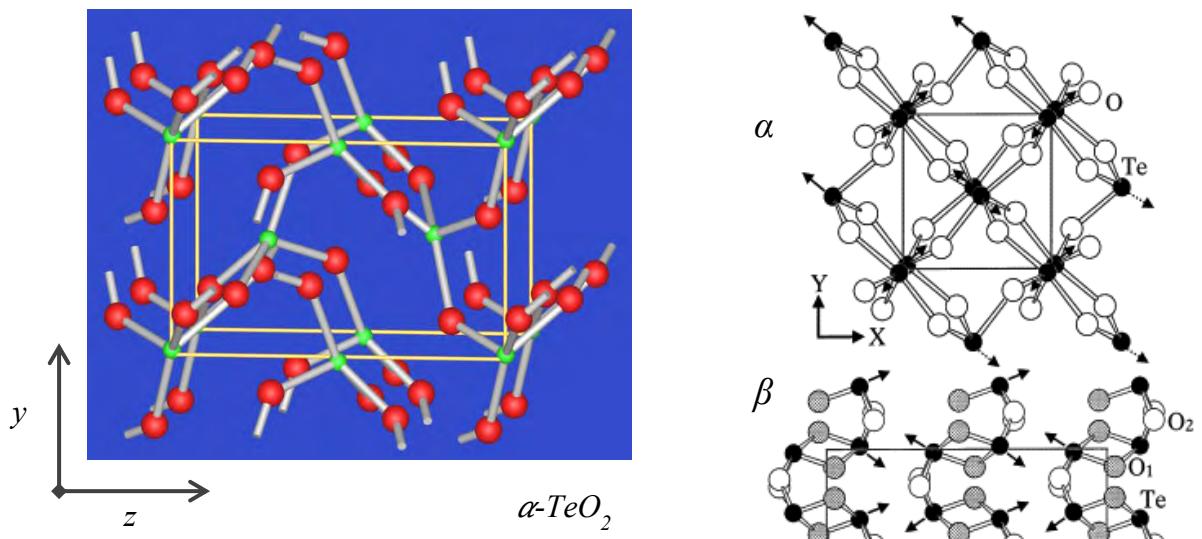


Рис. 6.3. Структура $\alpha\text{-TeO}_2$ (слева проекция yz).

Структура α - и $\beta\text{-TeO}_2$, (справа проекция xy).

характерные рамановские спектры до и после фазовых переходов, определить значения констант жесткости [12, 18], в ряде работ уточнялись компрессионные и термодинамические зависимости положения атомов и параметров решетки [15, 19, 20, 386]. Столь полный набор данных позволил

сделать парателлурит уникальным объектом для проведения исследований с целью проверки и сравнения теоретических подходов к описанию фазовых переходов.

Исследуемый образец TeO_2

Для изучения влияния электрического поля на кристаллы парателлурита было изготовлено несколько образцов с размерами $12 \times 10 \times 0,5$ мм и ориентацией поверхности (110). Предварительно отполированный кристалл был подвержен химическому травлению в растворе гидроксида калия (КОН) с целью снятия нарушенного слоя. На плоскости среза с каждой стороны был нанесен проводящий слой Au толщиной 100 Å, выполняющий роль электродов для создания однородного во всем объеме образца электрического поля, направленного перпендикулярно поверхности. В эксперименте было использовано несколько кристаллов, синтезированных в разное время. Из-за этого количественные характеристики исследуемых в работе процессов между различными образцами могут не совпадать.

6.2. Квазимноговолновая и трехкристальная дифракция в условиях Воздействия на кристаллическую структуру ЛГТ электрического поля

Методы квазимноговолновой и трехкристальной дифракции подробно обсуждались в главе 5. Здесь для удобства приведены основные особенности экспериментально реализации.

Метод квазимноговолновой дифракции основан на использовании нескольких компланарных рентгеновских рефлексов, для которых выполняются условия схожие с многоволновой дифракцией, и нахождении угла ψ между ними, величина которого зависит от параметров элементарной ячейки $a, b, c, \alpha, \beta, \gamma$. Одним из главных преимуществ метода можно выделить возможность исследования вариации параметра решетки с локальностью до десятков микрон и хорошей точностью измерения в лабораторных условиях вплоть до 10^{-5} .

Принцип трехкристальной дифрактометрии основан на точном определении двойного угла Брэгга, отвечающего за межплоскостное расстояние и, как следствие, величину параметра решетки a . Ключевым моментом является использование совершенного кристалла-анализатора, выполняющего роль очень узкой щели с апертурой пропускания рентгеновского пучка, совпадающей с собственной КДО используемого кристалла.

Эти методы позволяют с высокой степенью локальности и прецизионности проводить исследования дефектной структуры на основе измерения вариации параметра кристаллической решетки. Методы позволяют определять абсолютные и относительные значения параметра кристаллической решетки и могут быть эффективно использованы при изучении воздействия электрического поля на кристаллическую структуру: их сочетание позволяет получить взаимодополняющую информацию о локальных изменениях параметра кристаллической структуры, изучать распределение деформаций по образцу, измерять важные физические

величины и проводить анализ корреляции физических свойств с реальной структурой и дефектами.

Подготовка экспериментальной схемы для проведения измерений с применением квазимноговолновой дифракции

При реализации рентгенооптических схем многоволновой и квазимноговолновой дифракции высокого разрешения установка кристалла в отражающее положение представляет собой важную и трудоемкую операцию, основанную на предварительном подборе многоволновых отражений и определении кристаллографических ориентаций кристалла.

Для квазимноговолновой дифракции ключевым параметром, измеряемым экспериментально, является угловое расстояние ψ между дифракционными пиками двух или более рефлексов, находящихся в компланарной геометрии. Необходимое условие - угловое расстояние ψ не должно превышать значения в нескольких десятков секунд. Если данное условие соблюдено, то соответствующие рефлексы удовлетворяют условиям многоволновой дифракции, потому как осуществляется взаимодействие на хвостах дифракционных пиков нескольких систем атомных плоскостей. При значениях ψ в диапазоне сотен угловых секунд, такая дифракция уже является квазимноговолновой.

Угол ψ зависит от углов Брэгга θ_1 и θ_2 подобранных систем плоскостей и угла φ между ними, а следовательно он является функцией всех шести параметров решетки:

$$\psi = \varphi - |\vartheta_1 - \vartheta_2|, \quad (6.5)$$

После установки кристалла в отражающее положение для основного рефлекса, путем вращения кристалла находится азимутальное положение, соответствующее дифракции на втором отражении.

При этом вектор h симметричного рефлекса должен совпадать с нормалью к поверхности кристалла по определению. Вектор обратной решетки h_1 асимметричного рефлекса находится под углом к поверхности

образца, и при вращении образца вокруг нормали к поверхности он будет описывать конус с высотой вдоль неподвижного вектора h (рис. 6.4).

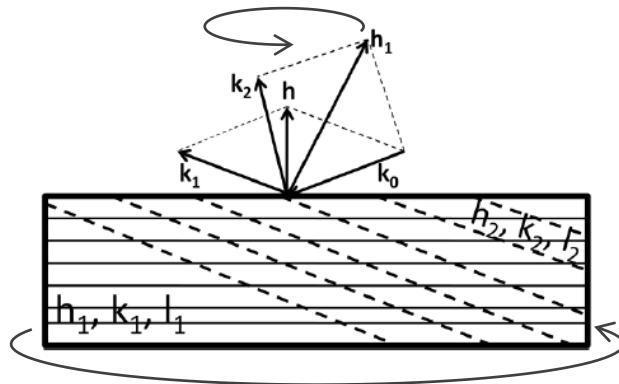


Рис. 6.4. Схема взаимной ориентации двух систем кристаллических плоскостей $(h_1k_1l_1)$ и $(h_2k_2l_2)$. Волновые векторы k_0 , k_1 , k_2 соответствуют падающему и двум отраженным пучкам рентгеновского излучения от этих рефлексов, h и h_1 – векторы обратной решетки рефлексов.

На рис. 6.5 представлена зависимость расстояния ψ между пиками и полуширины асимметричного пика от азимутального угла φ .

Рис. 6.5. График зависимости углового расстояния ψ между пиками рефлексов (260) и (770) кристалла ЛГТ (1) и полуширины асимметричного рефлекса (2) от угла φ .

В идеальном случае азимутальное положение, при котором достигается максимум расстояния между пиками, обеспечивает минимальное значение полуширины КДО ассиметричного рефлекса, но из-за возможных ограничений механических систем, юстировка представляет весьма сложную задачу, однако небольшое отклонение от указанных условий не влияет на последующие экспериментальные результаты.

В ходе эксперимента по изучению влияния постоянного электрического поля высокой напряженности на кристалл ЛГТ проводилась запись интенсивности в угловом диапазоне между дифракционными максимумами пары используемых рефлексов посредством ω -сканирования на два детектора (рис. 6.6). Возможное наличие люфтов гoniометра и других факторов приводит к возникновению экспериментальной погрешности при измерении

Рис. 6.6. КДО рефлексов (770) (красным) и (260) (синим) кристалла ланганата в условиях квазимноговолновой дифракции.

величины ψ . Для учета данной погрешности была проведена серия последовательных сканирований в статических условиях и постоянной температуре образца. Аппроксимация пиков и другая обработка результатов производилась в программе Origin. Полученная статистическая ошибка учитывалась вместе с погрешностью аппроксимации дифракционных

максимумов, зависящей от шага сканирования и соответствия формы КДО выбранной функции. Суммарная угловая погрешность $\delta\psi$ величины связана с погрешностью определения относительного изменения параметра решетки соотношением:

$$S\left(\frac{\Delta a}{a}\right) = \frac{\delta\psi_0}{|tg\vartheta_{B1} - tg\vartheta_{B2}|} \quad (6.6)$$

Схема эксперимента показана на рис. 6.7. В эксперименте по исследованию параметров пьезоотклика кристаллов ЛГТ важной задачей оказалось правильное закрепление кристалла. Были опробованы различные кристаллодержатели, образец закреплялся при помощи торцевых и магнитных зажимов, крепление специальную смолу и прочие способы. Из-за своей небольшой толщины образец легко деформируется под действием внешних сил со стороны крепления, что крайне чувствительно для КДО. Заметные деформации вызывают даже сами зажимы и контакты, припаянные

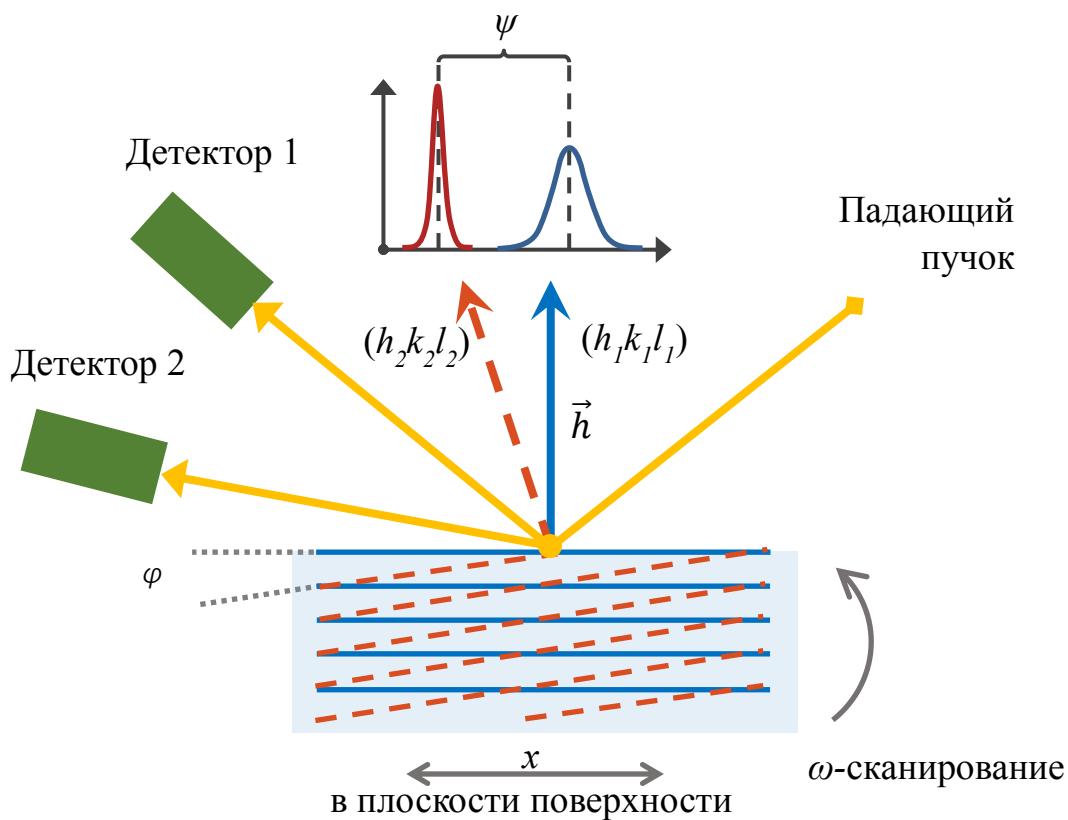


Рис. 6.7. Схема проведения эксперимента методом с использованием пары компланарных рефлексов.

к торцам кристалла, что приводит к нестабильности его положения за время эксперимента. С другой стороны, закрепление кристалла должно быть достаточным, чтобы избежать разъюстировки в процессе эксперимента. Наиболее стабильного крепления удалось добиться благодаря специальных использованию эластичных ниток, которыми кристалл прикреплялся к ровной стеклянной подложке. Выбиралась такая конфигурация, которая оказывала минимальное механическое воздействие, при этом плотно удерживала бы образец, не допуская разъюстировку и движение кристалла во время измерений. К поверхности кристалла с нанесенными электродами при использовании сплава Вуда с низкой температурой плавления 68.5 °С были припаяны серебряные токопроводящие контакты.

Проводилось сканирование с фиксированным шагом по поверхности кристалла, реализуемое при помощи микрометрического подвижки. На электроды подавалось постоянное напряжение, после чего записывались пики дифракционного отражения, и определялось расстояние между ними с приложенным полем и без него. При этом важно, чтобы температура кристалла оставалась неизменной. С этой целью осуществлялся контроль температуры кристалла с помощью термопары. Расстояние между пиками без приложенного к образцу поля и после подачи разности потенциалов на его поверхность для всей просканированной поверхности кристалла через специально разработанную компьютерную программу численно переводилось в значение параметра решетки, используя формулы структурной кристаллографии. По изменению углового расстояния рассчитывалась относительно изменение межплоскостного расстояния кристалла вдоль направления 110 (продольный пьезоэффект), по которому затем определялся соответствующий пьезомодуль d_{11} по формуле:

$$d_{11} = \frac{\Delta a / a}{U / l}, \quad (6.7)$$

где U – напряжение на торцах образца, а l – его толщина. $\Delta a/a$ – относительное изменение параметра решетки в направлении вектора напряженности электрического поля.

Проведение измерений с применением трехкристальной дифрактометрии

На рис. 6.8 представлена схема трехкристальной дифрактометрии. Установка настройка образца и третьего кристалла-анализатора в трехкристальной схеме подробно описана в главе 5.

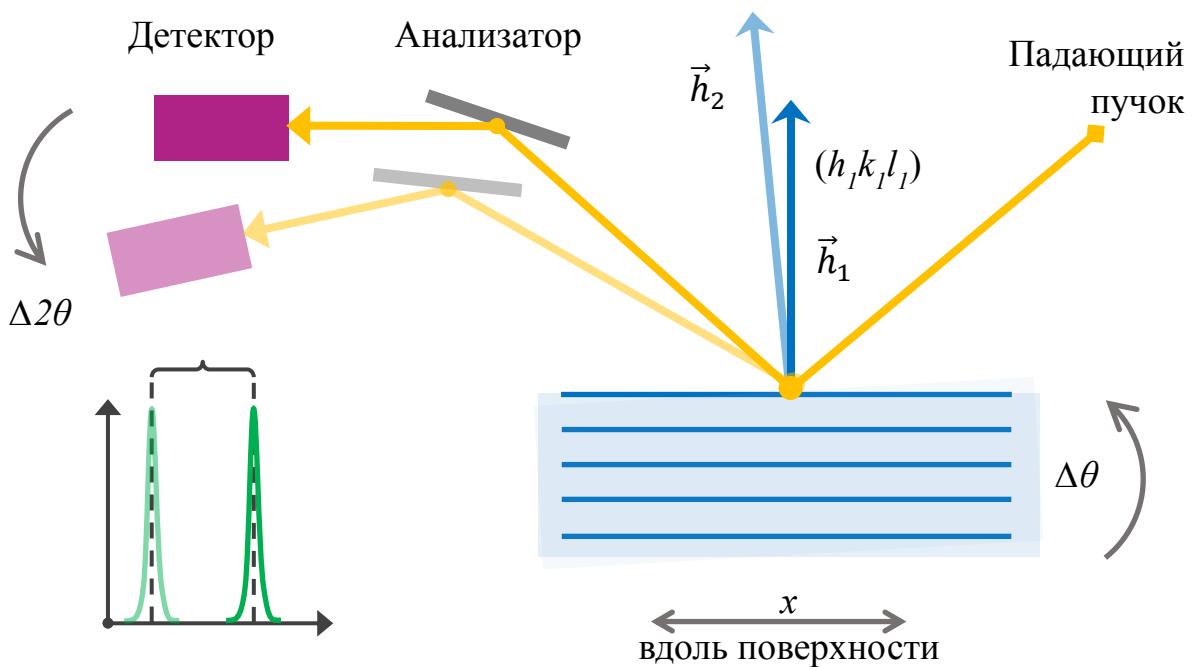


Рис. 6.8. Схема проведения эксперимента методом с использованием кристалла-анализатора.

В ходе эксперимента проводилось θ - 2θ - сканирование посредством поворота образца и системы детектор-анализатор в малом угловом диапазоне. В процессе сканирования записывались пики КДО с приложенным полем и без него, после чего определялось смещение брэгговского пика, то есть изменение угла $2\theta_B$, в каждой точке. Изменение положения пиков с полем и без поля по формуле (6.9) с учетом соотношения (6.2) переводилось в значения относительного изменения параметра решетки,

исходя из которых, используя формулу (6.7), в каждой точке вычислялись значения пьезомодуля d_{11} .

$$d_0 = \frac{\lambda}{2 \sin \vartheta_B}, \quad d_i = \frac{\lambda}{2 \sin(\vartheta_B + \Delta\vartheta_B)} \quad (6.8)$$

$$\frac{\delta d}{d} = -ctg(\vartheta_B) \Delta\vartheta_B \quad (6.9)$$

Для учета погрешности проводилась серия экспериментов по определению стабильности и повторяемости положения пика на угловой шкале, которая затем пересчитывалась в погрешность параметра решетки по формуле погрешности косвенных измерений:

$$S\left(\frac{\Delta a}{a}\right) = \sqrt{\left(-\frac{\cos(\vartheta_B)}{\sin(\vartheta_B)}\right)^2 S^2(\Delta\vartheta_B)} \quad (6.10)$$

где θ_B – расчетное значение угла Брэгга, а $S(\Delta\vartheta_B)$ стандартное отклонение от среднего относительно него. Вдобавок, учитывалась погрешность аппроксимации, которая связана с шагом углового сканирования и несовпадением формы реальной КДО с аппроксимирующей функцией.

Результаты измерения пьезомодуля кристалла ланганата квазимноговолновым и трехкристальным методами

В части работы по изучению влияния постоянного электрического поля высокой напряженности на поведение кристаллической структуры лантан-галлиевого танталата и определению его пьезоэлектрического коэффициента d_{11} кристалла методом квазимноговолновой рентгеновской дифракции производилась запись КДО ω -сканированием с использованием компланарных рефлексов (770) ($\theta_B = 37.1^\circ$) и (260) ($\theta_B = 21.0^\circ$), для которых азимутальный угол поворота кристалла $\varphi = 0^\circ$ относительно горизонтального расположения оси x , так как индекс l Миллера равен нулю для обеих используемых систем кристаллических плоскостей. Данные рефлексы подбирались из соображений одновременного удовлетворения их условиям

квазимноговолновой дифракции и небольшого расстояния между пиками КДО в пределах нескольких десятков угловых секунд. Был использован монохроматор Si (440) с $\theta_B = 21.6^\circ$. Шаг перемещения засвечиваемой рентгеновским излучением области по поверхности кристалла составлял 1 мм. Ширина проекции пучка на образец составляла 50 мкм при коллимационной щели в 30 мкм перед образцом, что в несколько раз меньше, чем шаг по поверхности кристалла. Таким образом, исключалось перекрытие областей засветки. В каждой точке проводилось измерение углового расстояния между пиками с шагом $0.5''$ как без приложенного напряжения на торцевых контактах кристалла, так и с разностью потенциалов в 2000 В обеих полярностях. Напряженность постоянного электрического поля между торцевыми гранями кристалла составляла $7.3 \cdot 10^6$ В/м. Смещение КДО при приложении электрического поля противоположных полярностей представлено на рис. 6.9.

Следует отметить, что при анализе экспериментальных данных и при расчете компоненты пьезоэлектрического тензора предполагалось, что параметры кристаллической решетки a и b равны и их равенство сохраняется также в условиях воздействия электрического поля.

Рис. 6.9. Смещение пиков КДО под действием электрического поля.

Рис. 6.10. Распределение величины углового расстояния между максимумами КДО рефлексов (770) и (260) в компланарном положении кристалла ЛГТ при напряжениях +2000 В (красный график), -2000 В (синий график), без поля (черный график).

На рис. 6.10 представлено распределение величины ψ вдоль кристалла для противоположных поллярностей электрического напряжения. На рис. 6.11 представлен расчет распределения пьезомодуля d_{11} вдоль поверхности кристалла-образца по данным изменения расстояния между пиками до и после подачи напряжения в соответствующих точках. Следует отметить, что зависимость ψ от координаты без приложенного поля связана с локальной

Рис. 6.11. Распределение пьезокоэффициента d_{11} вдоль поверхности кристалла ЛГТ, измеренное методом пары компланарных рефлексов.

вариацией параметра решетки в зависимости от точки кристалла. Профиль полученной кривой может служить отпечатком фронта кристаллизации при выращивании методом Чохральского, т.е. в данном случае очевидно присутствие структурной неоднородности и других локальных особенностей образца.

Точки, в которых не происходит изменения параметра ψ при наложении электрического поля, соответствуют краям кристалла, на которых электроды отсутствуют.

Для определения полной погрешности, необходимо учесть ошибку измерения толщины кристалла-образца, ошибку определения напряженности прикладываемого электрического поля, статистическую погрешность измерений, рассчитанную в виде стандартного отклонения от среднего и включающую в себя приборную ошибку гониометрической системы, и погрешность аппроксимации пиков. На конечный результат эксперимента влияет и температура, поскольку ее флуктуация провоцирует изменение параметров кристаллической решетки.

Коэффициент температурного расширения лангатата $\alpha_{11} = 6,02 \cdot 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$. На протяжении всего эксперимента обеспечивалась постоянная температура, а возможная неточность в ее определении была занесена в погрешность эксперимента. Суммарное значение погрешности в эксперименте по определению пьезомодуля в кристалле ЛГТ в каждой его точке составило $S(d_{11}) = 0.44 \cdot 10^{-12} \text{ м/В}$.

Среднее по точкам значение пьезоэлектрического модуля d_{11} , измеренное в эксперименте, составило $(7.0 \pm 0.6) \cdot 10^{-12} \text{ м/В}$.

Изучение характера влияния электрического поля на структуру лангатата методом трехкристальной дифрактометрии производилось с использованием рефлекса (440) ($\theta_B = 20.2^\circ$) методом θ - 2θ -сканирования с неподвижным источником излучения с шагом 0.2 секунды по углу 2θ . Был использован монохроматор *Si* (440). В условиях без электрического поля, а также при наложении поля обеих полярностей на образец той же величины,

Рис. 6.12. Смещение пиков КДО под действием электрического поля.

что и в предыдущем методе, измерялось смещение положение пика КДО (рис. 6.12). Измерения проводились с шагом сканирования 1 мм по поверхности образца, величина проекции пучка составляла 90 мкм (рис. 6.13),. По этим данным рассчитывалось смещение пика в угловых секундах. Массив

Рис. 6.13. Изменение удвоенного значения угла Брэгга рефлекса (440) в различных точках поверхности кристалла ЛГТ в отсутствии поля (черный график) и в условиях внешнего поля положительной (красный график) и отрицательной (синий) полярности, измеренное методом с использованием анализатора.

полученных смещений КДО для каждой точки поверхности пересчитывался в относительное изменение параметра решетки, и вычислялись значения пьезомодуля d_{11} (формула 6.7). В итоге получена картина распределения

Рис. 6.14. Распределение пьезокоэффициента d_{11} вдоль поверхности кристалла ЛГТ, измеренное методом с использованием анализатора.

пьезомодуля d_{11} , изображенная на рис. 6.14. Погрешность трехкристального метода сканирования, как и для предыдущего случая, определялась из суммы погрешности аппроксимации, погрешности определения толщины образца, напряженности приложенного к нему электрического поля и статистической приборной ошибки. Погрешность пьезокоэффициента оказалась равной $S(d_{11}) = 0.41 \cdot 10^{-12}$ м/В. Среднее значение пьезокоэффициента в эксперименте с использованием трехкристальной схемы сканирования составило $(6.9 \pm 0.5) \cdot 10^{-12}$ м/В.

6.3. Исследование влияния внешнего электрического поля на кристаллы TeO_2

Поведение кристалла TeO_2 при воздействии электрическим полем

Парателлурит является пьезоэлектрическим материалом с матрицей пьезокоэффициентов, указанной в (6.3). Из структуры матрицы видно, что α_{TeO_2} обладает лишь двумя равными между собой сдвиговыми коэффициентами d_{14} и d_{25} .

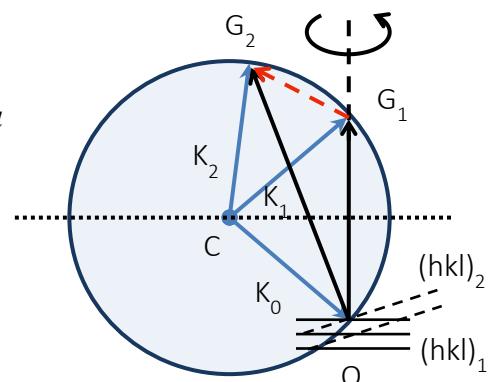
При преобразовании матрицы с учетом среза (110) для тетрагональной сингонии, что равносильно повороту декартовой системы координат вокруг оси z на 45° [387]. Это говорит о том, что при подаче постоянного электрического поля, направленного по нормали к атомным плоскостям (110), будет происходить сдвиговая деформация кристаллических ячеек в направлении перпендикулярном направлению вектора электрической напряженности (проекция (110) элементарной ячейки переходит из прямоугольной формы в параллелограмм). Соответственно, изменения расстояния между плоскостями (110) не происходит, а изменение углов кристаллической ячейки приводит к развороту плоскостей вокруг нормали к (110).

Пьезоэлектрический эффект изначально планировалось измерить в парателлурите в многоволновой дифракции с использованием симметричного и асимметричного рефлекса (например (220) и (371)). Исходя из изменения многоволновой области, вызванной изменением углового положения рефлекса (371) относительно неподвижного (220) можно определить угол разворота соответствующих плоскостей, связанных со сдвиговой деформацией, и оценить величину коэффициента d_{14} .

Также для расчетов планировалось использование методов квазимноговолновой и трехкристальной рентгеновской дифрактометрии, отработанных на модельном образце лантан-галлиевого tantalата.

Многоволновое взаимодействие возникает (рис. 6.15) вследствие двойного переотражения рентгеновского пучка, удовлетворяющей условию дифракции для плоскостей с одним набором индексов Милера через связующий рефлекс в направлении дифракции другого рефлекса с последующей их интерференцией. Благодаря наличию данного связующего

Рис. 6.15. Схема возникновения многоволновой дифракции на примере сферы Эвальда. K_0 – падающая волна, K_1 и K_2 дифрагированная волна от плоскостей $(hkl)_1$ и $(hkl)_2$ с векторами обратной решетки OG_1 и OG_2 соответственно. G_1G_2 – связующий рефлекс.



рефлекса, влияние, которое вносят несовершенства кристаллической структуры, резко отражается на форме области многоволнового взаимодействия, что доказывает крайне высокую чувствительность метода при исследовании реальной макроструктуры кристаллического материала.

В многоволновой дифракции отражение пары компланарных рефлексов реализуется одновременно, а влияние пьезоэлектрического эффекта вызывает сдвиг пары пиков КДО друг относительно друга, как и в случае квазимноговолновой дифракции, что также позволяет рассчитывать величину пьезоотклика. Из рис. 6.16 для кристалла лантан-галлиевого танталата видно,

Рис. 6.16. Изменение характера многоволнового взаимодействия рефлексов (770) и (260) лантан-галлиевого танталата при наложении электрического поля.

что рефлекс (260) изменяет свое положение относительно симметричного (770), вслед за чем перемещается область многоволнового взаимодействия по кривой качания при подачи электрического поля на образец.

Точность такого подхода для определения величины пьезомодулей уменьшается из-за разьюстировки одного из рефлексов, в то время как в квазимноговолновом случае оба рефлекса имеют наименьшую полуширину. Но многоволновая дифракция оказывается более чувствительной, например, к пьезомодулям, отвечающим за сдвиговую деформацию.

Эксперимент осуществлялся на дифрактометре (TPC), схема которого представлена в главе 2 на рисунке 1.1. Однако было обнаружено не типичное для пьезоэлектриков уширение пиков КДО при подаче постоянного электрического поля высокой напряженности $\sim 10^6$ В/м на значение, превышающее исходную полуширину и зависящее от напряженности электрического поля (рис. 6.17.). Данный эффект приводил к размытию многоволновой области взаимодействия рефлексов, одновременно находящихся в отражающем положении, а также делал невозможным точное определение положения пиков.

Рис. 6.17. Изменение характера многоволнового взаимодействия рефлексов (220) и (371) парамеллурита при наложении электрического поля.

Подробнее зафиксировать процесс изменения КДО при различных условиях позволила стандартная двухкристальная схема рентгеновской дифракции, реализованная на универсальном спектрометре ТРС. Был

использован монохроматор Si (440), кристалл TeO_2 выставлялся на близкий по углу монохроматора рефлекс (440) с $\theta_B = 20.1^\circ$. На кристалл подавалась разность потенциалов с высоковольтного источника напряжения. Таким образом были проведены различные серии ω -сканирований и получен набор экспериментальных данных, представленный на рис. 6.18.

Рис. 6.18. КДО рефлекса (440) парамеллурита в различных точках поверхности образца при фиксированном напряжении 1000 В на обкладках.

Форма кривой дифракционного отражения при полях больших напряженностей имеет сложный профиль, состоящий из множества отдельных пиков. При повышении напряжения отдельные пики расходятся на большие угловые расстояния друг от друга, между ними появляются новые пики, которые затем тоже расщепляются. Причем в каждой точке поверхности кристалла при смене полярности на противоположную форма кривой изменяется. Профиль КДО также меняется и в различных точках поверхности кристалла при фиксированном напряжении .

На рис. 6.19 представлена общая тенденция увеличения полуширины рефлекса (440) образца парателлурита при увеличении разности потенциалов на обкладках. Повышение прикладываемого к образцу напряжения до 500 В приводит к расширению пика КДО в 7 раз с 10 до 70 угловых секунд. Увеличение полуширины в парателлурите происходит при обеих полярностях. При этом интегральная интенсивность отраженного пучка для каждого фиксированного положения кристалла в отсутствии и при воздействии E различается не более чем на 10% при разности потенциалов 1000 В, что соответствует напряженности поля в объеме кристалла $2 \cdot 10^6$ В/м.

Рис. 6.19. КДО рефлекса (440) парателлурита при различных напряжениях от 0 до 500 В на обкладках.

Была проведена серия экспериментов по определению полуширины пика в одной фиксированной точке в зависимости от разности потенциалов на обкладках. Максимальная приложенная разность потенциалов составляла 1500 В, что соответствует напряженности электрического поля в объеме кристалла порядка $3 \cdot 10^6$ В/м. Вид полученной зависимости аппроксимируется прямой линией (рис. 6.20). Разница между полуширинами, соответствующими двум различным полярностям при любом выбранном напряжении имела одинаковую величину в несколько угловых секунд.

Рис. 6.20. Зависимость полуширины пика дифракционного отражения рефлекса (440) от величины приложенного напряжения различных полярностей.

В отличие от лантан-галлиевого tantalата, в котором отклик на внешнее электрическое воздействие осуществляется мгновенно, для парателлурита кроме обратного пьезоэлектрического эффекта наблюдается процесс уширения пика релаксационного характера, занимающий значительное время. Была проведена серия сканирований кривых дифракционного отражения с некоторым временным интервалом, данные в виде графиков

зависимости полуширины пика (440) от времени представлены на рис. 6.21 и 6.22. Кривые аппроксимировались экспонентой. По этим данным были определены временные параметры процессов перехода полуширины КДО в

Рис. 6.21. Зависимость полуширины рефлекса (440) от времени при включении и выключении постоянного электрического поля.

Рис. 6.22. Зависимость полуширины рефлекса (440) от времени при переключении поля с одной полярности на другую.

равновесное состояние, характерные времена насыщения и релаксации составляющие порядка $\tau_{\text{насыщ}} = 3900$ и $\tau_{\text{релакс}} = 2400$ секунд соответственно.

При подаче электрического поля различного направления (смена полярности приложенной к контактам образца разности потенциалов) наблюдалась некоторая анизотропия. На графике 6.22 видно, что при смене полярности с «+» на «-» имеет место плавный процесс изменения полуширины пика. Выход на значение полуширины, характерное для данной полярности, происходит экспоненциально за время, определяемое временами релаксации и насыщения. При смене полярности в обратном направлении происходит резкое уменьшение полуширины вплоть до исходной с дальнейшим выходом полуширины на определенное значение, характерное для данной полярности и напряженности поля. Переходный процесс в этом случае занимает более длительное время.

Полученные временные зависимости указывают на то, что уширение пика напрямую не является проявлением обратного пьезоэлектрического эффекта, который осуществляется мгновенно. Для более детального понимания процессов, происходящих в кристалле под действием постоянного электрического поля, требуется определить механизм данного явления. Дело в том, что наблюдаемые широкие кривые представляют собой суперпозицию пиков с различным угловым положением, отраженных от различных по своей структуре областей кристалла. Исходя из уравнения Вульфа-Брэгга, изменение углового положение для каждого пика при фиксированной длине волны попадающего на кристалл излучения происходит либо из-за изменения межплоскостного расстояния, различного в каждой отдельной области, либо по причине разворота этих областей друг относительно друга на малые углы порядка нескольких секунд, возможен

Определение типа разориентации играет важную роль для понимания причин возникновения эффекта и дальнейшей его интерпретации. Решить данную задачу можно, применив метод трехкристальной дифрактометрии и различные методы сканирования рефлекса в обратном пространстве.

Определение типа разориентации в кристалле парамеллурита, возникающей под действием электрического поля

Метод трехкристальной рентгеновской дифрактометрии с использованием различных способов сканирования позволяет однозначно классифицировать тип структурного разупорядочения в кристалле. Сопоставление данных, полученных различными способами сканирования, дает исчерпывающие результаты для анализа процессов, происходящих в кристалле.

Наиболее простым одноосным типом сканирования является ω -сканирование, при котором КДО измеряется путем поворота образца относительно падающего пучка по оси перпендикулярной плоскости дифракции. Анализатор фиксирует угол между падающим и дифрагированным пучками (угол рассеяния), а поворот по оси ω меняет наклон вектора рассеяния в плоскости дифракции, но не меняет его модуля. Таким образом, дифракция будет осуществляться лишь для определенного выбранного рефлекса с фиксированным межплоскостным расстоянием, вектор обратной решетки которого по своему модулю совпадает с вектором рассеяния, следовательно, ω -сканирование позволяет оценить лишь угловой диапазон разориентации кристаллических плоскостей с одним и тем же межплоскостным расстоянием.

В отличие от предыдущего типа, θ - 2θ сканирование наоборот, при выбранном направлении вектора рассеяния фиксирует изменение его модуля и позволяет определять наличие в кристалле областей с различными параметрами решетки. Угол падающего рентгеновского пучка и детектирующего устройства меняется симметрично с одинаковой скоростью относительно неподвижного образца. При сканировании меняется угол детектора, значит и модуль вектора обратной решетки, а отражения от двойников с различной угловой ориентацией отсекается благодаря установленному перед детектором анализатору (или щели), существенно уменьшающему приемную апертуру.

Вышеупомянутые методы сканирования позволяют выделить смешанный случай, при котором области кристалла с различным параметром решетки могут одновременно иметь и различную ориентацию по углу. Такая ситуация возникает в случае поликристаллического образца или при наличии определенных внешних разупорядочивающих факторов. Для этого надо провести серию θ - 2θ сканирований с различной отстройкой по углу ω . Данный тип является комбинацией вышеизложенных сканирований, а отстройка обычно производится в фиксированном диапазоне углов с заданным шагом. Полученный результат в виде двумерной сетки является ни чем иным как картированием узла решетки в обратном пространстве. Направлению Q_z соответствует скан θ - 2θ , а направлению $Q_x - \omega$ скан.

В эксперименте по определению типа разориентации кристаллической структуры парателлурита, находящегося под воздействием внешнего электрического поля, было использовано сканирование кристалла по углу ω , по межплоскостному расстоянию d , реализованное посредством сканирования θ - 2θ , а также их комбинация – серия θ - 2θ сканирования с фиксированной отстройкой по ω , позволяющая выделить смешанный случай. Использование узкой щели перед детектором, с одной стороны, позволяет зафиксировать двойной угол Брэгга и выделить нужную часть пучка, но с другой стороны, для точных измерений ширина щели должна обеспечить угловую апертуру не более десятка секунд, то есть должна быть очень узкой. Более того, неровности поверхности, кривизна кристалла будут существенно влиять на точность изменения, при перемещении пучка или деформации кристалла, так как меняется траектория рентгеновского пучка, что приводит к ошибке в определении двойного угла относительно предыдущего измерения. Использование бездислокационного монокристалла Si или Ge с узкой собственной КДО позволяет повысить разрешение, а высокий коэффициент отражения такого монокристалла уменьшает потери интенсивности пучка.

Процесс настройки схемы и подготовки к эксперименту главе 5 для трехкристальной схемы. На обкладки кристалла подавалось напряжение на длительное время около нескольких часов для стабилизации полуширины КДО, которая контролировалась с помощью одного свободного детектора без щели и анализатора и нескольких последовательных ω -сканирований. Анализатор и второй детектор устанавливались в отражающее положение и в одной выбранной точке поверхности кристалла производилось такое же ω -сканирование, но в трехкристальной схеме для определения возможной разориентации по углу. Далее производилось трехкристальное θ - 2θ – сканирование в режиме поворота кристалла с одинарным шагом и детектора с удвоенным шагом для определения возможной разориентации по d , выраженной в угловой величине (рис. 6.23).

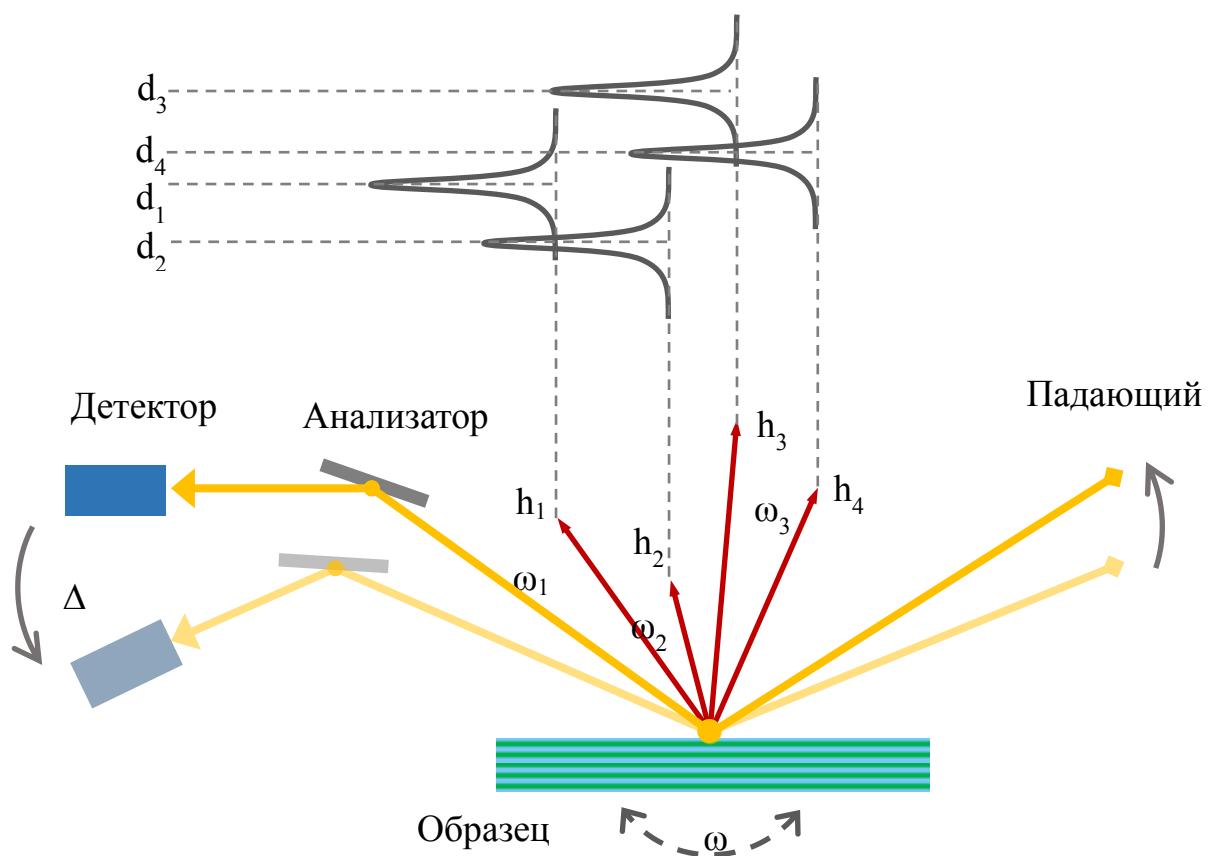


Рис. 6.23. Схема проведения эксперимента по определению типа разориентации кристаллической структуры трехкристальным методом с использованием смешанного θ - 2θ – сканирование с фиксированной отстройкой по угловому положению образца.

Смешанное сканирование позволяет определить разориентацию областей кристалла с разным параметром решетки, если каждая такая область находится под разным углом относительно поверхности. В этом случае реализуется серия последовательных измерений θ - 2θ , после каждого из которых кристалл поворачивается на определенный фиксированный угол ω . Каждому угловому положению кристалла относительно падающего пучка, удовлетворяющему дифракционному условию в любой области засветки, будет соответствовать свой вектор h , который может меняться, что сказывается на его относительном положении при каждом шаге сканирования по ω . По относительному сдвигу пика в течение серии таких сканирований можно изучать величину разброса параметра решетки с соответствующим угловым положением кристаллических плоскостей в области засветки поверхности кристалла рентгеновским пучком.

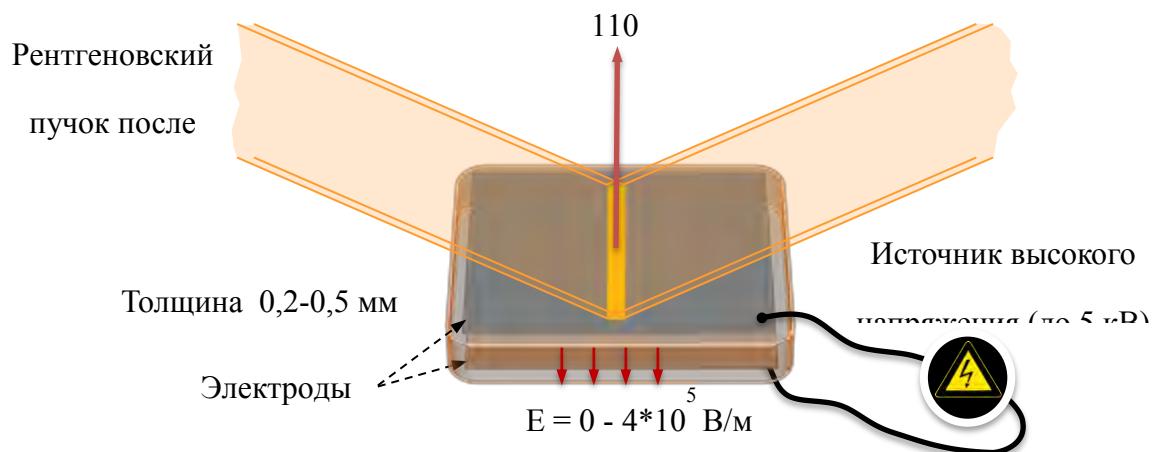


Рис. 6.24. Схема эксперимента по изучению влияния электрического поля на кристаллическую и дефектную структуру.

Для проведения эксперимента по характеризации типа разориентаций, возникающих в парателлуриде, на установке ТРС использовалась *Mo* трубка мощностью 3 кВт. Монокроматор и анализатор *Si* (440) были подобраны под рефлекс (440) парателлурида. Коллимационная щель перед образцом имела размеры $0.3 \times 10 \text{ mm}^2$, что соответствует площади проекции пучка 9 mm^2 на образец (рис. 6.24). Все сканирования производились в одной и той же точке

поверхности образца. Информация собиралась с исследуемой области, соответствующей площади проекции пучка на кристалл и зависящей от глубины экстинкции парамеллурита, которая для брэгговской геометрии составляет величину порядка микрометра. Измерения проводились при постоянной комнатной температуре и разности потенциалов 500 В на обкладках, что соответствует напряженности поля 10^6 В/м внутри образца. Перед проведением эксперимента образец находился под электрическим полем несколько часов для стабилизации полуширины пика и приведения структуры кристалла в состояние равновесия.

В первом эксперименте было проведено трехкристальное ω -сканирование образца под напряжением, определившее профиль кривой дифракционного отражения в данной точке (рис. 6.25), который повторяет профиль КДО в двухкристальной схеме без щели и анализатора. Вследствие этого оказалось, что имеет место разориентация кристаллических плоскостей по углу относительно поверхности. Данная кривая задала угловой диапазон отстройки по ω для последующего проведения серии сканирований с целью выявления смешанного случая.

Рис. 6.25. Профиль КДО парамеллурита, находящегося во внешнем электрическом поле, полученной путем ω -сканирования.

Как было показано в части работы, посвященной измерению пьезоэлектрического коэффициента d_{11} лангатата, максимальная статистическая погрешность трехкристальной схемы составляет $0.2''$. Это условие позволяет проводить серию экспериментов без подстройки с максимальной суммарной ошибкой, зависящей от количества шагов серии.

Далее была реализована серия θ - 2θ сканирований с фиксированной отстройкой кристалла по углу ω . После каждого сканирования θ - 2θ сам кристалл поворачивался на $2''$ в строго определенном направлении в таком диапазоне, чтобы перекрыть кривую дифракционного отражения, полученную при ω -сканировании, для чего было проделано 43 шага.

Полученный результат представляет собой набор острых пиков равной полуширины, находящихся в одном положении по оси 2θ (рис. 6.26). Отсутствие сдвигки данных пиков при разном угловом положении кристалла доказывает то, что разориентированные по углу области имеют одно и то же межплоскостное расстояние, следовательно, сжатие или растяжение соответствующих областей кристалла отсутствует.

Рис. 6.26. Серия θ - 2θ сканирований без учета отстройки образца по углу.

Полученный результат можно представить в координатной плоскости $(\omega, 2\theta)$ (рис. 6.27). Данное представление обычно используется для изображения карты обратного пространства. Обычно, такие карты строятся в размерности вектора обратной решетки – обратных ангстремах, но, как было доказано выше, в данном случае присутствует разориентация лишь по направлению вектора h , а не по его модулю, что позволяет провести построение в угловой шкале. Размеры пятна по обеим осям определяются собственными полуширинами ω и $\theta-2\theta$ – сканирований.

Рис. 6.27. Карта обратного пространства области кристалла: серия $\theta-2\theta$ -сканирований с фиксированной отстройкой по ω .

Более детальное картирование обратного пространства было реализовано при помощи высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии на установке SmartLab фирмы Rigaku. Данный универсальный дифрактометр обладает широким набором возможных для реализации на нем методик. На нем установлена *Cu*-трубка с врачающимся анодом и мощностью до 8 кВт. При сканировании использовался монохроматор *Si* (220) типа “бабочка” аналогичный ему анализатор. Использовались щели различного размера в зависимости от поставленной задачи. Эксперимент проводился на том же самом образце, разность

потенциалов на контактах которого составляла до 1500 В. В первом эксперименте была проведена серия ω -сканирований с фиксированной отстройкой по θ - 2θ (шаг 0.005 град.) и щелью 0.03×10 мм². Было обнаружено 3 пика с разориентацией по ω (рис. 6.28).

0 В/м

1.5×10^6 В/м

3×10^6 В/м

Рис. 6.28. Карта обратного пространства области кристалла, полученная серией ω -сканирований с отстройкой по θ - 2θ методом высокоразрешающей дифрактометрии.

Для пространственного разрешения отдельных доменов были выполнены эксперименты в которых для сбора информации с меньшей площади щель была максимально зажата до размеров 0.03×0.5 мм². Это позволило получить набор отражений от каждого отдельно развернутого кристаллита. Пространственное сканирование проводилось вдоль области засветки, соответствующей щели длиной 10 мм с шагом 0.25 мм. Экспериментальные результаты представлены на рис. 6.29.

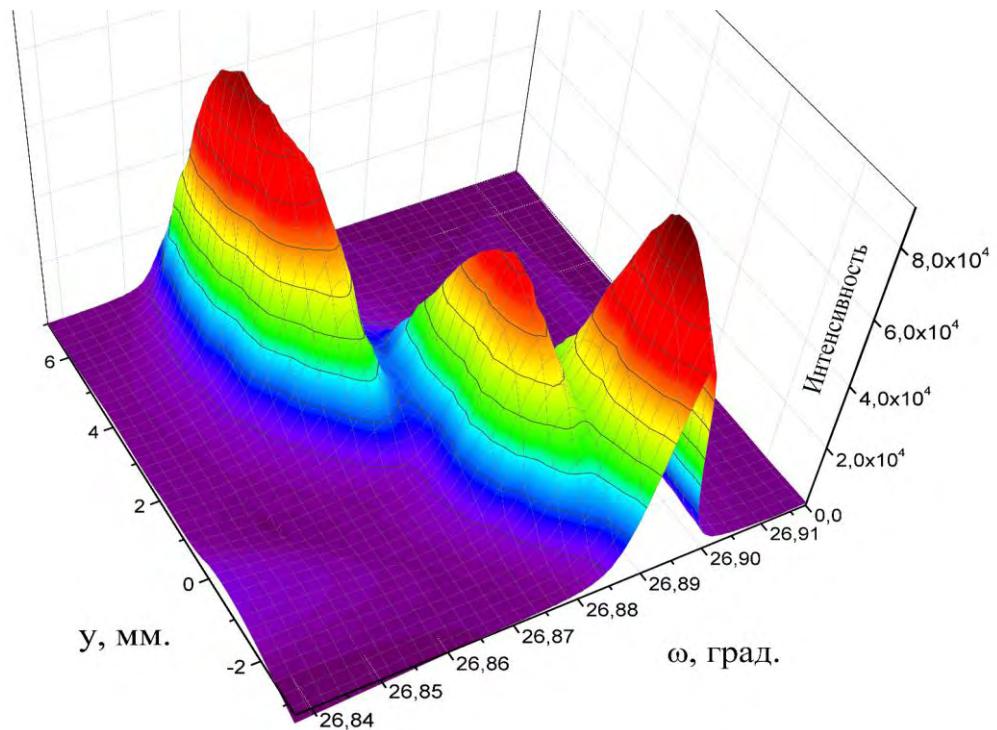


Рис. 6.29. Результат пространственного-углового сканирования доменов с узкой щелью в диапазоне 10 мм. Шаг – 0.25 мм. Шаг по ω – 0.0004 градуса. $E = 3 \cdot 10^6$ В/м.

Для уточнения возможности структурного фазового перехода в парателлурите в постоянном внешнем электрическом поле был снят спектр комбинационного рассеяния от образца. Торец кристалла (Y -срез) освещался лазером с излучением синего цвета и записывался спектр отраженного излучения. На детекторе находился светофильтр, соответствующий длине волн лазера для исключения релеевского рассеяния из результата и защиты высокочувствительного детектора от засвечивания. Полученный до и после подачи поля спектр представлен на рис. 6.30. По горизонтальной оси отложен сдвиг частоты рамановского рассеяния, выраженный через изменение волнового числа в обратных сантиметрах. Интенсивные пики на спектре, соответствующие антистоксовой компоненте рассеяния, характерны для парателлурита, находящегося в тетрагональной α -фазе. По причине того, что изменения частоты этих пиков при подаче поля не наблюдается, а также не происходит перекачки энергии между линиями рассеяния, можно сделать

Рис. 6.30. Спектр рамановского рассеяния света кристалла парамеллурита без электрического поля и с приложенным напряжением.

вывод, что фазовый состав не меняется. Изменение интенсивности спектра происходит равномерно между всеми пиками, что может происходить, например, по причине наклона атомных плоскостей, вызванного сдвиговым пьезоэффектом (компоненты тензора d_{14}). Кроме того, возможно изменение индикатрисы рассеяния, связанное с разворотом отдельных кристаллитов относительно направления вектора напряженности приложенного поля.

6.4. Заключение к главе 6

Разработаны и развиты методы исследования кристаллов при внешних воздействиях с применением сочетания высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии и многоволновой рентгеновской дифракции. С применением указанных методов на примере кристаллов парателлурита и лангатата (ЛГТ) исследовано поведение кристаллической решетки и реальной (дефектной) структуры, при воздействии на пьезоэлектрические кристаллы электрического поля, приложенного в пьезоактивном направлении. Проведены локальные измерения деформации параметра кристаллической решетки при приложении электрического поля до $4 \cdot 10^6$ В/м. Исследовано изменение активной компоненты пьезоэлектрического тензора в кристалле лангатата.

Значения пьезомодуля d_{11} для кристалла ЛГТ измеренные с применением методов трехкристальной и квазимноговолновой рентгеновской дифракции в пределах погрешности хорошо согласуются между собой и со значениями, полученными в других работах различными методами (таблица 6.1).

Таблица 6.1. Сравнение полученных экспериментально значений пьезомодуля d_{11} кристалла лангатата с приведенными в литературе.

Метод исследования	Значение пьезоэлектрического коэффициента $d_{11} * 10^{-12}$ м/В
Традиционные методы [388]	6.5
Метод резонанса-антирезонанса [5]	7.02
Квазимноговолновая рентгеновская дифракция	7.0 ± 0.6
Трехкристальный рентгенодифракционный метод	6.9 ± 0.5
Высокоразрешающая дифрактометрия [389]	6.5 ± 0.3

В целом рентгеновские методы позволяют проводить на одном образце измерения сразу нескольких пьезоэлектрических констант и восстановить

таким образом тензор пьезоэлектрической деформации, что реализуется с помощью различных рентгеновских отражений, при этом конфигурация образца должна позволять прикладывать электрической поле во всех пьезоактивных направлениях. Точность и универсальность методов квазимноговолновой дифракции и трехкристальной дифрактометрии позволяет проводить измерения пьезоэлектрических деформаций и изучать её влияние на дефектную структуру практически для любых образцов и в различной геометрии. Описанные методы позволяют проводить измерения пьезоэлектрических деформаций локально, что представляет существенный интерес для установления взаимосвязи изменения физических свойств кристалла с реальной структурой, дефектами, вариацией состава кристаллов (не приводящих к фазовым переходам кристаллической структуры).

Проведено изучение аномального поведения кристалла парателлурита в условиях постоянного внешнего электрического поля, характеризуемое проявлением эффекта образования доменов неферроэлектрического типа. Наличие больших времен переходных процессов в кристалле, а также разориентация доменов (отдельных областей кристалла) на углы порядка нескольких десятков секунд при величине поля $\sim 10^6$ В/м позволяет сделать предположение о наличии доменной структуры кристаллических деформаций, вызванных сдвиговым пьезоэлектрическим эффектом. Подобное поведение характерно скорее для ферроэластических материалов. В парателлурите существуют два взаимоперпендикулярных направления (110) и (1-10), обладающих весьма слабыми силами связи. Это обстоятельство может облегчать образование двойников при сдвиговой деформации, но механизм их появления требует дополнительных исследований.

Образование доменной структуры под влиянием внешних воздействий – явление хорошо изученное. Известные типы доменов образуются в ферроэлектрических фазах кристаллов, т.е. в фазах с пониженнной симметрией. Однако, наличие наблюданного эффекта образования

малоугловых доменов тетрагонального парателлурита необычно тем, что он зарегистрирован вдали от ферроэластического перехода в паразластической фазе.

Таким образом, показано, что воздействие электрического поля на пьезоэлектрические кристаллы может приводить не только к изменению размеров кристаллической решетки, но и к существенной перестройке всей микроскопической структуры кристалла. В связи с этим для кристаллов, применяемых в качестве перестраиваемых рентгенооптических элементов и резонаторов, работающих в условиях воздействия постоянных и переменных электрических полей необходимо проводить исследования длительного воздействия электрического поля на кристаллическую структуру. При этом следует отметить, что обнаруженные изменения носили временный характер и в течение некоторого времени после воздействия электрическим полем искаженная микроструктура рефлексировалась до нормального состояния.

Основные результаты и выводы

Всесторонне изучена область рентгеноакустических взаимодействий, связанная с возбуждением длинноволнового ультразвука: изучены акустические аспекты создания упругих деформаций в кристаллах, а также особенности рентгеновской дифракции в условиях медленно меняющейся по пространственной координате, быстро и периодически во времени деформации кристаллической решетки. Обнаруженные эффекты нашли свое практическое применение для создания методов и устройств изучения кристаллов в условиях внешних воздействий, позволяющие наблюдать за динамикой кристаллической структуры в процессе её перестройки.

Проведено изучение поведения кристаллических материалов Ge, Si, SiO_2 , TeO_2 , LiF в условиях слабых и сильных ультразвуковых полей, приводящих к разрушению кристаллов (деформации $\Delta d/d > 10^{-3}$) и при воздействии электрических полей напряженностью до 40 кВ/см на кристаллы $\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$ и TeO_2 .

По результатам проведенных исследований можно сделать следующие основные выводы:

Показано, что взаимодействие рентгеновского излучения с длинноволновым ультразвуком (с длиной волны от нескольких миллиметров до десятков сантиметров) можно рассматривать как отдельную область рентгеновской физики с широкими возможностями для управления спектральными и пространственно-временными характеристиками рентгеновского излучения.

Разработан комплексный подход по созданию элементов и схем рентгеноакустической оптики, подходящий для любого типа кристаллов, включающий: расчеты анизотропии упругих свойств и параметров кристаллических элементов; теоретические и экспериментальные алгоритмы и методы визуализации объемного поля смещений в условиях возбуждения ультразвуковых колебаний, методы изготовления и тестирования рентгеноакустооптических резонаторов.

Реализовано фазовое акустическое управление рентгеновской дифракцией, позволяющее достичь высокого быстродействия при измерении кривых дифракционного отражения и рентгеновских спектров (до 10 микросекунд на измерение всей кривой), с шагом перестройки углового положения $\theta < 0,1''$ и длины волны рентгеновского пучка $\lambda < 3 \cdot 10^{-5} \text{ \AA}$.

Разработаны методы рентгеноакустической спектроскопии с разрешением по времени (до 10 микросекунд на измерение всего спектра), перспективные для рентгеноспектрального анализа с высоким быстродействием. Предложены методы модуляционной рентгеноакустической спектроскопии и резонансной дифрактометрии, основанные на модуляции длины волны в области резонансного поглощения атомов исследуемого вещества.

Разработан рентгеноакустический метод исследования дефектной структуры статически и динамически нагруженных кристаллов, позволяющий (с чувствительностью к изменениям параметра решетки $\Delta d/d$ до $5 \cdot 10^{-5}$) изучать ранние стадии зарождения дефектов при вибрационных нагрузках и других внешних воздействиях на основе измерения кривой дифракционного отражения с разрешением по времени до 10 микросекунд.

Разработаны методические подходы по изучению дефектной структуры кристаллов низших и средних сингоний с применением многоволновой и трехкристальной дифракции, в том числе, в условиях внешнего воздействия ультразвуком и электрическим полем, позволяющие с точностью, превышающей 10^{-5} , исследовать относительные изменения кристаллической решетки. Показано, что кристаллы TeO_2 и $\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$ обладают высокой степенью однородности кристаллической структуры и вариация параметра кристаллической решетки $\Delta d/d$ не превышает 10^{-4} . В кристаллах кремния реализована перестройка многоволновой дифракции в диапазоне $40''$ с помощью ультразвука с сохранением точной настройки лабораторной схемы.

Обнаружен и исследован эффект образования доменов неферроэлектрического типа при воздействии на пьезоэлектрический кристалл TeO_2 тетрагональной сингонии электрическим полем. Установлено, что домены представляют собой области с размерами от долей миллиметра до нескольких миллиметров и разориентированы по углу при постоянном параметре решетки. Размеры доменов и угол разориентации, составляющий от десятков до сотен угловых секунд, зависят от величины приложенного поля.

Список литературы

-
- [1] M. Y. Colby, S. Harris An X-Ray Study of a Long X-Cut Quartz Crystal Vibrating Under the Transverse Piezoelectric Effect Phis. Rev. 1934, vol. 46, № 6. p. 445-450.
 - [2] Fox G.W., Carr H.P. The effect of piezoelectric oscillation on intensity of x-ray reflections from quartz.// Physical review, vol. 37, June 15, 1931
 - [3] Langer R.M. X-Ray Reflections from Oscillating Crystals. - Phys. Rev., 1931, vol. 38, No. 3, p. 573-574.
 - [4] Fox G.W., Cork J.M. The Regular Reflection of X-Rays from Quartz Crystals Oscillating Piezoelectrically. - Phys. Rev., 1931, vol. 38, No. 8, p. 1420-1423.
 - [5] Barrett C.S., Howe CE. X-Ray Reflection from Inhomogeneously Strained Quartz. Phys. Rev., 1932, vol. 39, No. 6, p. 889-I 897.
 - [6] Cork J.M. Laue Patterns from Thick Crystals at Rest and Oscillating Piezoelectrically. - Phys. Rev., 1932, vol. 42, No. 6, p. 749-752.
 - [7] Blechsmidt E. , Boas W. Lauereflexionsaufnahmen an schwingenden Quarzstaben. - Z. Krist., 1933, B. 85, H. 3/4, S. 329.
 - [8] Colby M.Y., Harris S. An X-Ray Study of a Long X-Cut Quartz Crystal Vibrating Under the Transverse Piezoelectric Effect. - Phys. Rev., 1934, vol. 46, Ho. 6, p. 445-450.
 - [9] Nishikawa S., Sakisaka Y., Sumoto I. X-Ray Investigation of the Mode of Vibration of Piezoelectric Quartz Plates. - Proc. Phys. Math. Soc. Japan, 1934, vol. 25, No. 1, p. 20-30.
 - [10] Pox G.W., Prazer Y.A. X-Ray Extinction in an Piezoelectrically Oscillating Crystals. - Phys. Rev., 1935, vol. 47, No. 12, p. 899-902.
 - [11] Bertsch C.V. X-Ray Studies of Crystals Vibrating Piezoelectrically. - Phys. Rev., 1936, vol. 49, No. 2, p. 128-132.
 - [12] Pukushima E. The Junction Between the Mechanical Deformation and the Intensity of X-Rays Reflected by Quartz Plate. - Bull. Inst. Phys. Chem. Research (Tokyo), 1936, vol. 15,p. 1-12.

-
- [13] Bruce W.A., Jauncey G.E.M. Dependence of Diffuse Scattering of X-Rays from Quartz upon the angle between the Crystal Axis and the Plane of Scattering. - Phys. Rev., 1936, vol. 49, No. 5, p. 418-419.
- [14] Pox G.W., Frederick J.R. Further Study of X-Ray Diffraction in Quartz. - Phys. Rev., 1938, vol. 53, No. 2, p. 135-136.
- [15] Jauncey G.E.M., Bruce Y.A. Diffuse Scattering of X-Rays from Piezoelectrically Oscillating Quartz. - Phys. Rev., 1938, vol. 54, No. 3, p. 163-165.
- [16] A.R. Lang. The projection topograph: a new method in X-ray diffraction microradiography. //Acta Cryst. (1959). 12, 249-250.
- [17] W. J. Spencer. X-ray diffraction study of acoustic mode patterns in crystalline quartz //Applied Physics Letters, April 1, 1963, Volume 2, Issue 7, pp. 133-135.
- [18] Спенсер У. Исследование резонансных колебаний и нарушений структуры в монокристаллах методом рентгеновской дифракционной топографии. // В кн.: Физическая акустика под ред. Мезона У., пер. с англ. М.: Мир, 1973. Т.Y.-C.134-191.
- [19] А.М. Елистратов Прямые методы исследования дефектов в кристаллах (под редакцией А.М. Елистратова) М. Мир 1965 с.268
- [20] Е.В.Шулаков, И.А.Смирнова, Э.В.Суворов Контраст Номарского при формировании изображения дефектов в геометрии Брегга Поверхность 2003, 6, 5-11
- [21] V. Sedykh, V.Sh. Shekhtman, I.S. Smirnova, B.Sh. Bagautdinov, E.V. Suvorov, A.V. Dubovitskii About specific features of the structure modulation in the Bi-ferrate compounds isostructural with Bi₂Sr₂CaCu₂O₈ Physica C 390 (2003) 311-320.
- [22] И.А.Смирнова, Э.В.Суворов, Е.В.Шулаков Особенности формирования рентгеновского дифракционного изображения дислокаций в различных участках треугольника рассеяния Поверхность 2004, 4, 100-104
- [23] Э.В.Суворов, И.А.Смирнова, Е.В.Шулаков Дифракционное изображение дислокаций, расположенных в плоскости рассеяния перпендикулярно вектору отражения. Поверхность 2004, 09, 64-68

-
- [24] Суворов Э.В., Смирнова И.А., Шулаков Е.В. Дифракционное изображение краевой дислокаций, расположенных в плоскости рассеяния Поверхность 2005, 8, 67-70
- [25] Суворов Э.В., Смирнова И.А., Шулаков Е.В. Влияние толщины кристалла и роль поглощения в формировании рентгеновского дифракционного изображения дислокаций, Поверхность 2005, 12, 12-19
- [26] Смирнова И.А., Суворов Э.В., Шулаков Е.В. Дифракция рентгеновских лучей на деформациях локализованных в области параллельной поверхности образца. Поверхность 2006, 12, 15-20
- [27] Смирнова И.А., Суворов Э.В., Шулаков Е.В. Формирование изображения краевых дислокаций в поглощающем кристалле. ФТТ 2007, 9. 6 1050-1056
- [28] Э.В.Суворов, И.А.Смирнова Тонкая структура дифракционного изображения краевой дислокации в секционной топографии высокого разрешения. Поверхность 2008, 10, 1-6
- [29] Смирнова И.А., Э.В.Суворов, Е.В.Шулаков Дифракция рентгеновского излучения на однородно изогнутом кристалле в геометрии на отражение ФТТ 2011, том 53, вып. 1, стр.35-40
- [30] Суворов Э.В., И.А.Смирнова Дифракционное изображение винтовых дислокаций в методах рентгеновской секционной топографии Поверхность, №12, (2011), с.1-4
- [31] Э.В.Суворов, И.А.Смирнова Новый подход в понимании механизмов дифракционного изображения дислокаций в рентгеновской топографии Письма ЖТФ 2012, 38,21, с.70-76
- [32] Э.В.Суворов, И.А.Смирнова «Проекционная рентгеновская дифракционная топография – возможности количественного анализа изображения дефектов» журнал Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования, 2013, № 11, с. 1–4
- [33] Э.В.Суворов, И.А.Смирнова Дифракционное изображение дефектов в рентгеновской топографии (рентгеновской микроскопии) УФН, 185:9 (2015), 897–915
- [34] Кэди У., Пьезоэлектричество и его практическое применение, пер. с англ., М., 1949.

-
- [35] J.E. White. X-Ray Diffraction by elastically deformed crystals, // *J. Appl. Physics* Vol. 21, September 1950, 855-859.
- [36] Смагин А. Г., Ярославский М. И. Пьезоэлектричество кварца и кварцевые резонаторы. — М.: «Энергия», 1970. — 488 с.
- [37] Андросова В. Г., Банков В. Н., Дикиджи А. Н. и др. Справочник по кварцевым резонаторам / Под ред. П. Г. Позднякова. — Связь, 1978.
- [38] Глюкман Л. И. Пьезоэлектрические кварцевые резонаторы. — 3-е изд., перераб. и доп. — М.: Радио и связь, 1981..
- [39] Зеленка И. Пьезоэлектрические резонаторы на объёмных и поверхностных акустических волнах: Материалы, технология, конструкция, применение: Пер. с чешск. — М.: Мир, 1990.
- [40] K. Haruta. Intensity of X Rays Diffracted from an Elastically Vibrating Single-Crystal Plate // *Journal of Applied Physics*, July 1967, Vol. 38, Issue 8, pp. 3312-3316.
- [41] Yong R.A., Wagner C.E. Intensity Contrast in Diffraction from Nearly Perfect Crystals // *Brit. J. Appl. Phys.*, 1966, Vol. 17.
- [42] Mason W.P. Piezoelectric Crystals and Their applications to ultrasonics.// Priston, New Jersey, 1950, p. 1-377.
- [43] Mindlin R. D. High frequency vibrations of crystal plates Quart. // *Appl. Math.* 19 51-61,(1961).
- [44] Mindlin R.D. Spenser W.J. Anharmonik thickness - twist obertons of thickness-shear and flexural vibrations of rectangular at-cut quartz plates. // *J. Acoust. Soc. Am.*, 1967, vol. 42, p. 1268-1277.
- [45] Spenser W.J., Pearman G.T. X-Ray Diffraction from Vibrating Quartz Plates. // *Advances in X-Ray Analysis*. N.Y. Plenum press, 1970, vol. 13, p. 507-525.
- [46] A.Zarka, B. Capelle, J.Detaint, D. Cochet-muchy. // Pros. of European meeting on piezoelectric materials 1996.
- [47] R. Köhler, W. Möhling, H. Peibst. Intensity relations in laue case reflections of perfect crystals containing nearly monochromatic lattice vibrations. // *Phis. Stat. Sol.*, 1970, vol. 41, No. 1, p. 75-80.
- [48] R. Köhler, W. Möhling, H. Peibst. Influence of Acoustic Lattice Vibrations on Dynamical X-Ray Diffraction. // *phys. stat. sol. (b)* 61, 173 (1974) p. 173

-
- [49] Энтин И.Р. О динамической дифракции рентгеновских лучей на кристалле с периодическим полем смещений. - ЖЭТФ, 1979, т. 77, в. 1(7), с. 214-222.
- [50] И.Р. Энтин. Динамическая и кинематическая дифракция рентгеновских лучей на кристаллах сильно искаженных ультразвуком. // Препринт. Черноголовка, 1986.
- [51] И.Р. Энтин. Динамические эффекты в акустооптике рентгеновских лучей и тепловых нейтронов. Диссертация на соискание ученой степени доктора физико-математических наук. Черноголовка 1986
- [52] Тихонова Е.А. Динамическое рассеяние рентгеновских лучей кристаллами, находящимися в поле ультразвуковой волны. // Металлофизика, 1981, том 3, № 4 стр. 18 -27
- [53] Е.А. Тихонова Динамическое рассеяние в кристаллах со слабыми быстро и медленно меняющимися синусоидальными искажениями // Металлофизика, т. 5, в. 2 с. 8-14 (1983)
- [54] E. I. V. Polikarpov, V. V. Skadorov X-Ray Dynamical Diffraction in Crystals Being Subjected to the Action of Ultrasonic Waves // Phys. Stat. sol. (b) Vol. 143, Iss. 1, 1987 p. 11–17
- [55] В.И. Пустовойт О рассеянии жестких фотонов и медленных нейтронов в полупроводниковых кристаллах в условиях звуковой неустойчивости. // ЖЭТФ, 1972, т. 62 в.2, с. 754-761
- [56] Мкртчян А.Р., Навасардян М.А., Мирзоян В.К. Полная переброска рентгеновского излучения, дифрагированного монокристаллом от направления прохождения в направление отражения под действием температурного градиента. // Письма в ЖТФ. – 1982. – Т. 8. – В. 11. – С. 677-680
- [57] Мкртчян А.Р., Навасардян М.А., Габриелян Р. Г. и др. Полное зеркальное отражение излучения ангстремных длин волн на ультразвуковой сверхрешотке в случае Лауз-геометрии // Письма в ЖТФ. – 1983. – Т. 9. – В. 11. – С. 1181
- [58] Gabrielyan R.G., Aslanyan H.A. Modulation of γ and X-rays by ultrasonic vibrations in crystals // Phys. Stat. sol.(b). – 1984. – V. 123. – P. K97-K99

-
- [59] Gabrielyan R. G., Mkrtchyan A.R., Aslanyan H.A. and Kotandyan Kh.V. On the theory of X-ray diffraction in oscillating piezo crystals // Phys. Stat. Sol. – 1985. –V. 92(a). – P. 361-368
- [60] Mkrtchyan A.R., Navasardian M.A., Gabrielyan R.G., Kocharyan L.A. and Kuzmin R.N. Controlled focusing of the Å wavelength radiation in case of the ultrasound modulation or temperature gradient // Solid State Communications. – 1986. – V. 59. – P. 147-149
- [61] Mkrtchyan A.R., Navasardian M.A., Gabrielyan R.G., Kocharyan L.A. and Kuzmin R.N. Controlled focusing of the Å wavelength radiation in case of the ultrasound modulation or temperature gradient // Solid State Communications. – 1986. – V. 59. – P. 147-149
- [62] Навасардян М.А., Назарян Ю. Р. Мирзоян В. К. Модуляция дифрагированного рентгеновского излучения в низкочастотном диапазоне с целью передачи сигналов. // Изв. АН Арм. ССР, Физика, 1979, т 14, в. 6, с. 425-428.
- [63] Мирзоян, В. К. Дифракция рентгеновского излучения на монокристалле кварца в присутствии акустической сверхрешетки / В. К. Мирзоян, Т. Г. Довлатян, П. В. Мирзоян // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. - 2002. - № 9. - С. 80-83
- [64] В.К.Мирзоян, А.А.Егиазарян, Э.Г.Багдасарян, П.В.Мирзоян. Пространственная модуляция дифрагированного рентгеновского пучка объемными акустическими волнами // Изв. НАН Армении, Физика, 42, 355 (2007), С. 104-110.
- [65] В.К. Мирзоян, А.А. Егиазарян, В.Н. Агабекян, П.В. Мирзоян. Дифракция рентгеновского пучка в монокристалле кварца АТ-среза при акустическом возбуждении на основной частоте // Известия НАН Армении, Физика, т.43, №2, с.104-110
- [66] E. A. Tikhonova Non-linear effects of the dynamical scattering theory phys. // stat. sol. (a) 81, 69 (1984) p.69-75
- [67] Р.Г. Габриелян, А.А. Асланян. О теории полной переброски сферической рентгеновской волны // Изв. АН Арм. ССР. Физика. – 1986. – Т. 21. – В. 6. – С. 337-339
- [68] S.Takagi - Dynamical theory of diffraction applicable to crystals with any kind of small distortions. // Acta Cryst.-1962.- Vol.15.-P.1311-1312.

-
- [69] S.Takagi - A dynamical theory of diffraction for a distorted crystal. //J.Phys.Soc.Jap.-1969.-Vol.26.-P.1239-1253.
- [70] M.A.Navarasardyan. // Journ. Appl. Cryst. 34, 763-766, 2001.
- [71] Yu Cherepennikov, A Gogolev Device for X-ray spectral absorption analysis with use of acoustic monochromator Journal of Physics: Conference Series 517 (2014) p.1
- [72] В.Л. Носик, М.В. Ковальчук. Рентгеновские элементы, основанные на колеблющихся кристаллах. //Поверхность., №1, 91-98 (2000).
- [73] К.П.Ассур, И.Р.Энтин. Влияние ультразвуковых колебаний на динамическую дифракцию рентгеновских лучей в геометрии Брэгга.// ФТТ,24, в7, 2122-2129,1982.
- [74] К.П.Ассур, И.Р.Энтин. Влияние ультразвуковых колебаний на динамическую дифракцию рентгеновских лучей в геометрии Брэгга.// ФТТ,24, в7, 2122-2129,1982.
- [75] D.G. Carlson, A. Segmuller, E. Mosekilde et al. X-Ray Diffraction from Piezoelectrically Amplified Sear Waves in the 50 GHz Range. // Appl. Phys. Lett. 1971, vol. 18. №8. p. 330-332.
- [76] G.O. Müller, H.Peibst, E. Schnürer, H. Thiel. The influence of High phonon flux densities on the X-Ray Reflectivity of nearly Ideal CdS Crystals. // Phis. Stat. Sol., 1967, vol. 20, No. 2, p. K173-K175.
- [77] W. Möhling, G.O. Müller, H.Peibst, E. Schnürer. X-Ray diffraction analysis of acoustoelectric phonons. // Phis. Stat. Sol. (a), 1970, vol. 2, No. 2, p. 725-730.
- [78] R. Köhler, W. Möhling, H. Peibst. Intensity relations in laue case reflections of perfect crystals containing nearly monochromatic lattice vibrations. // Phis. Stat. Sol., 1970, vol. 41, No. 1, p. 75-80.
- [79] R. Köhler, W. Möhling, H. Peibst. Evaluation of acoustoelectric wave vectors and amplitudes from X-Ray diffraction experiments. // Phis. Stat. Sol.(b), 1974 vol. 6, No. 2, p. 439-447.
- [80] В.И. Пустовойт, М.В, Балаханов и др. О дифракции рентгеновских лучей в кристалле CdS в условиях звуковой неустойчивости В книге: X всесоюзная акустическая конференция М.,1983, с.80-81

-
- [81] В.И. Пустовойт, М.В. Балаханов, Р.У. Раджанов, П.К. Хабибулаев. Акустооптика рентгеновских лучей. // Изв. АН Уз. ССР, сер. Физ.-ма. Наук, 1983, №5, с.63-68
- [82] S.D. LeRoux, R. Colella, R. Bray. X-Ray Diffraction Studies of Acoustoelectrically Amplified Phonon Beams. // Phys. Rev. Lett. 35, N4, 230 – 234 (1975).
- [83] S.D. LeRoux, R. Colella, R. Bray. Effect of Acoustoelectric Phonons on Anomalous Transmission of X-Rays. // Phys. Rev. Lett. 1976, vol 37, № 16, p. 1056-1059
- [84] R. Colella. Multiple Diffraction of X-Rays. // Z. Naturforsch., 1982, B. 37a, H.5, p. 437-447.
- [85] L.D. Chapman, R. Colella, R. Bray. X-Ray Diffraction Studies of Acoustoelectrically Amplified Phonon Beams. // Phys. Rev. B, 1983, vol. 27, № 4, p. 2264-2277.
- [86] S. Kikuta, T. Takahashi, S. Nakatani. High Frequency Time Modulation of X-Ray beam Diffracted from a LiNbO₃ Crystal by Surface Acoustic Waves. // Japanese J. Of Appl. Phys., 1984, vol. 23, № 4, p. L193-L196.
- [87] I. Fujimoto. Direct Detection of Electric-Field-Induced Microscopic Structural Changes in LiNbO₃ by Modulation X-Ray Diffraction. // Phys. Rev. Lett., 1987, vol. 40, №14, p.941-941.
- [88] D.V. Roshchupkin, M. Brunel, F. de Bergevin and A.I. Erko "X-ray space modulation by diffraction on an ultrasonic superlattice"// Nuclear Instruments and Methods in Physics Research 872 (1992) 471-476.
- [89] D.V. Roshchupkin, M. Brunel. "Time modulation of an X-Ray beam by surface acoustic waves"// Review of Scientific Instruments, (1993) Vol. 64, No. 2, pp. 379-382.
- [90] M. Brunel, D.V. Roshchupkin, R. Tucoulou. "X-ray Diffraction by surface acoustic waves"// Journal de Physique IV (1994), Vol. 4, pp. 717-720.
- [91] D. V. Roshchupkin, I.A. Schelokov, R. Tucoulou, M. Brunel "Space-Time Modulation of an X-Ray Beam by Ultrasonic Super lattice" IEEE Transactions On Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control, Vol. 42 No. 1, (1995) 127
- [92] R. Tucoulou, D.V. Roshchupkin, I.A. Schelokov, M. Brunel, L. Ortega, E. Ziegler, M. Lingham, C. Mouget, S. Douillet. "High frequency electro-acoustic

chopper for synchrotron radiation"//, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B (1997), №132, pp. 207-213.

[93] D.V. Roshchupkin, I.A. Schelokov, R. Tucoulou, M. Brunel. "X-ray diffraction on a multilayer mirror modulated by surface acoustic waves"//, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B (1997), №129, pp. 414-418.

[94] D.V. Roshchupkin, R. Tucoulou, A. Maselet, M. Brunel, I.A. Schelokov, A.S. Kondakov. "X-ray diffraction by standing surface acoustic waves"// Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, (1998), №142, pp. 432-436.

[95] D.V. Roshchupkin, I.A. Schelokov, R. Tucoulou, A.S. Kondakov, M. Brunel. "X-ray focusing by a 1D-grazing incidence Fresnel zone plate modulated by a surface acoustic wave"// Optics Communications, (1998), №146, pp. 25-30.

[96] R. Tucoulou, D.V. Roshchupkin, O. Mathon, I.A. Schelokov, M. Brunel, E. Ziegler, C. Morawe. "High-frequency X-ray Beam Chopper Based on Diffraction by Surface Acoustic Waves"// Journal of Synchrotron Radiation, (1998), №5, pp. 1357-1362.

[97] D.V. Roshchupkin, R. Tucoulou, M. Brunel. "X-ray standing waves effects for a multilayer mirror modulated by surface acoustic waves"// Applied Physics Letters, (1999), Volume 75, Number 5, pp. 639-640.

[98] Д.В. Рошупкин, И.А. Щелоков, В.В. Аристов, Р. Тукулу, М. Брюнель. Дифракция рентгеновского излучения на многослойных зеркалах, промодулированных ПАВ. // Материалы совещания «Рентгеновская оптика», Нижний Новгород. Стр. 83-92 (1999).

[99] R. Tucoulou, F. Bergevin, O. Mathon, D. Roshchupkin. "X-ray Bragg diffraction of LiNbO₃ crystals excited by surface acoustic waves"// Physical Review B, (2001), Volume 64, 134108

[100] Д.В. Рошупкин, Р. Тукулу, О. Матон. "Дифракция рентгеновского излучения на 127° Y-срезе кристалла LiNbO₃, промодулированном коротковолновой поверхностной акустической волной"// Поверхность, (2002) №1, с. 10-16.

[101] D. V. Roshchupkin, D. V. Irzhak, R. Tucoulou, O. A. Buzanov «X-ray Bragg diffraction from langasite crystal modulated by surface acoustic wave»// JOURNAL OF APPLIED PHYSICS (2003) V.94, N.10 pp.6692-6696.

[102] Д.В. Иржак, Д.В. Рошупкин, О.А. Бузанов, С.А. Сахаров, Р. Тукулу, О. Матон. "Дифракция рентгеновского излучения на кристалле La₃Ga₅SiO₁₄,

промодулированном поверхностной акустической волной"//, Поверхность (2003), №1, с. 42-47.

[103] Д.В.Рощупкин, Д.В. Иржак, Р.Тукбулу, О.Матон «Стробоскопическая рентгеновская топография бегущих поверхностных акустических волн в кристалле Si(111)»// Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования, (2003), №2, с.25-27.

[104] D.V. Roshchupkin, D.V. Irzhak, E.D. Roshchupkina, O.A. Buzanov. "Investigation of Structural Perfection and Acoustic Properties of La₃Ga₅SiO₁₄ Crystals by High Resolution X-Ray Diffraction, Topography, and Microfluorescence Analysis"//, Crystallography reports (2004), Vol. 49, Suppl. 1, pp. S80-S88.

[105] I.A. Schelokov, D.V. Roshchupkin, D.V. Irzhak, R.Tucoulou "Dynamical theory for calculations of X-ray spectra from crystals modulated by surface acoustic waves"// Journal of Applied Crystallography, (2004), V.37, pp.52-61

[106] D. V. Roshchupkin, H. D. Roshchupkina, D.V. Irzhak "Analysis of the SAW Propagation in Langasite Crystal by X-ray Topography"// IEEE International Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control Joint 50th Anniversary Conference (2004), pp.1227-1230

[107] R. Tucoulou, O. Mathon, C. Ferrero, V. Mocella, D. V. Roshchupkin, R. E. Kumon "Investigation of surface acoustic wave fields in silicon crystals by x-ray diffraction: A dynamical theory approach"// JOURNAL OF APPLIED PHYSICS (2005), V.97, 113505

[108] V.I. Punegov, Ya.I. Nesterets, D.V. Roshchupkin "Coherent and diffuse X-ray scattering in crystals modulated by a surface acoustic wave"// Journal of Applied Crystallography (2010). V.43, 520–530

[109] D. V. Roshchupkin , D. V. Irzhak , A. A. Snigirev , and I. I. Snigireva "X-ray Optics at the Russian Academy of Sciences' Institute of High-Purity Materials"// Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics, (2011), Vol. 75, No. 1, pp. 33–35

[110] V. I. Punegov , D. V. Roshchupkin "Effect of the Ultrasonic Frequency on the Multiple X-Ray Scattering from a LiNbO₃ Crystal Modulated by a Surface Acoustic Wave"// Crystallography Reports, (2012), Vol. 57, No. 1, pp. 24–32.

-
- [111] V. Roshchupkin , D. V. Irzhak “Piezoelectric strain coefficients in La₃Ga_{5.3}Ta_{0.5}Al_{0.2}O₁₄ and Ca₃TaGa₃Si₂O₁₄ crystals”// AIP ADVANCES (2013) V.3, 102108.
- [112] D. Roshchupkin, L. Ortega, O. Plotitcyna, A. Erko, I. Zizak, D. Irzhak “X-ray diffraction study of surface acoustic waves and pseudo-surface acoustic waves propagation in La₃Ga_{5.5}Ta_{0.5}O₁₄ crystal”// JOURNAL OF APPLIED PHYSICS (2013) V.113, 144909
- [113] D. Roshchupkin, L. Ortega, O. Plotitcyna, A. Erko, I. Zizak, D. Irzhak, R. Fahrtdinov, O. Buzanov “Advanced piezoelectric crystal Ca₃TaGa₃Si₂O₁₄: growth, crystal structure perfection, and acoustic properties”// Applied Physics A (2014) V.114, pp 1105-1112.
- [114] E. Zolotoyabko, E. Jacobsohn, D. Shechtman, B. Kantor, J. Salzman “Acoustic field study in layered structures by means of x-ray diffraction”// JOURNAL OF APPLIED PHYSICS (1992) V.71, 3134.
- [115] E. Zolotoyabko, B. Sander, Y. Komem, B. Kantor “Improved strain analysis in semiconductor crystals by xray diffractometry enhanced with ultrasound”// APPLIED PHYSICS LETTER (1993) V.63(11), pp. 1540-1542
- [116] E. Zolotoyabko, E. Jacobsohn, D. Shechtman “X-ray diffraction study of surface acoustic wave device under acoustic excitation”// JOURNAL OF APPLIED PHYSICS (1993), V.73, No. 12, 8647-8649.
- [117] E. Zolotoyabko, E. Jacobsohn, H. Bartunik, I. Polikarpov, I. Koelln, H.G. Krane “Visualization of acoustic fields in surface acoustic wave devices by means of X-ray topography”// Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B (1995) V.97 346-350
- [118] E. Zolotoyabko, D. Shilo, W. Sauer, E. Pernot, J. Baruchel “Visualization of 10 μm surface acoustic waves by stroboscopic x-ray topography”// APPLIED PHYSICS LETTER (1998) V.73, No.16, 2278-2280.
- [119] Polikarpov I., de Oliviere R.T., Cusatis C., Double-crystal diffractive modulator of synchrotron radiation, Rev. Sci. Instrum., 69, 2218-2222, 1998.
- [120] Zolotoyabko E., Polikarpov I. // J. Appl. Cryst. 1998.V. 31. P. 60

-
- [121] I. Polikarpov, R. T. de Oliveira, E. Zolotoyabko “Acoustically adjustable LiNbO₃ double-crystal monochromator for synchrotron radiation”// Review of Scientific Instruments, (1999) Vol. 70, No. 5, pp. 2230-2234.
- [122] E. Zolotoyabko, D. Shilo, W. Sauer, E. Pernot, J. Baruchel “Stroboscopic x-ray topography in crystals under 10-μm-surface acoustic wave excitation”// REVIEW OF SCIENTIFIC INSTRUMENTS (1999) V.70, pp. 3341-3345.
- [123] E. Zolotoyabko, J. P. Quintana “Energy-tunable x-ray diffraction: A tool for depth profiling in polycrystalline materials”// REVIEW OF SCIENTIFIC INSTRUMENTS (2002) V.73, 1663.
- [124] E. Zolotoyabko, J. P. Quintana, B. H. Hoerman, B. W. Wessels “Fast time-resolved x-ray diffraction in BaTiO₃ films subjected to a strong high-frequency electric field”// APPLIED PHYSICS LETTERS (2002) V.80, 3159.
- [125] E. Zolotoyabko, J. P. Quintana “Time and phase control of x-rays in stroboscopic diffraction experiments”// REVIEW OF SCIENTIFIC INSTRUMENTS (2002) V.73, N. 3 pp.1643-1645
- [126] B. Shilo, E. Zolotoyabko. Visualization of short surface acoustic waves by stroboscopic x-ray topography: analysis of contrast. //J. Phys. D: Appl. Phys. 36 (2003) A122–A127.
- [127] E. Zolotoyabko, D. Shilo, E. Lakin, J. Hartwig, J. Baruchel “X-ray imaging of surface acoustic waves generated in semiconductor crystals by an external transducer”// APPLIED PHYSICS LETTERS (2003) V. 82, 1374
- [128] B. Shilo, E. Zolotoyabko. Visualization of short surface acoustic waves by stroboscopic x-ray topography: analysis of contrast. //J. Phys. D: Appl. Phys. 36 (2003) A122–A127.
- [129] E. Zolotoyabko, J. P. Quintana “Control of synchrotron x-ray diffraction by means of standing acoustic waves”// REVIEW OF SCIENTIFIC INSTRUMENTS (2004) V.75, 699.
- [130] E. Zolotoyabko, J. P. Quintana “Fast modulation of synchrotron X-ray intensity by standing acoustic waves”// AIP Conference Proceedings (2004) 705, 1043.
- [131] B. Shilo, E. Zolotoyabko. Visualization of short surface acoustic waves by stroboscopic x-ray topography: analysis of contrast. //J. Phys. D: Appl. Phys. 36 (2003) A122–A127.

-
- [132] B. Shilo, E. Lankin, E. Zolotoyabko, J. Hartwing, J. Baruchel. Visualization of Acoustic wave front in crystals by Stroboscopic X-ray Topography. // Synchrotron radiation news, Vol. 15, No 2, 2002.
- [133] I. Polikarpov, R. T. de Oliveira, and C. Cusatis Double-crystal diffractive modulator of synchrotron radiation // Review of scientific instruments vol. 69, N 6 (1998) p.2218.
- [134] W. Mohling, G.O.Muller, H.Peibst, E.Schnlirer.X-Ray Diffraction Analysis of Acoustoelectric Phonons.// Phys. Stat. Sol. (a), 1970, vol. 2, No. 2, p. 725-730.
- [135] Isherwood B.J., Wallace C.A. The Analysis of Unwanted-Mode Vibration Patterns in AT-Cut Quartz Oscillator Crystals, revealed by X-Ray Diffraction Topography: I. Interpretation of the X-Ray Diffraction Topographs. - J. Phys.D: Appl. Phys., 1975, vol. 8, No. 15, p. 1827-1842.
- [136] Berolo O., Butler D. X-Ray Topographical Representation of Surface Acoustic Waves - In: IEEE Ultrasonics Syffip. Proc. N.Y., 1977, p. 98-103.
- [137] А.А. Адхамов, А.Н.Шкляр, В.С.Бондаренко, Л.М.Слуцкий, В.С.Орлов. Дифракционные эффекты при распространении поверхностных акустических волн в кристаллических подложках из LiNbO₃- ФТТ, 1981, т. 23, в.6, с. 1689-1693.
- [138] Cerva H., Graeff W. Contrast Investigations of Surface Acoustic Waves by Stroboscopid Topography. II» Wavefield Deviation Contrast. - Phys. Stat. Sol. (a), 1985, vol. 87, Ho. 2, p. 507-516.
- [139] Cerva H., Graeff W. Contrast Investigations of Surface Acoustic Waves by Stroboscopic Topography. Ill» Contrast in Transmission Case. - Phys. Stat. Sol. (a), 1986, vol. 93, No. 2» p. K129-K132.
- [140] Goddard P., Tanner B., Whatmore R., Clark G., Stroboscopic X-ray topography of traveling SAW Nature, 299, p. 44-45, 1982.
- [141] E. Zolotoyabko, D. Shilo, E. Lakin. X-ray imaging of acoustic wave interaction with dislocations. // Materials Science and Engineering A 309/310, 23 (2001).
- [142] И.Р. Энтин. Эффект резонансного подавления ультразвуком аномального прохождения рентгеновских лучей. // Письма в ЖЭТФ, 26, вып. 5, 392-395. 1977

-
- [143] И.Р. Энтин, Э.В. Суворов, Н.П. Кобелев, Я.М. Сойфер. Рентгеноакустический резонанс в совершенном кристалле кремния // ФТТ. 20, №5, 1311-1315, 1978.
- [144] I. R. Entin and K. P. Assur Silicon-crystal rocking curves under X-ray acoustic resonance conditions Acta Cryst. (1981). A37, 769-774
- [145] Энтин И.Р. Динамические эффекты в акустооптике рентгеновских лучей и тепловых нейтронов. Автореф. докт. дис. Черноголовка. Институт физики твердого тела, 1986.
- [146] К.П.Ассур, И.Р.Энтин. Влияние ультразвуковых колебаний на динамическую дифракцию рентгеновских лучей в геометрии Брэгга// ФТТ, 24, в7, 2122-2129, 1982,
- [147] I. R. Entin Theoretical and experimental study of X-ray acoustic resonance in perfect silicon crystals // Phys. Stat. sol. (b) Vol. 90, Iss. 2, p. 575–584, (1978)
- [148] Polikarpov I.V., Skadorov V.V. X-Ray dynamical diffraction in crystals being subjected to the action of ultrasonic waves// Phys. Stat. Sol. (B). 1987. Vol. 143. № 1. P. 11–17.
- [149] Энтин И.Р. Динамические эффекты в акустооптике рентгеновских лучей и тепловых нейтронов. Автореф. докт. дис. Черноголовка. Институт физики твердого тела, 1986.
- [150] Ассур К.П, Энтин И.Р. Влияние ультразвуковых колебаний на динамическую дифракцию рентгеновских лучей в геометрии брэгга. // ФТТ. 1982. - том 24. - вып. 7. - с 2122..
- [151] Пунегов В.И., Павлов К.М. Влияние упругого изгиба и дефектов структуры кристалла на рентгеноакустический резонанс // ЖТФ. 1994. Т. 64. Вып. 11. С. 189 192.
- [152] Прудников И.Р. О задаче динамической дифракции рентгеновских лучей в схеме Брэгга на кристалле, в котором возбуждена ультразвуковая волна. Вестн. Моск. ун-та, сер.3, физика, астрономия, 1996, N3, с.56-61.
- [153] В. Пунегов О теории рентгеноакустического резонанса в геометрии Брэгга //ЖТФ, т.82, вып.1 (2012) с. 40
- [154] И.Р. Энтин, И.А. Пучкова. Осциллирующая зависимость интенсивности рентгеновского рефлекса от амплитуды возбужденного в кристалле ультразвука. // ФТТ, Том 26, в.11 (1984) стр.3320-3324

-
- [155] I.R Entin, I.A. Smirnova. The effect of X-Ray intensity oscillations as a function of the amplitude of ultrasound excited in crystal. //Phys. stat. sol. (a) 106, 339 (1988) p339-350
- [156] И.А Смирнова, Э.В. Суворов, Е.В. Шулаков, О.П Олежко-Ожевский. Формирование топографического контраста совершенного кристалла в условиях акустического возбуждения. // Материалы рабочего совещания Рентгеновская оптика – 99. Нижний Новгород 99 стр. 216-223
- [157] I.A. Smirnova, E.V. Shulakov, E.V. Suvorov, O.P. Aleshko-Ozhevskii. Dynamic contrast of section topographs under excitation of transversal acoustic waves in the crystal bulk. // Surface investigation, 2001, Vol. 16, pp. 153-162.
- [158] И.А. Смирнова, Е.В. Шулаков, Э.В. Суворов. Распределение рентгеновского волнового поля в объёме кристалла в условиях акустического возбуждения. // Тезисы докладов РЧЕ 99, Москва 99 стр. 160
- [159] S. Nishikawa, S., Sakisaka, Y. and Sumpto, I. An X-ray Examination of the Harmonic Thickness Vibration of Piezoelectric Quartz Plates, Phys. Rev. 1933. V. 43. P. 363.
- [160] G.E.M. Jauncey and J.H. Deming // Phys. Rev. 1935. V. 48. P. 462.
- [161] A. Nemejcova and J. Broz. The Effect of a Direct Electric Field on the Laue Diffraction Photographs// Phys. Rev. 1938. V. 54. P. 379.
- [162] A.S. Bhalla et al. // Phys. Stat. Sol. 1971.V. 7. P. 335-339.
- [163] G.R. Barsch. // Acta Cryst. 1976. V. A32. P. 575-586.
- [164] S. Annaka // J. Appl. Cryst. 1977. V. 10. P. 354-355.
- [165] S.V. Gorfman, V.G. Tsirelson, U. Pietsch. // Acta Cryst. V. A61. P. 387-396.
- [166] S.V. Gorfman, V.G. Tsirelson, A. Pucher, W. Morgenroth, U. Pietsch. // Acta Cryst. V. A62. P. 1-10.
- [167] S. Gorfman, O. Schmidt, U. Pietsch, P. Becker, L. Bohaty // Z.Kristallogr. 2007. V. 222. P. 396-401.
- [168] O. Schmidt, S. Gorfman, U. Pietsch // Cryst. Res. Technol. 2008. V. 43. N. 11. P. 1126-1132.
- [169] Y.H. Yu, M.O. Lai, L. Lu. // Phys. Scr. 2007. V. T129. P. 353-357.
- [170] L. H. Avanci, L. P. Cardoso, S. E. Girdwood, D. Pugh, J. N. Sherwood, K. J. Roberts // Phys. Rev. Letters. 1998. V. 81. № 24. P. 5426-5429.

-
- [171] Пшеничнов Ю.П. Выявление тонкой структуры кристаллов. М:Металлургия 1974
- [172] Бушуева Г.В., Зиненкова Г.М. и др. //Кристаллография т.53, №3, с. 507-512, 2008
- [173] Кокер Э., Файлон Л. Оптический метод исследования напряжений, ОНТИ 1936
- [174] Тяпунина Н.А., Красников В.Л. и др. // ФТТ, 2003, том 45, вып. 1 с.95-100
- [175] Швидковский Е.Г., Дургарян А.А., Тяпунина Н.А. // Научные доклады высшей школы .Сер. Физ.-мат. Науки 1958 с 172
- [176] Quimby S.L. // Phys.rev. 1925. V.25, N2, P.558
- [177] Zacharias J. // Phys.rev. 1933. V.44, N1, P.117
- [178] Balamuth L. // Phys.rev. 1934. V.45, N3, P.715
- [179] Cooke W.T. // Phys.rev. 1936. V.50, N5, P.1158
- [180] Бергман Л. Ультразвук и его применение в науке и технике М.: ИЛ, 1957
- [181] Мазон У. Физическая акустика, Т.1, ч.А.:М.: Мир 1966
- [182] Александров А.Я., Ахметзянов М.Х. Поляризационно-оптические методы исследования механики деформируемого тела. М.: Наука, 1973
- [183] Степанов А.В. Основы практической прочности кристаллов М.: Наука 1974
- [184] Клявин О.В. Физика пластичности кристаллов при гелиевых температурах М.: наука 1987
- [185] Белозерова Э.П., Тяпунина Н.А., Казак Ф.А.// ФТТ 1968 т.10, Т12, С.3540
- [186] Тяпунина Н.А., Наими Е.К. // Изв. АН Латвийской ССР Сер. Физ-тех науки 1970 Т6 С.30
- [187] Базелюк Г.Я., Полоцкий И. Г., Действие ультразвукового облучения на дислокационную структуру монокристаллов // Физика металлов и металловедение.– 1960. –№.5.– С.56-61.

-
- [188] Степанов Ю.Н., Алехин В.П. Изменение распределения плотности краевых дислокаций в образце при возникновении стоячей волны // Физика и химия обработки материалов.–1999.–№1.–С.78–83.
- [189] Полоцкий И.Г., Базелюк Г.Я. Действие ультразвука на разориентацию фрагментов в объеме монокристаллов меди // Металлофизика.– 1970. – Вып.29.– С.99.
- [190] Шестак Я.Теория термического анализа.– М.: Мир, 1987.– 455с.
- [191] Базелюк Г.Я., Козырский И.Г. Электронно-микроскопические исследования дислокационной структуры поликристаллического алюминия, облученного ультразвуком // Физика металлов и металловедение.– 1971.– Вып.1.– С.145
- [192] Полоцкий И.Г., Мордюк Н.С.Воздействие ультразвука на дислокационную структуру монокристаллов алюминия // Металлофизика.– 1970.–№29.–С.99–101.
- [193] Кривоглаз М.А. Дифракция рентгеновских лучей и нейтронов в неидеальных кристаллах.– М.: Н. думка, 1983.– 213с.
- [194] Панин В.Е., Данилов В.И., Структурные уровни пластической деформации и разрушения. –Новосибирск: Наука, 1990.– 167с.
- [195] Базелюк Г.Я., Рябошапка К.П. Рентгенодифракционные исследования параметров дислокационной структуры алюминия // Металлофизика.– 2003.– Т.25.– №2.– С.243-256
- [196] P. P. Ewald, "Zur Begrundung der Kristallographic, Teil 1", Ann. Phys., 1916, 49, 1-38
- [197] P. P. Ewald, "Zur Begrundung der Kristallographic, Teil 2", Ann. Phys., 1916, 49, 117-143
- [198] P. P. Ewald, "Zur Begrundung der Kristallographic, Teil 3", Ann. Phys., 1917, 54, 519-597
- [199] M. Laue, "Ergebnisse der Exakten Naturwissenschaften, vol. 10", Berlin, Springer, 1931, p. 133-158
- [200] M. Laue, Rontgenstrahl-Interferensen, Academische Verlag, Frankfurt, 1960
- [201] P. Penning, "Dynamical Theory for Simultaneous X-Ray Diffraction ", in: Advances in X-Ray Analysis, vol. 10, N.Y., Plenum Press, 1967, p.67-79

-
- [202] P. Penning, "Dynamical Theory for Simultaneous X-ray Diffraction. Part 2. Application to the Three-Beam Case", Philips Res. Rep., 1968, 23, 12-24
- [203] P. Penning, D. Polder, "Dynamical Theory for Simultaneous X-ray Diffraction. Part 1. Theorems Concerning the n-Beam Case", Philips Res. Rep., 1968, 23, 1-11
- [204] A. M. Afanasev, V. G. Kohn, "On the Theory of Simultaneous X-Ray Diffraction", Acta Cryst. A., 1976, 32, 308-310
- [205] R. Hoier, A. Aanestad, "Three-beam effects in Pendellosung fringes", Acta Cryst. A, 1981, 37, 787-794
- [206] R. Hoier, K. Marthinsen , "Effective structure factors in many-beam X-ray diffraction - use of the second Bethe approximation", Acta Cryst. A, 1983, 39, 854-860
- [207] K. Marthinsen, R. Hoier, "Many-Beam Effects and the Phase Information in Electron Channeling Patterns", Acta Cryst. A., 1986, 42, 484-492
- [208] Colella R., Multiple diffraction of X-rays and the phase problem. Computational procedures and comparison with experiment// Acta Cryst., 1974, v.A30, p.413-423
- [209] Kohn V.G., On the theory of the Bragg reflection in the case of multiple x-ray diffraction// Phys. Status Solidi (a), 1979, v.54, p. 375-384
- [210] Chang Sh.-L., // Acta Cryst., 1979, v.A38, p.543
- [211] Kohn V.G., A theory of multiple Bragg diffraction of x-rays in multilayer crystal systems// J. Moscow Phys. Soc., 1991, v.1, N 4, p.425-434
- [212] Huang H.-H., Chang Sh.-L., Theoretical consideration on two-beam and multi-beam grazing-incidence x-ray diffraction: Nonabsorbing case// Acta Cryst., 1989, v.A45, p.823-833
- [213] Пинскер З.Г. Рентгеновская кристаллооптика// М.: Наука, 1982
- [214] Чжан III. Многоволновая дифракция рентгеновских лучей в кристаллах. Пер. с англ. - М.:Мир, 1987
- [215] S. A. Stepanov, A. P. Ulyanenko, "A New Algorithm for Computation of X-ray Multiple Bragg Diffraction", Acta Cryst. A, 1994, 50, 579-585
- [216] Y. P. Stetsko, S.-L. Chang, "An Algorithm for Solving Multiple-Wave Dynamical X-ray Diffraction Equations", Acta Cryst. A, 1997, 53, 28-34

-
- [217] Y. P. Stetsko, S.-L. Chang, "Three-wave X-ray diffraction: an analysis scheme of the sensitivity in determining triplet phase invariants", *Acta Cryst. A*, 1999, 55, 683-694
- [218] Y. P. Stetsko, S.-L. Chang, "Three-wave grazing-incidence X-ray diffraction from thin crystal surface layers: determination of triplet phase invariants", *Acta Cryst. A*, 1999, 55, 457-465
- [219] Y. P. Stetsko, H. J. Juretschke, Y.-S. Huang, C.-H. Chao, C.-K. Chen and S.-L. Chang, "The phenomenon of polarization suppression of X-ray Umweg multiple waves in crystals", *Acta Cryst. A*, 2000, 56, 394-400
- [220] Y. P. Stetsko, H. J. Juretschke, Y.-S. Huang, Y.-R. Lee, T.-C. Lin, S.-L. Chang, "Polarization-resolved output analysis of X-ray multiple-wave interaction", *Acta Cryst. A*, 2001, 57, 359-367
- [221] Y. P. Stetsko, Y.-R. Lee, M.-T. Tang, S.-L. Chang, "Phase-dependent polarization aspects of three-wave X-ray diffraction: an iterative Born approximation", *Acta Cryst. A*, 2004, 60, 64-74
- [222] M.-S. Chiu, Yu. P. Stetsko and S.-L. Chang, "Dynamical calculation for X-ray 24-beam diffraction in a two-plate crystal cavity of silicon", *Acta Cryst. A*, 2008, 64, 394-403
- [223] G. Mayer, "Über Aufhellungen in Rontgenspektrogrammen", *Z. Kristall. A*, 1928, 66, N.5/6, 585-636
- [224] M. Reninger, "Umweganregung, eine bisher unbeachtete Wechselwirkungserscheinung bei Raumgitterinterferenzen", *Z. Phys.*, 1937, 106, N.3/4, 141-176
- [225] M. Reninger, "Verstärkung schwacher und Vortauschung Verbotener Rontgenreflex durch Umweganregung", *Z. Naturwissensch.*, 1937, 25, N.3, 43
- [226] M. Reninger, "Rontrenometrische Beiträge zur Kenntnis der Ladungsverteilung im Diamantgitter", *Z. Kristall. A*, 1937, 97, N.1/2, 107-121
- [227] Keating D., Nunes A., Batterman B., Hastings J., Forbidden (222) neutron reflection in silicon. Anharmonicity and the bonding electrons// *Phys. Rev. B*, 1971, v.6, N.8, p.2472-2478
- [228] Roberto J. B., Batterman B.W., Keating D., Diffraction studies of the (222) reflection in Ge and Si: Anharmonicity and the bonding electrons// *Phys. Rev. B*, 1974, v.9, N.6, p.2590-2599

-
- [229] Mills D., Batterman B.W., Synchrotron-radiation measurements of forbidden reflections in silicon and germanium// Phys. Rev. B, 1980, v.22, N.6, p.2887-2893
- [230] Tischler J.Z., Batterman B.W., Determination of magnitude, phase and temperature dependence of forbidden reflection in silicon and germanium// Phys. Rev. B, 1984, v.30, N.12, p.7060-7066
- [231] Tischler J.Z., Batterman B.W., Determination of phase using multiple-beam effects// Acta Cryst., 1986, v.A42, p.510-514
- [232] Patterson A.L. A direct method for the determination of the components of interatomic distances in crystals. Zs. Kristallogr. 1935. V.A90. P.517.
- [233] Woolfson M.M. Direct methods in crystallography. Oxford: Oxford University Press. 1961.
- [234] Perutz M.F. Proc. Roy. Soc. London. 1954. V.A225. P.264.
- [235] Rossman M.G., Hodgkin D.C. The molecular replacement method, ed. Rossman M.G. New York: Gordon and Breach. 1972.
- [236] Okaya Y., Pepinsky R. Computing methods and the phase problem in X-ray crystal analysis, ed. Pepinsky R., Robertson J.M. and Speakman J.C. Oxford: Pergamon. 1961.P.273.
- [237] Caticha-Ellis S. Anomalous dispersion of X-rays in crystallography. Cardiff: University College Press. 1978.
- [238] Karle J. The relative scaling of multiple-wavelength anomalous dispersion data. Acta Cryst. 1983. V. A39. P. 1.
- [239] Lipscomb W.N., Relative phases of diffraction maxima by multiple reflection// Acta Cryst., 1949, v.2, p.193-194
- [240] Post B. The intensities of multiple diffraction effects. Acta cryst. 1969. V.A25. P.94.
- [241] Hummer K., Billy H.W. Theoretical considerations on phase determination by three-beam interference. Act Cryst. 1982. V.A38. P.841.
- [242] Post B. The experimental determination of the phases of X-ray reflections. Acta Cryst. 1983. V.A39. P.711.
- [243] Кшевецкий С. А., Стецко Ю.П., Шелудько С. А., Многоволновой дифрактометрический метод определения фазовых инвариантов// Кристаллография, 1987, т. 32, вып. 2, с. 308-310

-
- [244] Chang S.-L. Multiple diffraction of X-rays in crystals. Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg-New York-Tokyo. 1984.
- [245] Chang S.-L. Solution to the X-ray Phase Problem Using Multiple Diffraction. Crystallography Reviews. 1987. V.1. P.87.
- [246] Hummer K., Schwegle W., Weckert E. Experimental determination of reflection phases by three-beam diffraction and its applications. Acta Physica Polonica. 1992. V.A82. JVsl. P.83.
- [247] Weckert E., Schwegle W., Hummer K. Direct phasing of macromolecular structures by three-beam diffraction. Proc. R. Soc. Lond. 1993. V.A442. P.33.
- [248] Weckert E., Hummer K. Multiple-beam X-ray diffraction for physical determination of reflection phases and its applications. Acta cryst. 1997. V.A53. P.108.
- [249] Shen Q., Colella R., Phase determination in an organic crystal (benzil: C₁₄H₁₀O₂) using long-wavelength X-rays// Acta Cryst., 1988, v.A44, p.17-21
- [250] Chang Sh.-L., H.E.King, M.-T. Huang, Y.Gao, Direct phase determination of large macromolecular crystals using three-beam x-ray interference// Phys.Rev.Lett., 1991 v.67, N 22, pp.3113-3116
- [251] Huang M.-T., Wang C.-M. and Chang S.-L. Direct phase determination for macromolecular crystals using the multiple-diffraction technique and an in-house X-ray source. Acta Cryst. 1994. V.A50. P.342.
- [252] Lee H., Colella R., Chapman L.D., Phase Determination of X-Ray Reflection in a Quasicrystal. Acta Cryst., 1995, v.A51, p. 367
- [253] Afanas'ev A.M., Zozulya A.V., Koval'chuk M.V. and Chuev M.A. Phase problem in three-beam X-ray diffraction. JETP Letters. 2002. V.75. N.7. P. 309-313.
- [254] Chapman L.D., Yoder D.R., Colella R., Virtual Bragg scattering: A practical solution to the phase problem in diffraction// Phys. Rev. Lett., 1981, v.46, p.1578-80
- [255] Schmidt M.C., Collela R., Phase determination of forbidden X-ray reflections in V₃Si by virtual Bragg scattering// Phys. Rev. Lett., 1985, v.55, p.715-717
- [256] Кон В.Г. // Кристаллография. 1988. Т. 33. С. 567.

-
- [257] A. Kazimirow, V. G. Kohn, "High-resolution study of dynamical diffraction phenomena accompanying the Renninger (222/113) case of three-beam diffraction in silicon", *Acta Cryst. A.*, 2010, 66, 451-457
- [258] A. Kazimirow, V. G. Kohn, High-resolution study of (222, 113) three-beam diffraction in Ge, *Acta Cryst. A.*, 2011, 67, 409-414
- [259] Bruning R., Durfresne E., Goldman A.M., Lograsso T.A., Dynamical X-ray diffraction from an icosahedral quasicrystal// *Phys.Rev.B*, 1993, v.48, N 5, p.3544-3547
- [260] Shen Q., Finkelstein K.D., Solving the Phase Problem with Multi-Beam Diffraction and Elliptically Polarized X-Rays// *Phys. Rev. Lett.*, 1990, v.65, N 26, p.3337-3340
- [261] Finkelstein, Shen Q., // *Phys.Rev.B*, 1989, v.45, p.5075
- [262] Дейген М.И., Слабые нарушения симметрии в кристаллах и многоволновая рентгеновская дифрактометрия., В кн.: Методы структурного анализа. - М.: Наука, 1989
- [263] Isherwood B.J., X-ray multiple diffraction as a tool for studying heteroepitaxial layers. I. Coherent, on-axis layers// *J. Cryst. Growth*, 1981, v.54, p.449-460
- [264] Morelhao S., Cardoso L., Sasaki J., Carvalho M., Hybrid multiple diffraction in Renninger scan for heteroepitaxial layers// *J.Appl.Phys.*, 1991, v.70, N 5, p.2589-2593
- [265] Morelhao S.L., Avanci L.H., Hayashi M.A., Cardoso L.P., and Collins S.P. Observation of coherent hybrid reflection with synchrotron radiation. *Appl. Phys. Lett.* 1998.V.73.N.15.P.2194.
- [266] Brown B.R., Halliwell M.A., Isherwood B.J., The characterization of distortions in heteroepitaxial structures by multiple diffraction// *J. Microscopy*, 118(3) (1980) pp.375-381
- [267] Isherwood B.J., Brown B.R., Halliwell A.G. X-ray multiple diffraction as a tool for studying heteroepitaxial layers. I. Coherent, off- axis layers// *J. Cryst. Growth*, 1982, v.60, N.1, p.33-42
- [268] Chang S.L. Simultaneous Bragg diffraction from liquid-phase epitaxial thin films// *Acta Cryst.*, 1981, V.A37, p.876-889

-
- [269] Salles de Costa, Cardoso L., Mazzocchi V., Parente C., Simulation of Renninger scans for heteroepitaxial layers// J.Appl.Cryst., 1992, v.25, p.366-371
- [270] Sasaki J., Cardoso L.P., Campos C., Roberts K.J., Clark G.F., Pantos E., Sacilotti M.A., Using synchrotron radiation X-ray multiple diffraction to examine the lattice coherency of semiconductor surfaces and epitaxial layers// Phys.Rev.B, 1996, v.53, p.7054-7069
- [271] Post B., Accurate lattice constants from multiple diffraction measurements. I. Geometry, techniques and systematic errors// J. Appl. Cryst., 1975, v.8, p.452-456
- [272] Horn T., Kiszenick W., Post B., Accurate lattice constants from multiple diffraction measurements. II. Lattice constants of germanium, silicon and diamond, J. Appl. Cryst., 1975, v.8, p.457-458
- [273] Bond W.L. // Acta Cryst. 1960. V.13. P.814.
- [274] Зозуля А.В., Лидер В.В., Ковальчук М.В. Использование компланарной многоволновой дифракции для прецизионного определения параметров кристаллической решетки. Поверхность. 2002. №12. С.28.
- [275] Greiser N., Materlik G. Three-beam X-ray standing wave analysis: a two dimensional determination of atomic positions. Z. Phys. B. 1987. V.66. P.83.
- [276] Kohn V.G. X-ray standing waves under the conditions of multiple diffraction. Phys. stat. Sol.(a). 1988. V.106. P.31.
- [277] Kazimirov A.Yu., Kovalchuk M.V., Kohn V.G., Kharitonov I.Yu., Samoilova L.V., Ishikawa T., Kikuta S., Hirano K. Multiple diffraction in X-ray standing wave method: photoemission measurements. Phys. Stat. Sol.(a). 1993. V.135.P.507.
- [278] V.G. Kohn, L.V. Samoilova. On the Possibility of Layer-by-Layer Analysis of Near-Crystal Structure by the Method of Three-Beam X-ray Diffraction. Phys. Stat. Sol. 1992. V. 133A. P. 9 – 16.
- [279] M.V. Kovalchuk, A. Kazimirov, V.Kohn, A.Kreines, and L. Samoilova, Phase-sensitive multiple-diffraction studies of single crystals. Physica B: Cond. Matter. 1996. V. 221. P. 445.
- [280] A.Yu. Kazimirov, M.V. Kovalchuk, V.G. Kohn et al. Photon Factory Activity Report. 1991. V. 9 P. 238.

-
- [281] Ковьев Э.К., Андреев А. В., Дейген М.И., Новые возможности метода стоячих рентгеновских волн// ФТТ, 1984, т. 26, в. 10, с. 3201-3202
- [282] Kovev E.K., Andreev A.V., Deigen M.I., Gorshkov V.E., Polar scanning in multi-beam diffractometry// Phys. Stat. Sol., (a), 1985, v.92, p.391-398
- [283] Ковьев Э.К., Симонов В. И., Экспериментальное определение фаз структурных амплитуд// Письма в ЖЭТФ, 1986, т. 43, в. 5, с.244-247
- [284] B. Post, J. Nicolosi, J. Ladell. Acta Crystallogr. 1984. V. 40. P. 684.
- [285] A. Yu. Kazimirov, M.V. Kovalchuk, I . Yu. Kharitonov, et al. Rev. Sci. Instrum. 1992. V. 63. N' 1. P. 1019-1023.
- [286] Зозуля А.В., Ковальчук М.В., Лидер В.В., Самойлова Л.В. Экспериментальное осуществление многоволновой компланарной дифракции на примере кристалла KDP. Поверхность. 2001. №7. С.6.
- [287] Зозуля А.В., Ковальчук М.В. Экспериментальное наблюдение усиления интерференционного эффекта в условиях компланарной трехволновой рентгеновской дифракции. Поверхность. 2002. №12. С.25.
- [288] Stepanov S.A., Novikov D.V., Kondrashkina E.A., X-ray surface back diffraction// Nuclear Instruments and Methods, 1991, V.A301, p.350-357
- [289] Kottwitz D.A., High-resolution monochromator of neutrons and X-Rays by multiple Bragg reflection// Acta Cryst., 1971, v.A27, p.391-392
- [290] G. Borrmann, W. Hartwig, "Die Absorption der Rontgenstrahlen im Dreistrahlfall der Interferenz", Z. Kristall., 1965, 121, 401
- [291] T. Joko, A. Fukuhara, "Simultaneous Diffraction and Borrmann Effect", J. Phys. Soc. Japan, 1967, 22, 597-604
- [292] Afanasev A.M., Kohn V.G., Borrmann effect in the three-wave case of X-ray diffraction// Phys.Stat.Sol. a, 1975, v.28, N1, p.61-70
- [293] Бородина Т. И., Иверонова В. И., Кацнельсон А. А., Трехволновая дифракция рентгеновских лучей в Се// Кристаллография, 1974, т.19, в.5, с.1140-1147
- [294] Авдюхина В.М., Гусева Е.В., Иверонова В. И., Кацнельсон А. А., Трехволновая дифракция рентгеновых лучей в кристаллах со структурой типа сфалерита// Кристаллография, 1980, т. 25, в. 6, с. 702-707

-
- [295] Кон В. Г., К теории многоволновой дифракции рентгеновских лучей. Угловая зависимость аномального прохождения в шестиволновом случае// ФТТ, 1976, т.18, в.9, с.2538-2545
- [296] Кон В. Г., Об эффекте аномально слабого поглощения рентгеновских лучей в монокристалле в условиях 12-волновой дифракции// Кристаллография, 1987, т. 32, вып. 4, с. 844–851
- [297] Post B., Chang Sh.L., Huang T.C., Simultaneous four-beam Borrman diffraction// Acta Cryst., 1977, v.A33, N1, p.90-97
- [298] Кацнельсон А. А., Иверонова В. И., Поляков Н.А., Трехвольновой эффект Бормана в германии // Кристаллография, 1969, т. 14, вып. 6, с.965-968
- [299] Иверонова В. И., Кацнельсон А. А., Рунова Т.К., Экспериментальное обнаружение многоволнового эффекта Бормана в кремнии // Кристаллография, 1978 т. 22, вып. 2, с. 398
- [300] Козьмик В. Д., Кшевецкий С. А., Кшевецкая М.Л., Михайлюк И. П., Остапович М.В., Усиление эффекта Бормана при четырехвольновой дифракции рентгеновских лучей в Ge. Конфигурация (220, 400, 220) // Кристаллография, 1976, т.21, вып. 5, с.899-906
- [301] Chang Sh.L., Coherent interactions of multiple diffraction X-rays in crystals// Z.Naturforsh., 1982, v.37a, N 5, p.501-504
- [302] Кшевецкий С. А., Михайлюк И. П., Усиление аномального прохождения рентгеновских лучей при шестиволновой дифракции// Кристаллография, 1976, т. 21, вып. 2, с. 381-382
- [303] Kazimirov A.Yu., Kovalchuk M.V., Kohn V.G., Ishikawa T., Kikuta S., Hirano K., Direct Measurements of X- Ray Anomalous Transmission in Six- Beam Laue Diffraction. Europhys.Lett., 1993, v.24, N 3, p.211-216
- [304] A.Yu. Kazimirov, M.V. Kovalchuk, I.Yu.Kharitonov, L.V.Samoilova, T. Ishikawa, S. Kikuta, New possibilities of the X-ray standing wave method in multiple diffraction of synchrotron radiation // Rev.Sci.Instrum., 1992, v.63, p.1019-1023
- [305] Кшевецкий С. А., Лескова Г. В., Стецко Ю.П., Некомпланарный рентгеновский монолитный монохроматор// УФЖ, 1986, т. 11, N 22, с.1397-1400

-
- [306] Bubakova R., Pacherova O., Many beam cases of X-ray diffraction in the Bragg case// Acta Cryst., 1978, v.A34, N S4, p.5233
- [307] Gabrielan Ts., Kohn V.G., A new type of monochromator for synchrotron Radiation with the three-beam diffraction// Phys.Stat Sol. (a), 1980, v.59, p.697-700
- [308] Hart M. // Lecture Notes in Physics. Imaging Processes and Coherence in Physics. 1980. V. 112. P. 325-335.
- [309] Matsushita T., Ishikawa T.,Oyanagi H. // Nucl. Instrum. Methods. 1986. V. A246. P. 377.
- [310] A. Erko, M. Idir, Th. Krist, G. Michette // Modern Developments in X-Ray and Neutron Optics, Eds.: Springer. 2008. 541 p.
- [311] М.А. Чуев, Э.М. Пашаев, В.В. Квардаков, И.А. Субботин // Кристаллография. 2008. Т.53. № 5. С. 780.
- [312] А.Г. Сутырин, Д.Ю. Прохоров //Кристаллография. 2006. Т. 51. № 5. С.570.
- [313] F.N. Chukhovskii //Acta Cryst. 2009. V. A65. P. 39.
- [314] Z.G. Pinsker // Dynamical Scattering of X-Rays in Crystals. Springer Softcover reprint of the original 1st ed. 1978. 511 p.
- [315] А.Е. Благов, М.В.Ковальчук, В.Г. Кон, В.В. Лидер, Ю.В. Писаревский. Исследование возможностей управления рентгеновским пучком с помощью кристалла, подвергнутого длинноволновым ультразвуковым колебаниям. // ЖЭТФ, 128, вып. 5(11), 2005, с. 893-903.
- [316] А.Е. Благов, М. В. Ковальчук, В. Г. Кон, Ю. В. Писаревский. Динамическое изменение параметра решетки кристалла с помощью ультразвука в рентгенодифракционных экспериментах. // Кристаллография, 51, вып. 5, 2006, стр 779-785
- [317] Благов А.Е. Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук. Москва 2006г.
- [318] А. Е. Благов, М. В. Ковальчук, В. Г. Кон, Ю. В. Писаревский, "Динамическое изменение параметра решетки кристалла с помощью ультразвука в рентгенодифракционных экспериментах", Кристаллография, 2006, т. 51, N. 5, с. 1-6.

-
- [319] В. Г. Кон, "Метод траекторий в теории Лауэ дифракции рентгеновских лучей в кристалле. I. Общие формулы и оценка точности" // Кристаллография, 2007, т. 52, т. 52, N. 4, с. 625-630.
- [320] В. Г. Кон "Метод траекторий в теории Лауэ дифракции рентгеновских лучей в кристалле. II. Эффект полного отражения при изгибной деформации" // Кристаллография, 2008, т. 53, N. 2, с. 203-209
- [321] Мэзон У., Пьезоэлектрические кристаллы и их применение в ультраакустике, пер. с англ. , Москва, 1952.
- [322] Блистанов А.А., Бондаренко В.С., Переломова Н.В., Стрижевская Ф.Н., Чкалова В.В., Шаскольская М.П. М.: Наука, 1982. - 632 с.
- [323] Андреев В.Г., Крит Т.Б., и др.// Акустический журнал, 2011, 57, 1, с. 3-12.
- [324] А. Е. Благов, А. Н. Даринский, М. В. Ковальчук, Ю. В. Писаревский, П. А. Просеков, А В. Таргонский «Рентгеноакустические резонаторы для управления пространственными характеристиками рентгеновского излучения», Акустический журнал, 2013, том 59, № 5, с. 561–568
- [325] З.Г. Пинскер, Э.К. Ковьев, А.В. Миренский, А.С. Фокин, М.В. Ковальчук, Ю.Н. Шилин. Авторское свидетельство №46 3045.
- [326] Э.К. Ковьев, М.В. Ковальчук, З.Г. Пинскер. // Кристаллография, 19, 1062, 1974.
- [327] М.В. Ковальчук, Э.К. Ковьев, А.В. Миренский, Ю.Н. Шилин. // Приборы и техника эксперимента, №4, 203, 197.
- [328] А.Е. Благов, М. В. Ковальчук, В. Г. Кон, Ю. В. Писаревский. Динамическое изменение параметра решетки кристалла с помощью ультразвука в рентгенодифракционных экспериментах. // Кристаллография, 51, вып. 5, 2006, стр. 779-785
- [329] Тяпунина Н.А., Зиненкова Г.М., Наими Е.К. Действие ультразвука на кристаллы с дефектами изд. МГУ, 1999 238с.
- [330] К.В. Сапожников, С.Б. Кустов «Акустопластический эффект и внутреннее трение монокристаллов алюминия на различных стадиях деформирования» //ФТТ, 1997, том 39, 10
- [331] М.В. Ковальчук, А.В. Таргонский, А.Е. Благов, И.С. Занавескина, Ю.В. Писаревский. «Новый метод измерения кривых дифракционного отражения в

рентгеновской дифрактометрии с помощью ультразвуковой модуляции параметра решетки», Кристаллография, 2011, том 55, № 5, с 778-781.

[332] А.Е. Благов, П.А. Просеков, А.В. Таргонский, Я.А. Элиович Измерение кривых дифракционного отражения кристаллов с помощью акустически перестраиваемого монохроматора// Кристаллография 2015, Т60 №2, стр 189-193

[333] Благов А.Е., Таргонский А.В., Писаревский Ю.В., Просеков П.А., Элиович Я.А., Ковальчук М.В Новые возможности рентгеновской акустооптики //Вестник РФФИ. 2014. № 2 (82). С. 18-20

[334] Балагуров А.М., Благов А.Е., Занавескина И.С., Ковальчук М.В., Писаревский Ю.В., Таргонский А.В. Изучение дефектной структуры кристаллических материалов на основе нейтронной и рентгено-акустической дифрактометрии. Разработка рентгеноакустического метода изучения динамики механической деформации кристаллов «*in situ*» // Вестник РФФИ. 2015. №2(86). С. 85-90.

[335] Зубавичус Я.В., Словохотов Ю.Л. Рентгеновское синхротронное излучение в физико-химических исследованиях// Усп. хим. 2001. Т.70. С.429.

[336] Носик В. Л., Ковальчук М. В. Рентгеновские элементы, основанные на колеблющихся кристаллах // Поверхность 2000. Т.1. с.91

[337] Liss K.-D., Magerl A., Remhof A. and Hock R. Ultrasound-Induced Gradient Crystals Observed by High-Energy X-rays//Acta Cryst. A. 1997. V53, p. 181.

[338] Smither R.K., Saleem K.A., Roa D.E., Beno M.A., Ballmoos P.V., Skinner G.K. // Exp. Astron. 2005. V.20. p. 201

[339] А.Е. Благов, Ю.В. Писаревский, М.В. Ковальчук «Быстрая ультразвуковая перестройка длины волн в рентгеновском эксперименте» // Кристаллография, 2016 том 61, № 1, с. 191–194

[340] Ш. Чжан, Многоволновая дифракция рентгеновских лучей в кристаллах, М., Мир, 334 с. (1987)

[341] З. Г. Пинскер, Рентгеновская кристаллооптика, М., Наука, с. 390 с. (1982).

[342] Ковьев Э.К., Симонов В.И. Экспериментальное определение фаз структурных амплитуд // Письма в ЖЭТФ. 1986. Т. 43. С. 244.

-
- [343] Афанасьев А.М., Зозуля А.В., Ковальчук М.В., Чуев М.А. О фазовой проблеме в трехволной рентгеновской дифракции// Письма в ЖЭТФ. 2002. Т. 75. С. 379.
- [344] Кон В.Г. Полное отражение рентгеновских лучей в запрещенный рефлекс при многоволновой дифракции в схеме Реннингера // Кристаллография. 1988. Т. 33. С. 567.
- [345] А. Е. Благов, М. В. Ковальчук, В. Г. Кон, Ю. В. Писаревский, П. А. Просеков. Наблюдение сильного виртуального рассеяния в условиях трехвольновой (220, 371) дифракции рентгеновских лучей в монокристалле TeO₂ // Кристаллография, 55, 1159 (2010)
- [346] А.Е. Благов, М.В. Ковальчук, В.Г. Кон, Э.Х. Мухамеджанов, Ю.В. Писаревский, П.А. Просеков // «Исследование трехвольновой компланарной дифракции рентгеновских лучей в монокристалле TeO₂ с использованием синхротронного излучения» Поверхность, 2011, № 9, стр. 1-6.
- [347] М.П. Шаскольская. Кристаллография. Учебник для вузов. М., «Высш. школа». 1976.
- [348] Лидер В.В. // Кристаллография. 1994. Т.39. №3. С. 406.
- [349] Kohn V.G. X-ray standing waves under the conditions of multiple diffraction. Phys. stat. Sol.(a). 1988. V.106. P.31.
- [350] Chapman L.D., Yoder D.R., Colella R., Virtual Bragg scattering: A practical solution to the phase problem in diffraction// Phys. Rev. Lett., 1981, v.46, p.1578-80
- [351] Schmidt M.C., Colella R., Phase determination of forbidden X-ray reflections in V₃Si by virtual Bragg scattering// Phys. Rev. Lett., 1985, v.55, p.715-717
- [352] Renninger M. „Umweganregung“, eine bisher unbeachtete Wechselwirkungserscheinung bei Raumgitterinterferenzen // Z. Phys. 1937. V. 106. P. 141-176.
- [353] R. Hoier, K. Marthinsen , "Effective structure factors in many-beam X-ray diffraction - use of the second Bethe approximation", Acta Cryst. A, 1983, 39, 854-860
- [354] Кондратьев И.П., Мурадян Л.А., Писаревский Ю.В., Симонов В.И. // Кристаллография. 1987. Т. 32. С. 609.

-
- [355] Tomas P.A. // J. Phys. C: Solid State Phys. 1988. V. 21. P. 4611.
- [356] Kohn V.G. On the Theory of the Bragg Reflection in the Case of Multiple X-Ray Diffraction // Phys. Status Solidi (a). 1979. V. 54. P. 375.
- [357] Кон В.Г. Теория когерентного резонансного рассеяния гамма-излучения регулярной системой ядер в кристалле в условиях многоволновой дифракции // ЖЭТФ. 1994. Т. 105. С. 665.
- [358] S.-L. Chang Solution to the X-ray Phase Problem Using Multiple Diffraction// Crystallography Reviews. 1987. V. 1. P. 87.
- [359] Н. В. Марченков, А. Е. Благов, В. А. Ломонов, Ю. В. Писаревский, М. В. Ковальчук. Изучение дефектной структуры кристалла парателлурита с помощью многоволновой дифракции и стандартной двухволновой дифрактометрии // Кристаллография, 2013, том 58, № 2, с. 181–184.
- [360] Isomae S., Kishino S., Takagi K. et al Lattice-parameter measurement technique for single crystals using two lattice planes, and its application to $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ single crystals //J.Appl.Cryst. 1976. V.9. P.342.
- [361] Лидер В.В. //Заводская лаборатория. 2007. № 12. Т.73. С.25.
- [362] А.Е. Благов, М.В. Декапольцев, М.В. Ковальчук, В.В. Лидер, Ю.В. Писаревский, П.А. Просеков Измерение локальных значений параметров решетки кристаллов средних сингоний с использованием нескольких компланарных рефлексов // Кристаллография, 2010, том 55, № 6, с. 1133–1138.
- [363] A.Yu. Kazimirov, M.V. Kovalchuk, V. G. Kohn Investigation of Surface Layer Structure of Single Crystals with Triple Crystal X-Ray Diffractometry. // Acta Cryst. 1990. V. A46. P. 643-649
- [364] P.F. Fewster, N.L. Andrew Absolute Lattice-Parameter Measurement// J. Appl. Cryst. 1995. № 28. P. 451-458.
- [365] Bond W.L. Precision lattice constant determination // Acta Cryst. 1960. V.13. P.814.
- [366] Андреев И.А., Дубовик М.Ф. Новый пьезоэлектрик лангасит $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ – материал с нулевым температурным коэффициентом частоты упругих колебаний //Письма в ЖТФ. 1984. Т. 10. Вып. 8. С. 487-491.

-
- [367] Каминский А.А, Миль Б.В., Сильвестрова И.М. и др. // Изв. АН СССР. Сер.физ. 1983. Т. 47. №10. С. 1903-1908.
- [368] Kosinski J.A., Pastore R.A., Bigler E. et. al. // Proc. IEEE Int. Freq. Contr. Symp. 2001. P. 278-286.
- [369] Z. Wang, D. Yuan, L. Pan, X. Cheng, «Crystal growth and thermal and optical properties of $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ single crystals» Appl. Phys. Lett., № 77, p. 683–685, 2003.
- [370] J. Bohm, E. Chilla, C. Flannery, H. J. Frohlich, T. Hauke, R. B. Heimann, M. Hengst, U. Straube, «Czochralski growth and characterization of piezoelectric single crystals with langasite structure: $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ (LGS), $\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Nb}_{0.5}\text{O}_{14}$ (LGN) and $\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$ (LGT) II. Piezoelectric and elastic properties» Journal of Crystal Growth, № 216, p. 293-298, 2000.
- [371] В.В. Юнин, Т.И. Овсецина, Е.В. Чупрунов, Б.В. Милль, Б.А. Максимов, В.Н. Молчанов и Г.К. Фукин, «Уточнение структуры кристаллов семейства лангасита» Вестник ННГУ, № 1, стр. 75-80, 2004.
- [372] С.Ю. Степанов, «Stepanov X-RAY SERVER» В Интернете: <http://sergey.gmca.aps.anl.gov/>
- [373] В.И. Балакший, И.Б. Волошинов, Г.А. Князев и Л.А. Кулакова, Исследование акустооптических характеристик кристаллов теллура в режиме анизотропной дифракции света, Москва: Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, т. 78, № 10, стр. 87-95, 2008.
- [374] V.A. Lomonov, Y.V. Pisarevski, N.L. Sizova, I.M. Silvestrova, S.I. Dohnovskaya, M.N. Cholokov, «The Microhardness and the Toughness Anisotropy of Paratellurite Single Crystals in the T-650 C Temperature Range» Crystal Research and Technology, т. 27, № 7, p. 981-987, 1992.
- [375] N. Uchida, Y. Ohmachi, «Elastic and Photoelastic Properties of TeO_2 Single Crystal» Journal of Applied Physics, т. 40, p. 4692, 1969.
- [376] Y. Ohmachi, N. Uchida, «Temperature Dependence of Elastic, Dielectric, and Piezoelectric Constants in TeO_2 Single Crystals» Journal of Applied Physics, т. 41, p. 2307, 1970.
- [377] A.Yu. Gufan, Yu.M. Gufan, Z. Jiao, X.-F. Xu, «Theory of the structure and properties of α -paratellurite (TeO_2)» Physics of the Solid State, т. 48, p. 348, 2006.
- [378] N.F. Declercq, N.V. Polikarpova, V.B. Voloshinov, O. Leroy, J. Degrieck, «Enhanced anisotropy in Paratellurite for inhomogeneous waves and its possible

importance in the future development of acousto-optic devices» Ultrasonics, т. 44, p. 833-837, 2006.

[379] E.F. Skelton, J.L. Feldman, C.Y. Liu, I.L. Spain, «Study of the pressure-induced phase transition in paratellurite (TeO_2)» Physical Review B, т. 13, № 36, p. 2605, 1976.

[380] P.S. Peercy, I.J. Fritz, «Pressure-Induced Phase Transition in Paratellurite (TeO_2)» Physical Review Letters, т. 32, № 9, p. 466, 1974.

[381] S.V. Akimov, E.F. Dudnik, V.M. Duda, A.N. Tomchakov, Ferroelectrics, т. 307, № 1, p.13-18, 2004.

[382] С.В. Акимов, В.М. Дуда, Е.Ф. Дудник, А.И. Кушнерев и А.Н. Томчаков, «Вторичные ферроидные свойства частичных смешанных сегнетоэлектриков-сегнетоэластиков» Физика твердого тела, т. 48, № 6, стр. 1010, 2006.

[383] P. Toledano, M.M. Fejer, B.A. Auld. «Nonlinear elasticity in proper ferroelastics» Physical Review, т. 27, № 9, p. 5717, 1983.

[384] P.S. Peercy, I.J. Fritz, G.A. Samara, «Temperature and pressure dependences of the properties and phase transition in paratellurite (TeO_2): Ultrasonic, dielectric and raman and Brillouin scattering results» Journal of Physics and Chemistry of Solids, № 36, p. 1105, 1975.

[385] D.B. McWhan, R.J. Birgeneau, W.A. Bonner, H. Taub, J. D. Axe, «Neutron Scattering Study at High Pressure of the Structural Phase Transition in Paratellurite» Journal of Physics C: Solid State Physics, т. 8, p. 81, 1975.

[386] T.G. Worlton и R.A. Beyerlein, «Structure and order parameters in the pressure-induced continuous transition in TeO_2 » Physical Review B, т. 12, № 9, p. 1899, 1975.

[387] У. Кэди, Пьезоэлектричество, под ред. А. В. Шубникова, Москва: Издательство иностранной литературы, 721 с., 1949.

[388] N.S. Kozlova, E.V. Zabelina, O.A. Buzanov, V.V. Geraskin, // Abstract Booklet of 9th European Conference on Applications of polar Dielectrics, (ECAPD IX, Roma) Roma, Italy, August 2008.

[389] А.Е. Благов, Н.В. Марченков, Ю.В. Писаревский, П.А. Просеков и М.В. Ковальчук, «Измерение пьезоэлектрических констант кристалла лантан-галлиевого tantalата рентгенодифракционными методами» Кристаллография, т. 58, № 1, стр. 51-56, 2013.