

УДК 548.73

© 1990 г.

Степанов С. А., Кондрашкина Е. А.

**ДИНАМИЧЕСКИЕ ДИФРАКЦИОННЫЕ ЭФФЕКТЫ  
ПРИ ПОВЕРХНОСТНОМ ОБРАТНОМ РАССЕЯНИИ  
РЕНТГЕНОВСКИХ ЛУЧЕЙ**

Построена динамическая теория дифракции для двух- и четырехволнового поверхностного обратного рассеяния (ПОР) рентгеновских лучей. На основе анализа выведенных формул и расчетов дифракционных кривых показано, что ПОР можно использовать для угловой коллимации монохроматического рентгеновского излучения в двух плоскостях и для абсолютного измерения параметра решетки в тонких поверхностных слоях кристаллов. При этом реализация метода Бонда на основе ПОР проще, чем на основе обратного рассеяния в геометрии Брэгга, так как измерения можно проводить не только на обратнорассеянном, но и на проходящем пучке. Показано, что многоволновый характер ПОР сказывается в узкой угловой области и поэтому не был до сих пор зарегистрирован экспериментально.

В последние годы построена теория [1–3] и проведены первые измерения [4, 5] обратного рассеяния рентгеновских лучей в геометрии Брэгга, являющегося предельным случаем брэгговской дифракции при  $\theta_B \approx 90^\circ$ . В этих работах продемонстрированы особенности обратного рассеяния, позволяющие использовать его в экстремальном методе Бонда [4] и в рентгеновской оптике [5].

Разработка экспериментальных схем измерения обратного рассеяния в работах [4, 5] создает предпосылки для реализации поверхностного обратного рассеяния (ПОР), на которое впервые указано в работе [6]. ПОР можно рассматривать как предельный случай (при  $\theta_B \approx 90^\circ$ ) поверхностной дифракции (или дифракции в скользящей геометрии) — дифракционной геометрии, в которой отражающие плоскости перпендикулярны поверхности кристалла, а падающий и дифрагированный пучки образуют с поверхностью малые углы скольжения и вследствие этого испытывают зеркальное отражение [7–10]. Частный компланарный вариант ПОР проанализирован в работе [11].

В настоящей работе теоретически изучены эффекты динамической дифракции при двух- и четырехволновом ПОР; обсуждены их возможные приложения для исследования поверхности кристаллов.

**Анализ двухволнового ПОР.** В работах [1–3, 6] показано, что дифракционные соотношения для обратного рассеяния в основном идентичны соотношениям, описывающим стандартную дифракцию. Отличие заключается в необходимости более тщательного анализа угловой зависимости параметра  $\alpha$ , характеризующего отклонение падающей волны от условия Брэгга:

$$\alpha = \frac{2\mathbf{k}_0\boldsymbol{\tau} + \boldsymbol{\tau}^2}{k_0^2} \quad (1)$$

( $\mathbf{k}_0$  — волновой вектор падающей волны,  $\boldsymbol{\tau}$  — вектор обратной решетки).

Для определения угловой зависимости  $\alpha$  в случае ПОР рассмотрим схему дифракции, представленную на рис. 1. Падающий пучок одновременно образует малые углы  $\Phi_0$  и  $\delta\theta \sim 10^{-3}$  рад с поверхностью кристалла

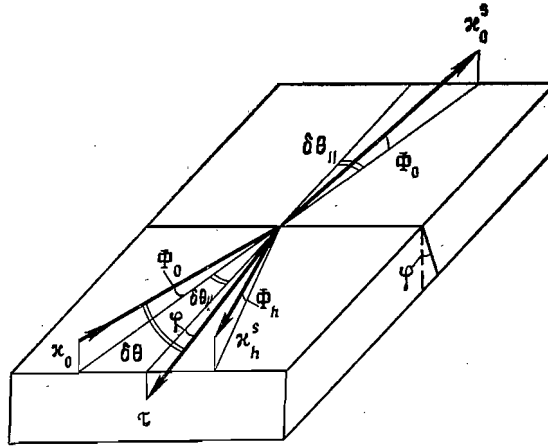


Рис. 1. Дифракционная схема поверхностного обратного рассеяния рентгеновских лучей:  $k_0$  — падающая волна;  $k_0^s$  — зеркальная проходящая;  $k_h^s$  — зеркальная обратнодифрагированная;  $\tau$  — вектор обратной решетки. Остальные обозначения см. в тексте

и вектором обратной решетки  $\tau$ . Вектор  $\tau$  в общем случае разориентирован относительно поверхности на малый угол  $\varphi$ . Длина волны  $\lambda$  в падающем пучке приблизительно равна удвоенному межплоскостному расстоянию  $d$  (условие обратного рассеяния), так что закон Брэгга записывается следующим образом [3]:

$$2d(1-\varepsilon)=\lambda, \text{ или } 2k_0(1-\varepsilon)=\tau.$$

Здесь  $\varepsilon \sim 10^5 \div 10^{-6}$  — параметр, характеризующий отклонение угла Брэгга  $\theta_B$  от  $\pi/2$ ;  $\pi/2 - \theta_B = (2\varepsilon)^{1/2}$ . Заметим, что обратное рассеяние возможно не только при  $\varepsilon \geq 0$ , но и при  $\varepsilon < 0$ ; в последнем случае параметр  $\theta_B$  теряет физический смысл, так как становится мнимым.

С учетом формулы (1) угловая зависимость параметра  $\alpha$  имеет вид  $\alpha = 2(\delta\theta^2 - 2\varepsilon)$ . Из рис. 1 следует, что  $\delta\theta^2 = \delta\theta_{\parallel}^2 + (\Phi_0 + \varphi)^2$  и, следовательно,

$$\alpha = 2[\delta\theta_{\parallel}^2 + (\Phi_0 + \varphi)^2 - 2\varepsilon]. \quad (2)$$

Здесь вместо  $\delta\theta$  введен более удобный угол  $\delta\theta_{\parallel}$ , характеризующий отклонение плоскости падения от вектора обратной решетки.

Анализ формулы (2) позволяет сделать ряд выводов. Во-первых, не только изменения  $\delta\theta_{\parallel}$ , но и  $\Phi_0$  дают вклад в изменения  $\alpha$ , т. е. угол  $\Phi_0$  становится дифракционным углом. В стандартном случае поверхностного дифракции ( $\pi/2 - \theta_B \sim 1$  рад) параметр  $\alpha$  практически зависит лишь от одного угла  $\theta \equiv \pi/2 - \delta\theta$ , а  $\Phi_0$  можно выбирать произвольно. Во-вторых, вследствие квадратичной зависимости  $\alpha$  от углов в формуле (2) ширина брэгговских максимумов при сканировании как по  $\Phi_0$ , так и по  $\delta\theta_{\parallel}$  составит десятки угловых минут. На уширение максимумов ранее указано в работе [6]. В-третьих, при сканировании по  $\delta\theta_{\parallel}$  падающий луч дважды пересекает точное положение Брэгга ( $\alpha=0$ ) и при условии разделения максимумов ( $\varepsilon > |\chi_h|$ ,  $\chi_h$  — поляризуемость кристалла) будут наблюдаться два брэгговских пика с координатами  $\delta\theta_{\parallel} = \pm [2\varepsilon - (\Phi_0 + \varphi)^2]^{1/2}$ . Поскольку расстояние между пиками пропорционально  $\varepsilon(d)$ , то, измеряя их угловое рассогласование, можно определять межплоскостное расстояние в кристалле, т. е. реализовать на основе ПОР метод Бонда для тонких поверхностных слоев кристаллов (толщина слоев определяется глубиной проникновения излучения в кристалл в данной геометрии дифракции и составляет  $\sim 1 \div 10$  нм).

Нестандартная угловая зависимость (2) параметра  $\alpha$  в ПОР приводит к важным следствиям относительно угла выхода обратнодифрагирован-

ной волны из кристалла. Для определения величины угла выхода  $\Phi_h$  воспользуемся связью между  $\Phi_h$ ,  $\Phi_0$  и  $\alpha$ , установленной в работе [12] применительно к общему случаю дифракции в скользящей геометрии:

$$\Phi_h^2 = (\Phi_0 + \Psi)^2 - \alpha. \quad (3)$$

Здесь  $\Psi$  — эффективный угол разориентации отражающих плоскостей; для ПОР  $\Psi = 2\varphi(1-\epsilon) \approx 2\varphi$ . Подставляя в формулу (3) выражение (2), получаем

$$\Phi_h^2 = \Phi_I^2 - \Phi_0^2 - 2\delta\theta_{\parallel}^2, \quad (4)$$

где  $\Phi_I^2 = 2(\varphi^2 + 2\epsilon)$  — критический угол полного внутреннего отражения обратнодифрагированной волны.

Как следует из формулы (4), угол выхода обратнодифрагированной волны не может превысить  $\Phi_I$ ; при увеличении любого из дифракционных углов  $\Phi_0$  или  $|\delta\theta_{\parallel}|$  угол  $\Phi_h$  убывает и становится мнимым. При этом интенсивность дифрагированного пучка резко обрывается, что соответствует эффекту полного внутреннего отражения. При падении на кристалл расходящегося монохроматического рентгеновского пучка обратнодифрагированные лучи образуют полуконус, ограниченный плоскостью  $\Phi_h = 0$  и поверхностью  $\Phi_h^2 + 2\delta\theta_{\parallel}^2 = \Phi_I^2$ . Таким образом, ПОР обладает свойством угловой коллимации монохроматического рентгеновского (например, мессбауэровского) излучения в двух плоскостях.

Подстановка формул (2)–(4) в выражения для коэффициентов отражения и прохождения рентгеновских волн, найденные в работах [7, 9, 12–15], позволяет вычислить дифракционные кривые ПОР для множества типов кристаллов — идеальных, с разориентацией поверхности, с поверхностной аморфной пленкой, а также для кристаллических пленок. Отметим, что благодаря условию  $|\cos(2\theta_B)| \approx 1$  ПОР скалярно, т. е. формулы для  $\sigma$ - и  $\pi$ -поляризации практически совпадают.

На рис. 2 представлены расчетные интегральные кривые интенсивности ПОР в зависимости от  $\delta\theta_{\parallel}$  при различных значениях  $\epsilon$ . При вычислениях использованы коэффициенты отражения и прохождения из работы [15], проинтегрированные по углу падения из тех соображений, что интегральные кривые наиболее просто получить в эксперименте. На рис. 2 хорошо видно, что изменения  $\epsilon(d)$  на уровне  $\sim 10^{-5}$  в явном виде проявляются в минутном угловом диапазоне на форме дифракционных кривых как проходящего, так и обратнорассеянного пучка. Таким образом, расчеты, приведенные на рис. 2, подтверждают сформулированный выше вывод о возможности реализации на основе ПОР метода Бонда для абсолютного измерения параметра решетки кристаллов. Тот факт, что изменения кривых ПОР можно регистрировать не только по обратнодифрагированному, но и по проходящему пучку, существенно упрощает экспериментальную реализацию этого метода по сравнению с обратным рассеянием в геометрии Брэгга, так как основная трудность экспериментов связана с отделением обратнодифрагированного пучка.

Другие возможности упрощения экспериментов связаны с многоволновым характером большинства случаев обратного рассеяния, впервые отмеченным в работе [16].

**Характеристика эффектов многоволнового ПОР.** Дополнительные дифракционные отражения при обратном рассеянии возбуждаются благодаря тому что вектор обратной решетки  $\tau_1$ , соответствующий обратному рассеянию, является диаметром сферы Эвальда. По этой причине любые два вектора  $\tau_2$  и  $\tau_3$ , удовлетворяющие условиям

$$\tau_3 \perp \tau_2 \text{ и } \tau_3 + \tau_2 = \tau_1, \quad (5)$$

автоматически оказываются в брэгговском положении. Если количество пар векторов, удовлетворяющих условиям (5), равно  $N$ , то имеет место многоволновая дифракция степени  $2N+2$ . Например, обратное рассеяние

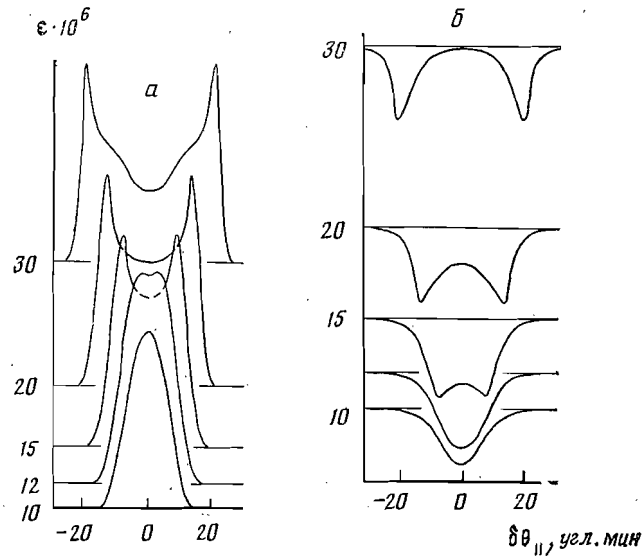


Рис. 2. Изменения интегральных кривых ПОР в зависимости от параметра  $\varepsilon = 1 - \lambda/2d$ : а — обратнодифрагированный пучок, б — проходящий. Расчеты выполнены для кристалла Ge, (620)-отражения,  $\text{CoK}_{\alpha 1}$ -излучения

на плоскостях (620) в Ge, рассмотренное в двухволновом приближении в работах [3–5], является четырехволновым с возбуждением вторичных отражений (440) и (220) [16].

Проанализируем четырехволновое ПОР в практически важном случае, когда вторичные дифракционные плоскости, отвечающие  $\tau_2$  и  $\tau_3$ , перпендикулярны поверхности кристалла, т. е. удовлетворяют условиям дифракции в скользящей геометрии. Этот случай, например, реализуется при измерении ПОР от плоскостей (620) в Ge с ориентацией поверхности (001). Метод решения уравнений дифракции при скользящей геометрии рассеяния рассмотрен в работах [7, 9, 12–15], поэтому принципиальных трудностей данная многоволновая задача не представляет. Однако вычисления являются чрезвычайно громоздкими: необходимо решить систему из 20 линейных уравнений для идеального кристалла и систему из 28 уравнений при учете аморфного слоя на поверхности кристалла, необходимым для сравнения теории с экспериментом (см. [13, 15]).

Покажем, что основные характеристики многоволновых эффектов могут быть исследованы без решения дифракционных уравнений. С этой целью найдем угловую зависимость  $\alpha_2(\delta\theta_{||}, \Phi_0)$  и  $\alpha_3(\delta\theta_{||}, \Phi_0)$  — параметров отклонения падающей волны от точного условия Брэгга для отражений, соответствующих  $\tau_2$  и  $\tau_3$ . Раскладывая волновой вектор падающей волны  $\mathbf{k}_0$  по векторам  $\mathbf{n}$  (вектор единичной нормали к поверхности кристалла),  $\tau_1$  и  $[\mathbf{n} \times \tau_1]$ , а затем подставляя разложение в определения  $\alpha_2$  и  $\alpha_3$  вида (1), получаем:

$$\begin{aligned} \alpha_2 &= -2\delta\theta_{||} \sin(2\theta_{B2}) + 4\varphi_2(\Phi_0 + \varphi_1) \sin(\theta_{B2}) - \\ &\quad - 2(2\varepsilon + \varphi_1^2 - \Phi_0^2) \sin^2(\theta_{B2}), \\ \alpha_3 &= 2\delta\theta_{||} \sin(2\theta_{B3}) + 4\varphi_3(\Phi_0 + \varphi_1) \sin(\theta_{B3}) - \\ &\quad - 2(2\varepsilon + \varphi_1^2 - \Phi_0^2) \sin^2(\theta_{B3}). \end{aligned} \quad (6)$$

Здесь  $\varphi_2$  и  $\varphi_3$  — углы разориентации векторов  $\tau_2$  и  $\tau_3$  относительно поверхности кристалла.

Из соотношений (6) следует, что благодаря линейной зависимости  $\alpha_2$  и  $\alpha_3$  от  $\delta\theta_{||}$  многоволновые эффекты на кривых ПОР сказываются только в

очень узкой угловой области  $|\delta\theta_{\parallel}| \leq 10^{-5} \div 10^{-6}$  рад. Действительно, координаты вторичных брэгговских пиков

$$\delta\theta_{\parallel}^{(2)} = -(\varepsilon + \varphi_1^2/2 - \Phi_0^2/2) \operatorname{tg} \theta_{B2} + \varphi_2 (\Phi_0 + \varphi_1) / \cos \theta_{B2}, \quad (7)$$

$$\delta\theta_{\parallel}^{(3)} = (\varepsilon + \varphi_1^2/2 - \Phi_0^2/2) \operatorname{tg} \theta_{B3} - \varphi_3 (\Phi_0 + \varphi_1) / \cos \theta_{B3}$$

отклоняются от  $\delta\theta_{\parallel}=0$  не более чем на  $10^{-5}-10^{-6}$  рад, так как при ПОР  $\varepsilon \leq 10^{-5}$  и  $\Phi_0, \varphi_i \leq 10^{-3}$  рад, а угловая ширина их ввиду линейной зависимости от  $\delta\theta_{\parallel}$  имеет порядок величины фурье-компоненты поляризуемости кристалла  $|\chi_h| \sim 10^{-5} \div 10^{-6}$ .

На рис. 2 многоволновые провалы, обусловленные перераспределением интенсивности падающей волны во вторичные рефлексы, будут располагаться в центральной области шириной  $\delta\theta_{\parallel} \leq 0,1'$  ( $\delta\theta_{\parallel} \leq 10^{-5}$  рад). За пределами центральной части условие Брэгга для вторичных отражений не выполняется и применимо двухволновое приближение. Узость угловой области, по-видимому, является основной причиной того, что многоволновые эффекты обратного рассеяния не зафиксированы в экспериментах [4, 5].

Совпадение угловых положений ПОР и вторичных рефлексов позволяет облегчить угловую настройку кристалла в положение ПОР, проводя ее по вторичным отражениям без регистрации обратнорассеянной волны.

Как следует из соотношений (7), угловое расстояние между двумя вторичными рефлексами пропорционально  $\varepsilon$ . Например, если  $\varphi_1, \varphi_2, \varphi_3=0$ , то угол рассогласования вторичных отражений равен  $\delta\theta_{\parallel}^{23} = (2\varepsilon - \Phi_0^2) / \sin(2\theta_{B2})$ . Следовательно, по углу  $\delta\theta_{\parallel}^{23}$  можно измерять  $\varepsilon$  и соответственно параметр решетки кристалла аналогично методу, предложенному в работе [17]. В частности, по совмещению вторичных рефлексов с точностью до  $|\delta\theta_{\parallel}^{23}| \leq 10^{-5}$  рад можно контролировать настройку схемы ПОР по  $\varepsilon$ . В то же время отметим, что метод Бонда, основанный на ПОР, существенно точнее метода измерения параметра решетки с помощью многоволновой дифракции, так как угловое рассогласование пиков ПОР пропорционально не  $\varepsilon$ , а  $\varepsilon^{1/2}$ , что на 2-3 порядка больше.

Авторы выражают благодарность С. А. Максименко за обсуждение поляризационных эффектов, Ю. П. Стецко за ценные замечания относительно многоволновой дифракции и Д. В. Новикову за предложения по экспериментальной реализации схемы.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Kohra K., Matsushita T. // Z. Naturforsch. 1972. V. 27A. № 3. P. 484.
2. Brümmer O., Höche H. R., Nieber J. // Phys. Stat. Sol. (a). 1979. V. 53. № 2. P. 565.
3. Caticha A., Caticha-Ellis S. // Phys. Rev. 1982. V. 25B. № 2. P. 971.
4. Кшевевцкий С. А., Стецко Ю. П. // Деп. Укр. НИИТИ. № 1408. УК-Д83; Стецко Ю. П., Кшевевцкий С. А., Михайлюк И. П. // Письма в ЖТФ. 1988. Т. 14. № 1. С. 29.
5. Кушнир В. И., Суворов Э. В. // Письма в ЖЭТФ. 1986. Т. 44. № 4. С. 205.
6. Maksimenko S. A. // Phys. Stat. Sol. (a). 1984. V. 85. № 1. P. K23.
7. Барышевский В. Г. // Письма в ЖТФ. 1976. Т. 2. № 3. С. 112.
8. Marra W. C., Eisenberger P., Cho A. Y. // J. Appl. Phys. 1979. V. 50. № 11. P. 6927.
9. Afanas'ev A. M., Melkonyan M. K. // Acta Crystallogr. 1983. V. 39A. № 2. P. 207.
10. Андреева М. А., Борисова С. Ф., Степанов С. А. // Поверхность. 1985. № 4. С. 5.
11. Bezirganyan A. P., Bezirganyan P. A. // Phys. Stat. Sol. (a). 1988. V. 105. P. 345.
12. Александров П. А., Афанасьев А. М., Степанов С. А. // Кристаллография. 1984. Т. 29. № 2. С. 197.
13. Aleksandrov P. A., Afanas'ev A. M., Melkonyan M. K., Stepanov S. A. // Phys. Stat. Sol. (a). 1984. V. 81. № 1. P. 47.
14. Александров П. А., Афанасьев А. М., Степанов С. А. // Поверхность. 1984. № 8. С. 9.

15. *Aleksandrov P. A., Afanas'ev A. M., Golovin A. L., Imamov R. M., Novikov D. V., Stepanov S. A.* // J. Appl. Crystallogr. 1985. V. 18. № 1. P. 27.
16. *Collela R., Luccio A.* // Optics Commun. 1984. V. 50. № 1. P. 41.
17. *Golovin A. L., Imamov R. M., Kondrashkina E. A.* // Phys. Stat. Sol. (a). 1985. V. 89. P. K5.

Научно-исследовательский институт  
ядерных проблем при Белорусском  
государственном университете,  
Минск

Поступила в редакцию  
21.VI.1988  
Принята в печать  
28.IX.1988

*Stepanov S. A., Kondrashkina E. A.*

#### DYNAMICAL DIFFRACTION EFFECTS INHERENT TO THE X-RAY SURFACE BACKSCATTERING

The dynamical diffraction theory is developed for two- and four-wave X-ray surface backscattering (SBS). The analysis of the obtained equations and the computer simulations of the diffraction curves are presented. Possible applications of SBS for the angular collimation of monochromatic X-ray radiation in two directions and for the absolute measurements of lattice spacing in thin surface layers of crystals are proposed. It is noted that due to the possibilities to carry out measurements of not only back scattered, but also transmitted intensity, Bond's method based on SBS is less complicated in realization compared with the one based on BS in usual Bragg geometry. It is shown that multiple-wave nature of SBS is displayed in narrow angular interval and therefore has not yet been registered in experiment.