

ЛИНИИ КОССЕЛЯ И РЕНТГЕНОВСКИЕ ЛОКАЛИЗОВАННЫЕ КОНИЧЕСКИЕ МОДЫ

*В. А. Беляков**

*Институт теоретической физики им. Л. Д. Ландау Российской академии наук
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия*

Поступила в редакцию 29 октября 2020 г.,
после переработки 19 ноября 2020 г.
Принята к публикации 24 ноября 2020 г.

Предлагается альтернативный способ описания рентгеновских линий Косселя, основанный на теории локализованных конических рентгеновских мод, существующих в совершенных кристаллах. Теория линий Косселя изложена в рамках приближения двуволновой динамической теории дифракции. Теоретические результаты сравниваются с известными экспериментальными данными и демонстрируют хорошее общее согласие с экспериментом. Обсуждается влияние на форму линий Косселя существенных параметров кристалла (совершенства, размера, эффекта Бормана и т. д.). Для доказательства прямой связи линий Косселя с локализованными коническими рентгеновскими модами предлагается использовать рентгеновскую технику задержанного временного детектирования.

DOI: 10.31857/S0044451021030019

1. ВВЕДЕНИЕ

Существующие в дифракции рентгеновского излучения на совершенных монокристаллах линии (рис. 1) были обнаружены Косселем [1] и названы его именем. Подобные линии, наблюдаемые в дифракции электронов на совершенных монокристаллах, также наблюдались авторами работы [2] и были названы линиями Кикучи. Сравнительно недавно подобные линии были обнаружены в дифракции нейтронов [3]. Природа линий Косселя (Кикучи) была понята весьма быстро. Их возникновение обусловлено некогерентным процессом в акте рассеяния (обычно инициированным дифракцией рентгеновского излучения). Этим процессом оказывается испускание излучения отдельным атомом, находящимся в узле кристаллической решетки [4, 5]. Оно приводит к существенному угловому перераспределению выходящего из кристалла рентгеновского излучения, по сравнению со случаем однородной изотропной среды, для направлений излучения, близких к направлениям, для которых выполняется условие Брэгга. Как правило, ответствен-

ным за линии Косселя (KL) является рентгеновское излучение флюоресценции, выступающее в качестве некогерентного канала рассеяния в ходе дифракции рентгеновского излучения. Разумеется, в общем случае нет необходимости в дифракции рентгеновского излучения и KL возникают в результате взаимодействия с монокристаллом различных видов излучения, например, быстрых протонов [6, 7].

Теоретическое описание KL представляется достаточно сложной проблемой, так как экспериментально наблюдаемое излучение в каждой точке KL представляет собой некогерентную сумму излучения от всех участвующих в процессе атомов монокристалла. Решение теоретической проблемы было предложено Лауэ, показавшим, что для описания KL может быть использована теорема взаимности [8]. Тем не менее описание KL в рамках теоремы взаимности сохраняет необходимость выполнения суммирования излучения от всех участвующих в процессе атомов монокристалла.

В поисках альтернативных путей теоретического описания KL полезно обратить внимание на следующие относящиеся к ним наблюдения. Во-первых, вид KL очень слабо зависит от расположения излучающих атомов в образце [4]. Во-вторых, картина KL (в основном интенсивность) сильно зависит от толщины образца [9]. Оба эти наблюдения указывают на сильное влияние параметров образца на фор-

* E-mail: bel@landau.ac.ru

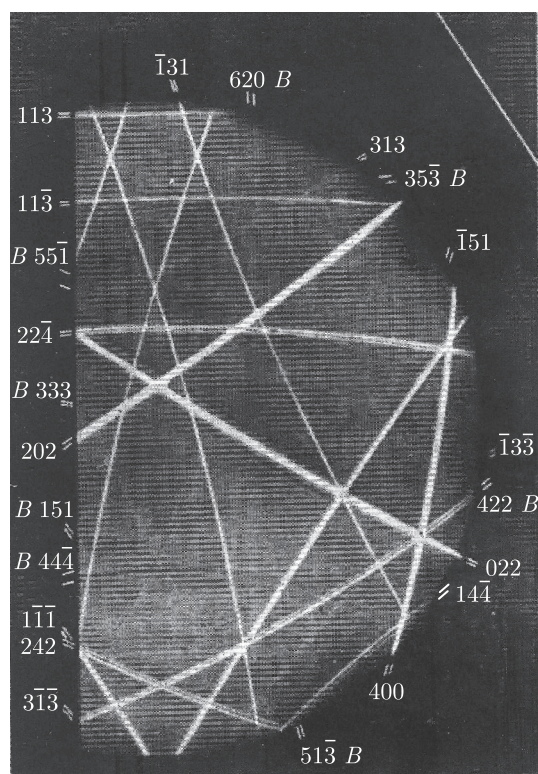


Рис. 1. Линии Косселя для монокристалла германия (рис. 14.4 из работы [4])

мирование КЛ. Здесь следует напомнить, что распространение испущенного в образце излучения отличается от его распространения в вакууме (или в однородной изотропной среде) и происходит согласно правилам распространения собственных волн в этом образце. Поэтому характеристики выходящего из образца излучения (в том числе и КЛ) зависят от свойств собственных волн в этом образце. А именно, эти характеристики могут зависеть от локализованных собственных мод образца, в частности, от локализованных рентгеновских мод [10]. В случае КЛ соответствующими собственными модами оказываются локализованные конические рентгеновские моды (XRCEM) [11, 12]. Отметим, что в оптике локализованные оптические моды хорошо известны, обнаружены и объяснены [12], поэтому, в силу общей природы оптических и рентгеновских локализованных мод, некоторые результаты, полученные для оптических мод, могут быть легко воспроизведены для XRCEM.

Основные наблюдаемые свойства КЛ можно описать, предполагая, что точечный рентгеновский источник в монокристалле возбуждает XRCEM.

Последующий распад XRCEM (утечка рентгеновских фотонов через поверхность образца) описывает свойства КЛ. В частности, наблюдаемая сильная зависимость интенсивности КЛ от толщины образца связана с тем, что помимо утечки фотонов существует еще один канал затухания XRCEM, а именно, их поглощение внутри образца, которое сильно зависит от его толщины.

В настоящей работе представлена теория XRCEM [10, 11] в рамках приближения двуволновой динамической теории дифракции для неколлинеарной геометрии, неоднократно использовавшейся в приложении к рентгеновским КЛ (см., например, [4, 5, 7, 13]). Приложение этой теории к КЛ обсуждается для различных интервалов значений параметров образцов: непоглощающие кристаллы, кристаллы с изотропным поглощением, образцы с сильным проявлением эффекта Бормана и многослойные искусственно выращенные структуры, широко используемые в качестве рентгеновских зеркал.

2. РЕНГЕНОВСКИЕ СОБСТВЕННЫЕ ВОЛНЫ

Как хорошо известно (см., например, [14, 15]), в условиях дифракции рентгеновские собственные волны в кристалле в приближении двуволновой динамической теории дифракции представимы в виде следующей суперпозиции двух плоских волн:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \exp(i\omega t) \times \\ \times [\mathbf{E}^+ \exp(i\mathbf{K}^+ \cdot \mathbf{r}) + \mathbf{E}^- \exp(i\mathbf{K}^- \cdot \mathbf{r})], \quad (1)$$

$$\mathbf{K}^+ - \mathbf{K}^- = \boldsymbol{\tau}, \quad \mathbf{K}_j^\pm = \boldsymbol{\tau}/2 \pm \mathbf{q}^\pm,$$

где $\mathbf{E}^+$ и $\mathbf{E}^-$ — амплитуды электрического поля в отдельных плоских волнах этой суперпозиции, $\mathbf{q}^\pm$ — обусловленные дифракцией добавки к волновым векторам, волновые векторы $\mathbf{K}^\pm$ связаны посредством условия Брэгга с вектором обратной решетки кристалла $\boldsymbol{\tau}$, соответствующим рассматриваемому дифракционному условию. Амплитуды $\mathbf{E}^+$ и $\mathbf{E}^-$ в суперпозиции (1) определяются системой линейных уравнений

$$(\varepsilon_0 - \mathbf{K}^{+2}/\kappa^2)\mathbf{E}^+ + \varepsilon_\tau \mathbf{E}^- = 0, \\ \varepsilon_{-\tau} \mathbf{E}^+ + (\varepsilon_0 - \mathbf{K}^{-2}/\kappa^2)\mathbf{E}^- = 0, \quad (2)$$

где выражения для амплитуд фурье-разложения тензора диэлектрической проницаемости кристалла ε_0 и ε_τ оказываются различными для различных периодических структур, $\kappa = \omega\varepsilon_0^{1/2}/c$ вне кристалла. В случае достаточно жесткого рентгеновского излучения и обычных кристаллов эти величины выражаются через рентгеновскую структурную амплитуду рассеяния (см., например, [14, 15]):

$$\begin{aligned}\varepsilon_0 &= (4\pi/Vk^2)F_0, \\ \varepsilon_\tau &= (4\pi/Vk^2)F_\tau,\end{aligned}\quad (3)$$

где F_τ — рентгеновская структурная амплитуда рассеяния на угол, определенный рефлексом, соответствующим τ , F_0 — та же амплитуда рассеяния на нулевой угол, а V — объем элементарной ячейки.

Решение системы (2) показывает, что собственными поляризациями являются π - и σ -поляризации, так что векторная система (2) разделяется на две скалярных системы для скалярных амплитуд E^+ и E^- , относящихся к π - и σ -поляризациям собственных волн, соответственно. Поэтому амплитуды и другие параметры, входящие в (1)–(3), будут записываться как $\mathbf{K}_p^\pm$ и $\mathbf{E}_p^\pm$, т. е. с добавленным поляризационным индексом « p », принимающим два значения π и σ , относящихся к π - и σ -поляризациям собственных волн, соответственно. В результате решения системы (2) для каждой собственной поляризации находятся две собственные волны с различными дифракционными добавками к волновым векторам $\mathbf{q}^\pm$, сильно зависящие от величины отклонения волновых векторов (или частоты) от точного условия Брэгга.

Отношение E^+ к E^- в двух найденных собственных волнах дается следующей формулой:

$$\xi^\pm = \left(\frac{E^-}{E^+}\right)_\pm = \frac{\varepsilon_\tau}{\alpha^\pm[\alpha^2 - (\varepsilon_\tau)^2]^{1/2}}, \quad (4)$$

где $\alpha = \tau(\tau + 2\mathbf{k})/k^2$ — параметр, определяющий отклонение от точного условия Брэгга.

Чтобы найти XRCEM, требуется решить граничную задачу (отдельную для собственной π - и σ -поляризации). Поскольку соответствующие решения отличаются только благодаря поляризационному фактору, ниже будет рассмотрен только случай σ -поляризации. Случай π -поляризации описывается теми же формулами при замене в них величин $F_{\sigma\tau}$ на $F_{\pi\tau}$.

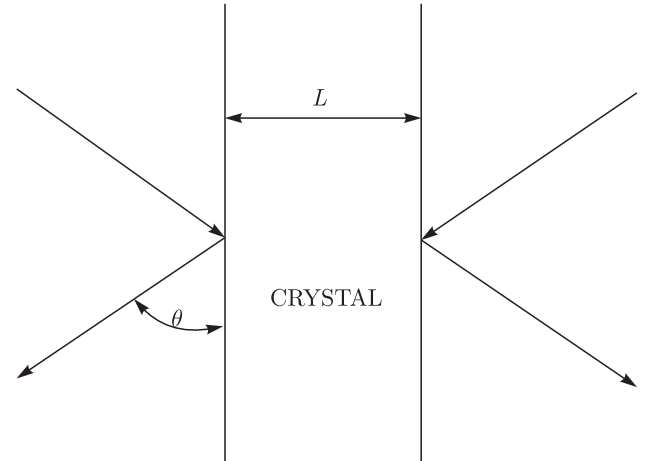


Рис. 2. Схема граничной задачи для рентгеновских локализованных конических мод

3. ГРАНИЧНАЯ ЗАДАЧА

Начнем рассмотрение граничной задачи в формулировке, предлагающей, что плоская волна дифрагирующей σ -поляризации наклонно падает на планарный кристаллический слой (см. рис. 2). Амплитуды двух собственных волн E^+ и E^- , возбужденных в кристаллическом слое падающей волной с волновым вектором $\mathbf{k}$ (предполагается, что амплитуда падающей волной равна единице, а направление распространения близко к направлению, удовлетворяющему условию Брэгга), определяются уравнениями

$$E_+^+ + E_-^+ = 1, \quad (5)$$

$$\exp[iK_+^{t-}L]\xi^+ E_+^+ + \exp[iK_-^{t-}L]\xi^- E_-^+ = 0,$$

где L — толщина слоя, а K_+^{t-} и K_-^{t-} — компоненты волновых векторов, параллельные вектору τ .

Амплитудные коэффициенты отражения R_a и прохождения T_a для дифрагирующей σ -поляризации принимают вид

$$\begin{aligned}R_a &= -i\varepsilon_\tau \frac{\sin qL}{(4q/\tau) \cos qL - i\alpha \sin qL}, \\ T_a &= \frac{4q}{\tau} \frac{\exp[i\tau L/2]}{(4q/\tau) \cos qL - i\alpha \sin qL},\end{aligned}\quad (6)$$

где $q = (\tau/4)[(b\alpha)^2 + b(\varepsilon_\tau)^2]^{1/2}$, а геометрический параметр $b = \cos(\mathbf{K}^-, \mathbf{s})/\cos(\mathbf{K}^+, \mathbf{s})$ зависит от взаимной ориентации τ , нормали к образцу $\mathbf{s}$ и волнового вектора $\mathbf{K}^+$ (или $\mathbf{K}^-$) следующим образом:

$$b = -\frac{\operatorname{tg}^2(\tau, \mathbf{s}) + \operatorname{tg}^2(\mathbf{K}^-, \mathbf{s}) - \operatorname{cosec}^2(\tau, \mathbf{s}) - \operatorname{cosec}^2(\mathbf{K}^-, \mathbf{s}) - 2 \cos \varphi \operatorname{tg}(\tau, \mathbf{s}) \operatorname{tg}(\mathbf{K}^-, \mathbf{s})}{\operatorname{tg}^2(\tau, \mathbf{s}) + \operatorname{tg}^2(\mathbf{K}^-, \mathbf{s}) - \operatorname{cosec}^2(\tau, \mathbf{s}) - \operatorname{cosec}^2(\mathbf{K}^-, \mathbf{s}) - 2 \cos(\varphi - \pi) \operatorname{tg}(\tau, \mathbf{s}) \operatorname{tg}(\mathbf{K}^-, \mathbf{s})}. \quad (7)$$

Отметим, что уравнение (6) описывает отражение и прохождение в случае как непоглощающих, так и поглощающих кристаллов. В частности, изотропное поглощение может быть учтено путем мнимой добавки к компоненте амплитуды фурье-разложения тензора диэлектрической проницаемости кристалла ε_0 , а специфика поглощения, связанная с дифракцией, учитывается путем мнимой добавки к ε_τ .

Коэффициенты отражения $R = |R_a|^2$ и прохождения $T = |T_a|^2$ испытывают осцилляции как функции частот вне области селективного отражения (BSR). Для непоглощающих слоев соотношение $R + T = 1$ выполняется для всех частот. При $q = n\pi/L$, где n — целое число, $R = 0$, а $T = 1$.

На частотной границе BSR коэффициент отражения $R = |R_a|^2$ равен

$$R = \frac{1}{1 + (2/\varepsilon_\tau L\tau)^2}. \quad (8)$$

Точно на частотной середине BSR коэффициент отражения $R = |R_a|^2$ равен

$$R = \frac{(\operatorname{sh} \varepsilon_\tau L\tau)^2}{(\operatorname{ch} \varepsilon_\tau L\tau)^2}. \quad (9)$$

Для простоты изложения граничная задача для рентгеновских локализованных конических мод была сформулирована выше для симметричного случая Брэгга ($b = -1$).

4. РЕНТГЕНОВСКИЕ КРАЕВЫЕ МОДЫ

Существует полная аналогия между оптикой рентгеновского излучения и оптикой видимого света, поэтому подобно хорошо известным в фотонных кристаллах оптическим локализованным краевым модам на дискретных частотах вне BSR должны также существовать XRCEM на дискретных частотах вне BSR. Так же, как в оптическом случае, изученном в работе [12], дисперсионное уравнение для XRCEM может быть получено как условие разрешимости однородного уравнения, получаемого из уравнения (5). Отметим, что, как следует из решения однородного уравнения, краевая мода является линейной суперпозицией двух собственных волн с отношением амплитуд

$$\frac{E^+}{E_+^+} = -1.$$

Условие разрешимости требует обращения в нуль детерминанта уравнения (5) и приводит к следующему дисперсионному уравнению для XRCEM:

$$\operatorname{tg}(qL) = -4i(q/\tau)/\alpha. \quad (10)$$

В общем случае решение уравнения (10), определяющего частоты XRCEM (ω_{XRCEM}), могут быть найдены только численно. Частоты XRCEM ω_{XRCEM} оказываются комплексными величинами, которые могут быть представлены в виде

$$\omega_{XRCEM} = \omega_{EM}^0(1 + \Delta i),$$

где Δ оказывается малым параметром в реальных ситуациях. Таким образом, XRCEM оказываются слабо затухающими во времени, т.е. они являются квазистационарными модами. К счастью, для некоторого предельного случая может быть найдено аналитическое решение для достаточно малого значения параметра Δ , обеспечивающего выполнение условия

$$(qL) \operatorname{Im}(q/\tau) \ll 1.$$

В этом случае значения действительной части ω_{XRCEM} , т.е. ω_{XRCEM}^0 , оказываются совпадающими с частотами нулевого значения коэффициента отражения R для непоглощающего слоя и комплексная частота XRCEM определяется соотношением

$$\begin{aligned} Lq &= n\pi, \\ \Delta &= -\frac{1}{2} \frac{\varepsilon_\tau (n\pi)^2}{[(\varepsilon_\tau L\tau/4)]^2}, \end{aligned} \quad (11)$$

где n — целое число, нумерующее XRCEM.

Время жизни XRCEM, зависящее от мнимой части частоты (Δ), в этом предельном случае оказывается пропорциональным третьей степени толщины образца L и дается выражением

$$\tau_{XRCEM} \approx (L\varepsilon_0^{1/2}/c)[L(\varepsilon_\tau)\tau/\pi n]^2. \quad (12)$$

Свойства XRCEM подобны свойствам оптических краевых мод, а их детальное описание можно найти в работе [12], поэтому ниже мы обсудим только основные свойства XRCEM, без их подробного вывода. XRCEM нумеруются целым числом n ($n = 1$ соответствует XRCEM с частотой ближайшей к частотной границе BSR), электромагнитное поле XRCEM локализовано внутри слоя и промодулировано в пространстве на толщине слоя с числом периодов модуляции, совпадающим с номером XRCEM n . В непоглощающем слое конечное время жизни XRCEM обусловлено утечкой излучения через поверхности слоя, поэтому время жизни возрастает с увеличением толщины слоя L в рассматриваемом предельном случае как третья степень L , что приводит к бесконечному времени жизни XRCEM для бесконечно-го L .

5. СПЕКТРАЛЬНОЕ (УГЛОВОЕ) РАСПРЕДЕЛЕНИЕ В ЛИНИИ КОССЕЯ

Рассматривая характеристики выходящего из образца рентгеновского излучения (в нашем случае линий Коссея), которые зависят от свойств собственных волн в образце, мы видим, что в случае линий Коссея соответствующими собственными модами оказываются XRCEM. В рентгеновской оптической задаче, соответствующей граничной задаче, схематически показанной на рис. 2 (как раз к которой относится рассматриваемая ниже задача испускания фотона точечным рентгеновским источником, помещенным в совершенный кристалл), должно быть исследовано уравнение вида

$$\text{rot rot } \mathbf{E} - c^{-2} \varepsilon(\mathbf{r}) \partial^2 \mathbf{E} / \partial t^2 = \mathbf{F}(\mathbf{r}, t), \quad (13)$$

где $\mathbf{E}$ — электрический вектор, $\varepsilon(\mathbf{r})$ — тензор диэлектрической проницаемости слоя на рис. 2, $\mathbf{F}(\mathbf{r}, t)$ — векторная функция, явный вид которой определяется конкретным изучаемым физическим процессом. Это может быть задача нелинейного преобразования частоты или задача об излучении движущейся заряженной частицы и т. д. [12]. Общим результатом названных конкретных случаев является нахождение амплитуд собственных волн, возбуждаемых в слое благодаря неоднородности $\mathbf{F}(\mathbf{r})$ в (13). В рассматриваемом здесь случае линий Коссея [1, 4, 5] (излучение точечного рентгеновского источника, помещенного в совершенный кристалл) в качестве неоднородности в (13) должна быть использована функция $\mathbf{F}(\mathbf{r})$, соответствующая точечному рентгеновскому источнику и отличающаяся от нуля только внутри слоя. Известно, что влияние кристалла проявляется в подавлении испускания фотонов в направлении, соответствующем BSR (для фиксированной частоты рентгеновского излучения), и в существенном перераспределении углового распределения рентгеновского излучения вблизи границы BSR (как раз это перераспределение и создает линию Коссея). Для направлений испускания, далеких от границы BSR, периодичность кристалла практически не влияет на угловое распределение рентгеновского излучения. Таким образом, проявляется тонкая угловая структура распределения рентгеновского излучения вблизи границы BSR. Наряду с подавлением испускания в направлениях, соответствующих BSR, возникают максимумы испускания вне BSR для направлений, определяемых XRCEM с различными номерами n , также вне BSR, однако близких к направлениям, соответствующим границам BSR.

Если для начала пренебречь поглощением рентгеновского излучения в образце, амплитуды XRCEM для различных n могут быть найдены из решения системы (5). Как было показано в работах [12, 16], найденные из решения системы (5) на частоте XRCEM величины E_+^+ и E_-^+ при выполнении соотношений

$$Lq = n\pi, \quad q = (\tau/2)[(\alpha_p)^2 - (F_p)^2]^{1/2}, \quad (14)$$

практически совпадают с соответствующими амплитудами XRCEM, возбужденными в образце. Таким образом, для фиксированного направления испускания существует тонкая частотная структура линии эмиссии, определяемая различием частот XRCEM, соответствующих различным n . Поскольку существуют направления испускания, эквивалентные рассматриваемому, они (на обсуждаемых частотах) формируют так называемый конус Коссея с осью, совпадающей с направлением $\boldsymbol{\tau}$. Геометрия конуса Коссея приведена на рис. 3. Углы между векторами $\mathbf{K}^-$ и $\mathbf{s}$ (нормаль к поверхности образца), $(\mathbf{K}^-, \mathbf{s})$, и между векторами $\boldsymbol{\tau}$ и $\mathbf{s}$, $(\boldsymbol{\tau}, \mathbf{s})$, а также угол φ в выражении (7) совместно с соответствующими векторами представлены на рис. 3). В случае, если векторы $\boldsymbol{\tau}$ и $\mathbf{s}$ параллельны (симметричный случай Брэгга), параметр $b = -1$ (см. рис. 3а) и не зависит от азимутального угла φ .

В эксперименте обычно наблюдается сечение конуса Коссея поверхностью образца (линии Коссея, см. рис. 1). Поэтому наблюдаемые линии Коссея — это либо окружности (для векторов $\boldsymbol{\tau}$, перпендикулярных поверхности образца), либо эллипсы (в эксперименте типична только частичная регистрация названных фигур, как на рис. 1).

В двуволновом приближении динамической теории дифракции явные выражения для частот XRCEM с различными номерами n , следующие из (14) в первом порядке дифракции, и соответственно, положения частотных максимумов в спектре линии Коссея (KL) определяются выражением

$$\pm(\omega - \omega_B)/\omega_B = (1/2)[\varepsilon_\tau^2 + (2\pi n/\tau L)^2]^{1/2}, \quad (15)$$

$$n = 1, 2, 3, \dots,$$

где брэгговская частота равна

$$\omega_B = (c\tau/2\varepsilon_0^{1/2})/\sin\theta.$$

Таким образом, существует тонкая структура линии эмиссии, определяемая разностью частот XRCEM, с различными номерами n . На рис. 4 и 5 представлены

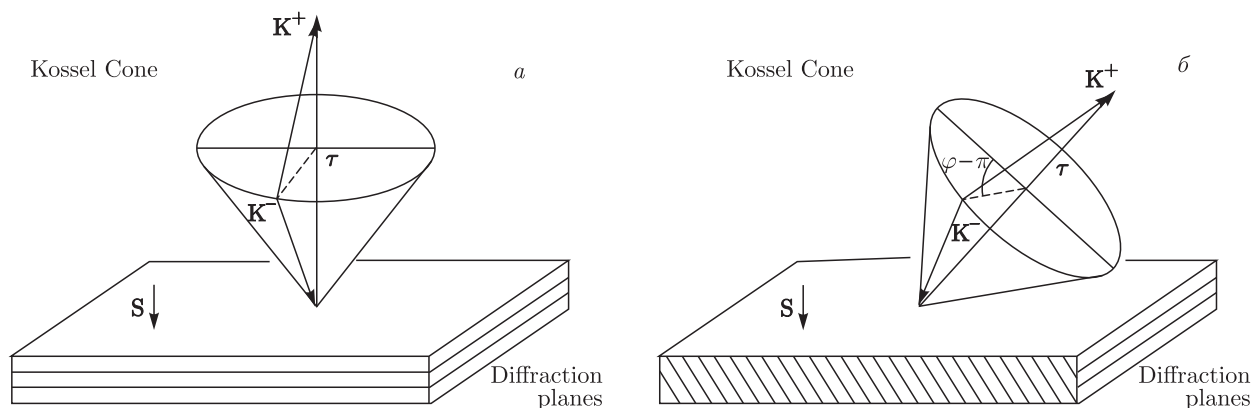


Рис. 3. Схема геометрии линий Косселя (к определению углов в (7)): *a* — τ перпендикулярен к поверхности образца, *б* — τ под углом к поверхности образца, отличным от $\pi/2$. Представлено сечение конуса Косселя плоскостью, перпендикулярной к τ , на расстоянии от вершины конуса, равном $\tau/2$, сплошная линия на этой плоскости — ее пересечение с плоскостью (τS), штриховая линия — ее пересечение с плоскостью (τK^-), φ — азимутальный угол вектора K^- относительно τ

результаты расчетов, выполненных путем решения системы (5), для квадрата амплитуд XRCEM для нескольких первых XRCEM ($n = \pm 1, \pm 2, \pm 3$). Можно видеть, что спектр линии Косселя симметричен относительно BSR, если в образце отсутствует поглощение. На рис. 4 и 5 видно, что положение частотных максимумов амплитуд XRCEM совпадает с положением частотных нулей коэффициента отражения R .

На рис. 4 и 5 также видна сильная зависимость спектрального положения и интенсивности линий Косселя от толщины образца.

6. ПОГЛОЩАЮЩИЕ КРИСТАЛЛЫ

Спектральное распределение KL, которое мы обсуждали выше, в пренебрежении поглощением в образце имеет ограниченное применение для описания реального эксперимента. Оно может соответствовать очень тонким образцам или монокристаллам, образованным легкими химическими элементами. Однако, как правило, поглощение определяет существенные черты эксперимента. Поэтому ниже к рассмотрению предыдущего раздела мы добавим учет поглощения рентгеновского излучения, начиная со случая изотропного поглощения рентгеновского излучения. Изотропное поглощение рентгеновского излучения можно учесть введением небольшой мнимой части в изотропную составляющую ε_0 рентгеновского тензора диэлектрической проницаемости, т. е., полагая $\varepsilon = \varepsilon_0(1 + i\gamma)$, где γ — небольшой положительный параметр. На рис. 6 и 7

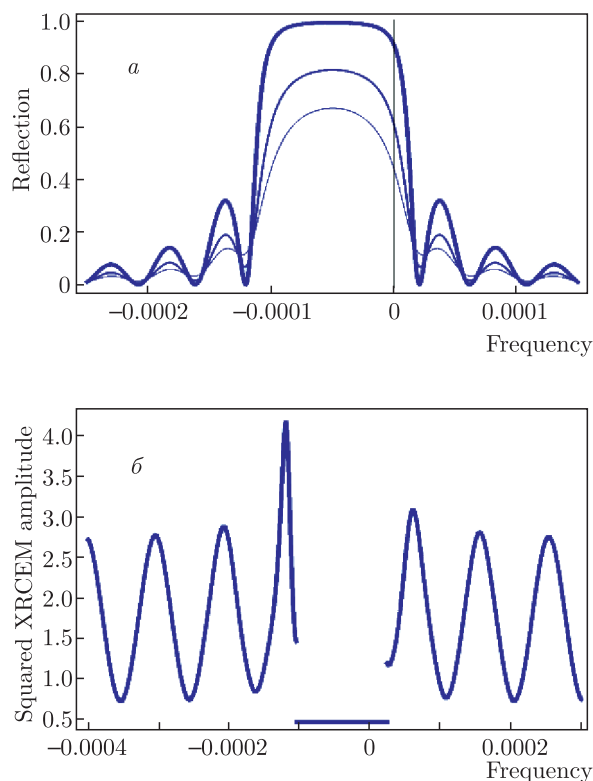


Рис. 4. Зависимости коэффициента отражения от безразмерной частоты $\omega_d = \varepsilon_\tau[2(\omega - \omega_B)/(\omega_B \varepsilon_\tau - 1)]$ для различных значений мнимой части диэлектрической восприимчивости $\gamma = 0, 0.00001$ и 0.00002 , где γ определяется соотношением $\varepsilon = \varepsilon_0(1 + i\gamma)$ (чем больше поглощение γ , тем тоньше линия) (*a*). Квадрат амплитуды XRCEM (здесь и на рисунках далее в произвольных единицах) при $\gamma = 0$ для трех первых XRCEM ($n = \pm 1, \pm 2, \pm 3$) (*б*). $\varepsilon_\tau = 0.0001$, толщина образца в числе периодов $N = 20000$

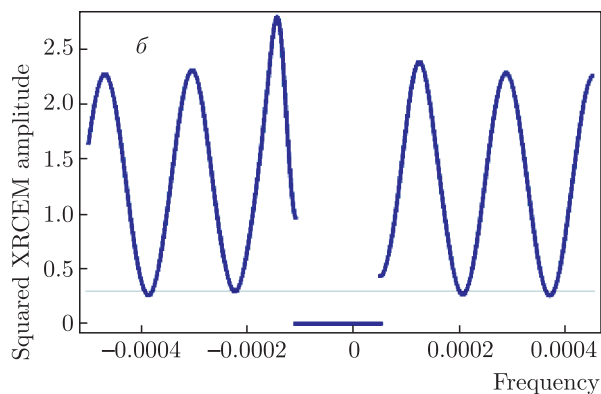
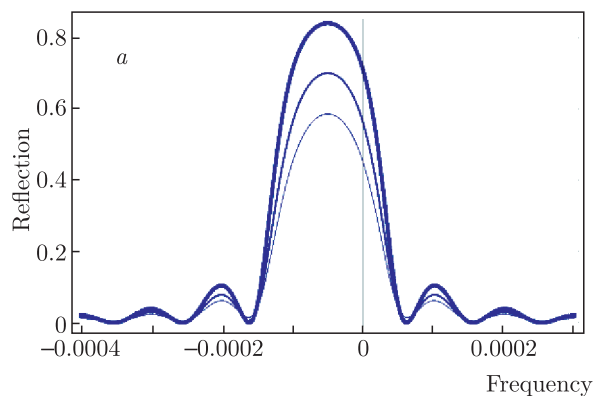


Рис. 5. То же, что на рис. 4, для $N = 12\,000$

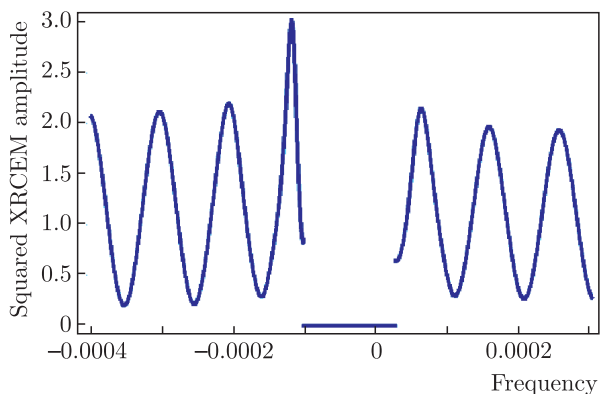


Рис. 6. Рассчитанные зависимости квадрата амплитуды XRCEM от частоты для изотропно поглощающего кристалла при $\gamma = 0.00002$ для трех первых XRCEM ($n = \pm 1, \pm 2, \pm 3$). $\varepsilon_r = 0.0001$, толщина в числе периодов $N = 20\,000$

представлены результаты расчетов тех же величин, что и на рис. 4 и 5, но для изотропно поглощающего образца.

Как видно из рис. 4–8, изотропное поглощение не изменяет спектральную форму спектрального распределения KL, сохраняя, в частности, симметрию спектра относительно BSR и уменьшая при этом амплитуды XRCEM для всех номеров n .

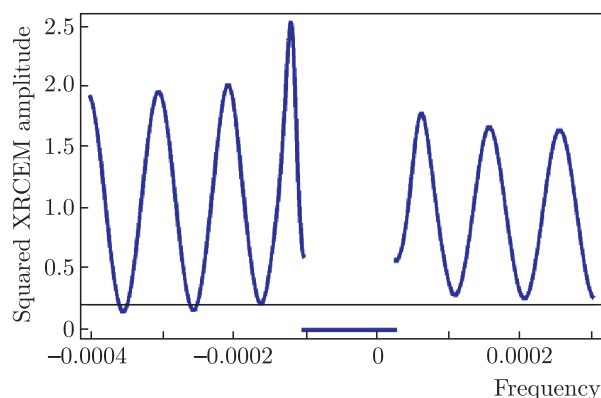


Рис. 7. То же, что на рис. 6, для увеличенного поглощения ($\gamma = 0.00004$)

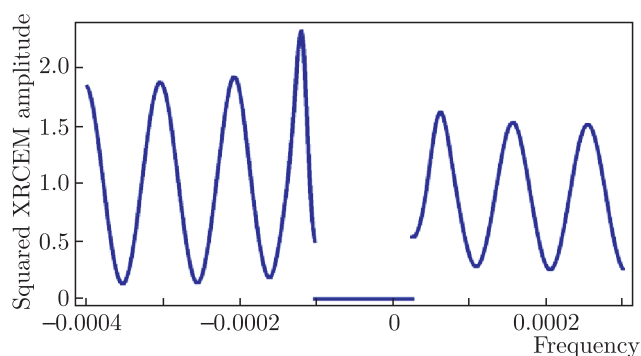


Рис. 8. То же, что на рис. 6, для дальнейшего увеличения поглощения ($\gamma = 0.00005$)

В случае изотропного поглощения интенсивность излучения из образца в KL на один акт испускания уменьшается по сравнению со случаем непоглощающего кристалла, причем это уменьшение растет с увеличением толщины образца. Физическая интерпретация этого явления выглядит следующим образом. С увеличением толщины образца L время жизни фотона, находящегося в состоянии XRCEM, растет (как третья степень L), следовательно, время его взаимодействия с кристаллом также растет, приводя к увеличению его поглощения в состоянии XRCEM.

В непоглощающих кристаллах утечка фотонов через поверхности образца является единственным процессом, определяющим интенсивность KL и затухание (время жизни) XRCEM. В поглощающих кристаллах существует дополнительный процесс, влияющий на затухание (время жизни) XRCEM. Это — поглощение фотонов внутри слоя, которое приводит к уменьшению утечки фотонов через поверхности и, следовательно, к уменьшению интен-

сивности КЛ. Количественно влияние поглощения на интенсивности КЛ можно описать, вводя время жизни XRCEM по отношению к утечке фотонов через поверхности τ_l и по отношению к поглощению фотонов в слое τ_a . Отношение доли фотонов, «вытекших» из слоя, к доле фотонов, поглощенных в слое, равно τ_a/τ_l . Время утечки τ_l определяется выражением (12). Как показано в работе [16], поглощение фотонов в слое, зависящее от γ , увеличивается на частоте XRCEM, что означает уменьшение времени жизни XRCEM τ_a по отношению к поглощению в слое при росте γ и, соответственно, к уменьшению доли фотонов, «вытекших» из слоя. Для слабого поглощения уменьшение доли фотонов, «вытекших» из слоя, на частоте XRCEM при условии $(\pi n)^2 > \gamma a^3$ по сравнению со случаем непоглощающих кристаллов может быть представлено аналитическим выражением:

$$R + T = 1 - 2\gamma a^3/(\pi n)^2, \quad (16)$$

где $a = \tau L \varepsilon_\tau / 4$. Поскольку, согласно (12), время жизни XRCEM по отношению к утечке фотонов через поверхности τ_l растет как куб толщины образца L , утечка фотонов через поверхности образца в общем случае для совершенного поглощающего слоя становится слабой для достаточно большой толщины L . Этот вывод объясняет очень старое наблюдение уменьшения интенсивности линий Косселя при увеличении толщины образца L (см., например, рис. 1.6 в работе [5]).

Изменение утечки фотонов в КЛ при вариациях толщины образца может быть оценено путем вычисления величины $T + R$ для изменяемых толщин образца L . Минимумы величины $R + T$, расположенные на частотах XRCEM, дают оценку уменьшения утечки фотонов в XRCEM при увеличении поглощения и толщины слоя L . На рис. 9 и 10 показано, как убывает утечка фотонов в КЛ с увеличением L и γ (растет глубина минимумов величины $R + T$ на частотах XREM).

Отметим, что значения минимумов величины $T + R$ на рис. 9 и 10 согласуются с их значениями, следующими из формулы (16).

Зависимости, рассчитанные для значений параметров образца, допускающих экспериментальное разрешение индивидуальных компонент КЛ (различных n), дают частотное (угловое) положение индивидуальных компонент и их относительные интенсивности. Следующее общее, но не очевидное утверждение «интенсивность КЛ на индивидуальный акт эмиссии уменьшается с увеличением толщины образца», относящееся к КЛ в образцах с

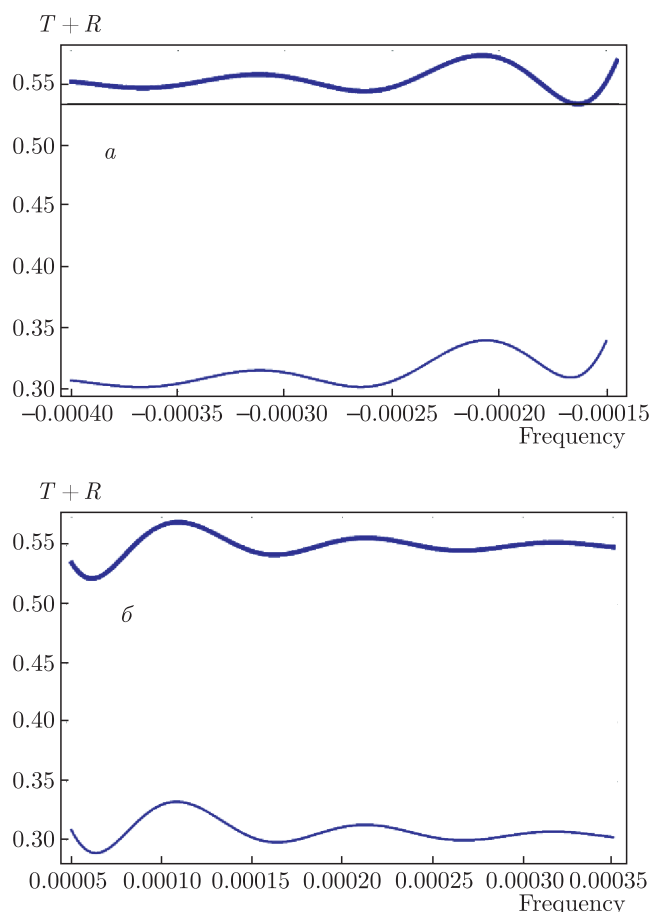


Рис. 9. Значения $T+R$, вычисленные для частотного интервала, содержащего три первые XRCEM ($n = \pm 1, \pm 2, \pm 3$) для высокочастотной (б) и низкочастотной (а) границ BSR при различных значениях параметра поглощения $\gamma = 0.00001$ (жирные линии) и $\gamma = 0.00002$. $\varepsilon_\tau = 0.0001$, толщина образца в числе периодов $N = 20000$

изотропным поглощением, следует из выполненных расчетов, а также из приведенных выше рассуждений.

Что касается достаточно толстых образцов, в которых из-за очень малых частотных (угловых) интервалов между индивидуальными компонентами они не разрешаются экспериментально, измеренные экспериментально спектры КЛ состоят только из двух непрерывных компонент.

На рис. 11 и 12 представлены спектры КЛ для толстых поглощающих образцов (на рис. 12а для более сильного, чем на рис. 11). Сравнение спектров, приведенных на рис. 12б, позволяет сделать вывод о том, насколько сильно однородное и изотропное поглощение влияет на спектр КЛ для толстых поглощающих образцов.

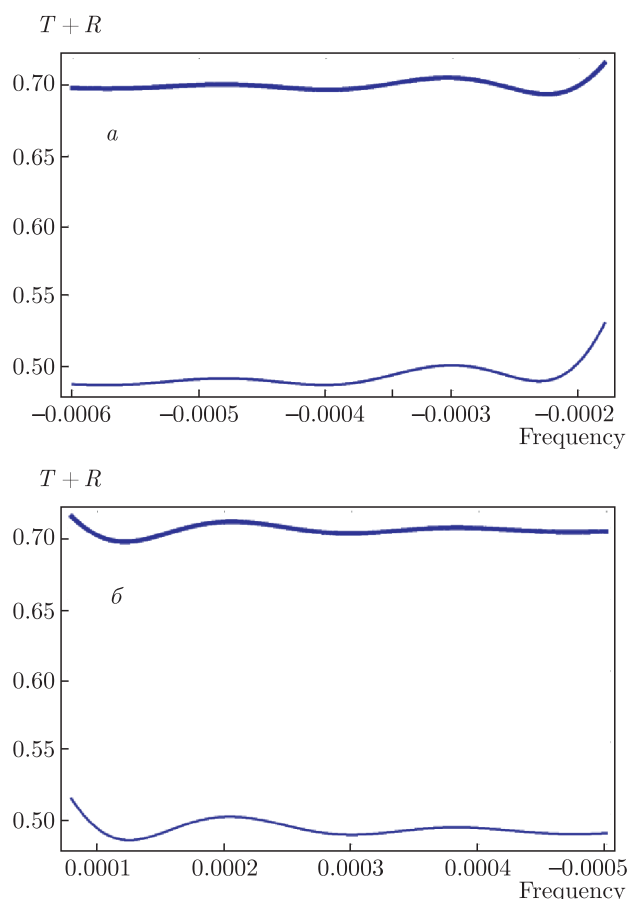


Рис. 10. Значения $T + R$, вычисленные для частотного интервала, содержащего три первые XRCEM ($n = \pm 1, \pm 2, \pm 3$), для высокочастотной (б) и низкочастотной (а) границ BSR при различных значениях параметра поглощения $\gamma = 0.00001$ (жирные линии) и $\gamma = 0.00002$. $\varepsilon_\tau = 0.0001$, толщина образца в числе периодов $N = 12000$

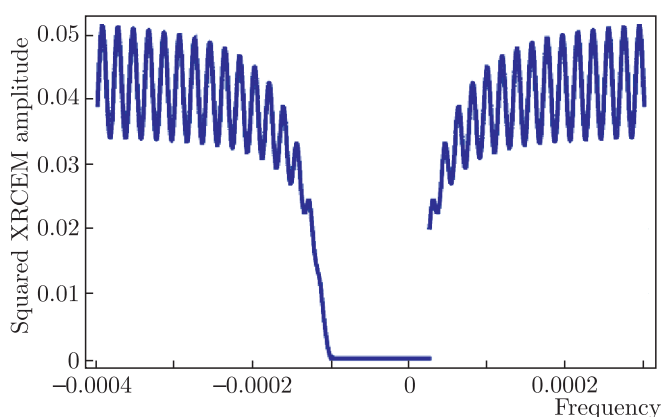


Рис. 11. Спектр линии Коссея, вычисленный для толстого поглощающего образца, $\varepsilon_\tau = 0.0001$, $\gamma = 0.00001$, $N = 100000$

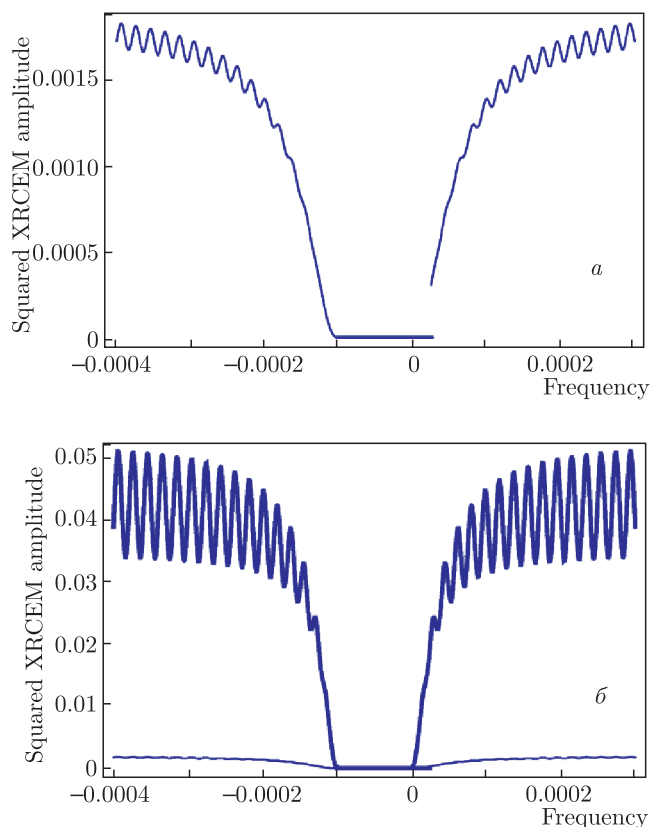


Рис. 12. Спектр линии Коссея, вычисленный для толстого поглощающего (более сильно, чем на рис. 11) образца (а). Иллюстрация степени зависимости спектра от величины поглощения для толстого образца (б). Кривые представлены в одном масштабе, $\gamma = 0.00001$ (жирная линия) и 0.00002 . $\varepsilon_\tau = 0.0001$, $\gamma = 0.00002$, $N = 100000$

7. ВЛИЯНИЕ ЭФФЕКТА БОРМАНА НА СПЕКТРЫ

Как известно, в совершенных поглощающих монокристаллах процесс дифракции может быть подвержен сильному влиянию эффекта Бормана [4,5,7]. В узком угловом интервале проявление эффекта Бормана может приводить к ослаблению поглощения рентгеновского пучка, тогда как для узкого углового интервала в близком направлении пучка эффект Бормана приводит к усилению поглощения рентгеновского пучка. Другими словами, эффект Бормана проявляет себя уменьшением или увеличением поглощения рентгеновского излучения в условиях дифракции в совершенных поглощающих монокристаллах.

На рис. 13 показано, как эффект Бормана влияет на спектры отражения. Как известно, влияние эффекта Бормана в рамках двуволновой динамической теории дифракции описывается добавлением

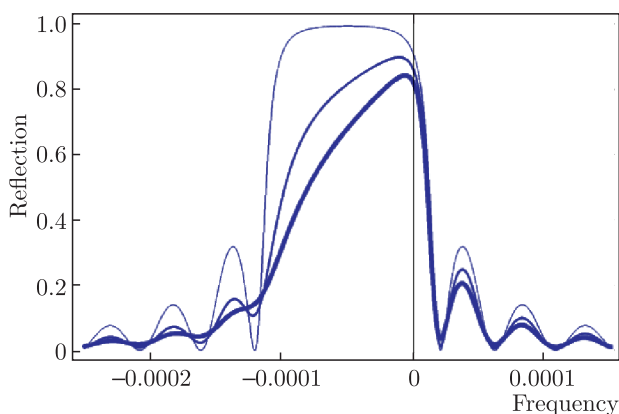


Рис. 13. Влияние эффекта Бормана на спектр отражения рентгеновского излучения для случаев разной силы его проявления при $\text{Re } \varepsilon_\tau = 0.0001$, $\gamma = 0$, $\text{Im } \varepsilon_\tau = 0, 0.00001, 0.00002$, $N = 20000$. Чем больше величина эффекта Бормана, тем толще линия

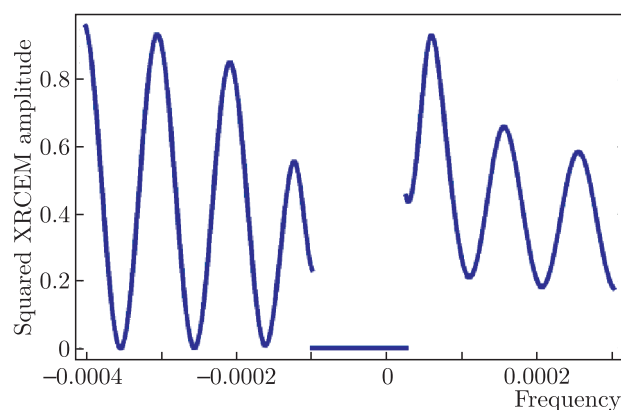


Рис. 15. Влияние эффекта Бормана на спектр линии Коссея при $\text{Re } \varepsilon_\tau = 0.0001$, $\gamma = 0$, $\text{Im } \varepsilon_\tau = 0.00002$, $N = 20000$

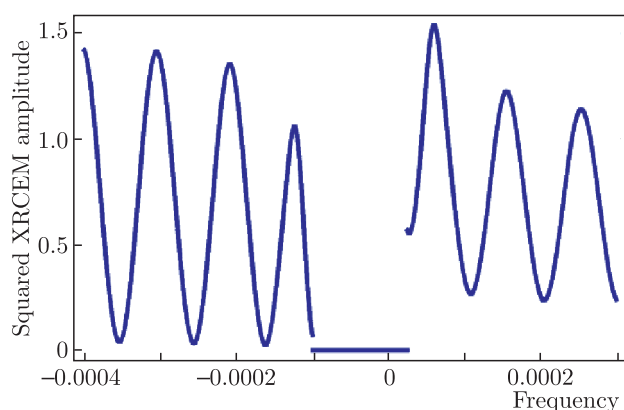


Рис. 14. Влияние эффекта Бормана на спектр линии Коссея при $\text{Re } \varepsilon_\tau = 0.0001$, $\gamma = 0$, $\text{Im } \varepsilon_\tau = 0.00001$, $N = 20000$

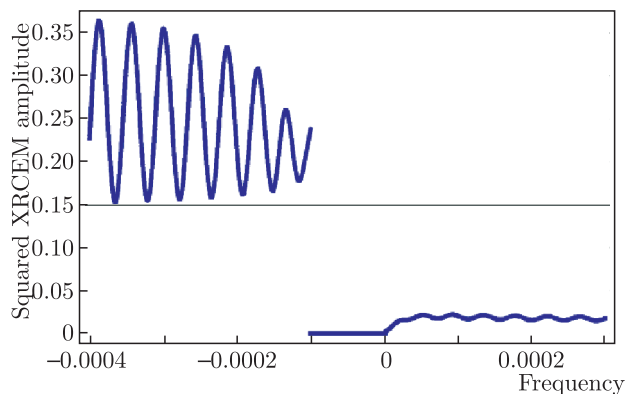


Рис. 16. Влияние эффекта Бормана на спектр линии Коссея при $\text{Re } \varepsilon_\tau = 0.0001$, $\gamma = 0.00002$, $\text{Im } \varepsilon_\tau = 0.00001$, $N = 45000$

к рентгеновской структурной амплитуде рассеяния (ε_τ) мнимой добавки [14], т.е. разной силе проявления эффекта Бормана в приведенных на рис. 13 рассчитанных зависимостях соответствуют различные величины мнимых добавок к ε_τ . Очевидно, что эффект Бормана [4, 5, 7] влияет на спектр КЛ. Как будет показано ниже, влияние эффекта Бормана на спектры КЛ естественно описывается в рамках развиваемого здесь подхода, основанного на XRCEM.

Влияние эффект Бормана на спектр КЛ для толстых поглощающих образцов при низком частотном (угловом) экспериментальном разрешении XRCEM для различных n показано на рис. 16 и 17.

На рис. 14–17 видно, что эффект Бормана нарушает симметрию КЛ относительно BSR (поглощение на низкочастотной границе BSR меньше, чем на вы-

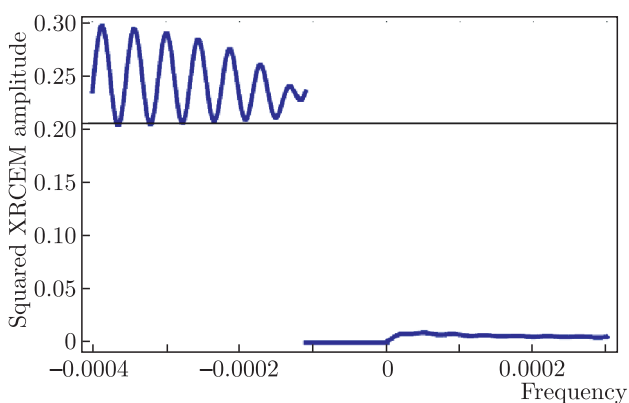


Рис. 17. Влияние эффекта Бормана на спектр линии Коссея при $\text{Re } \varepsilon_\tau = 0.0001$, $\gamma = 0.00002$, $\text{Im } \varepsilon_\tau = 0.00002$, $N = 45000$

сокочастотной ее границе), причем это нарушение сильно возрастает с увеличением толщины образца. Для достаточно толстых образцов отдельные моды XRCEM оказываются неразрешенными в эксперименте и спектр KL выглядит как сглаженные кривые на рис. 16 и 17. Рисунки 14 и 15 соответствуют эффекту Бормана в отсутствие изотропного поглощения ($\gamma = 0$). Однако при наличии изотропного поглощения ($\gamma > 0$) проявление эффекта Бормана может усиливаться (ср. рис. 16, 17 и рис. 14, 15), при этом XRCEM могут быть практически полностью подавлены на высокочастотной границе BSR.

8. ОБСУЖДЕНИЕ

Результаты выполненного выше изучения линий Коссея в рамках теории XRCEM находятся в хорошем общем согласии с известными экспериментальными данными. Тем не менее, не все теоретические предсказания по причине современных ограничений возможностей рентгеновской техники уже наблюдаются (по сравнению с более продвинутой техникой оптического эксперимента). Эти ограничения для рентгеновских длин волн, в частности, относятся к спектральному разрешению и поляризационным измерениям. Поэтому спектральные (угловые) вариации интенсивности KL, соответствующие различным номерам XRCEM n , будучи порядка 10^{-5} , как видно на рис. 4–10 и рис. 13–17, оказываются обычно вне экспериментального разрешения рентгеновской техники. Разрешение дополнительно понижается в связи с типичным отсутствием рентгеновских поляризационных измерений. Напомним, что наблюдаемая интенсивность в случае низкого разрешения соответствует суперпозиции двух конусов Коссея, относящихся к π - и σ -поляризации с угловым различием в доли 10^{-4} радиана. Тем не менее, нет сомнений, что названные спектральные (угловые) вариации KL будут наблюдаться по мере улучшения рентгеновской техники (современный прогресс рентгеновской техники очень впечатляющ [17] и вселяет надежды на достижение ее необходимого улучшения уже в ближайшем будущем).

Здесь надо также принять во внимание, что спектральные зависимости, вычислявшиеся выше, относятся к источнику с «плоским» спектром, однако для рентгеновской флюоресценции конечная частотная ширина источника ограничивает спектральную ширину наблюдаемых KL.

В качестве дополнительного аргумента в поддержку сказанного можно назвать недавний про-

гресс в наблюдении и интерпретации явления той же природы, а именно, оптических линий Коссея [18–21]. В экспериментальных статьях по оптическим линиям Коссея в фотонных жидких кристаллах [18–20] были наблюдаемы вариации интенсивности линий Коссея, относящихся к различным номерам n оптических аналогов XRCEM, в частности, был наблюден оптический аналог эффекта Бормана [20], подобный эффекту, демонстрируемому на рис. 14–17.

Что касается измерений рентгеновских KL без разрешения индивидуальных максимумов, относящихся к XRCEM с различными номерами n , то соответствующие спектры должны состоять из двух непрерывных линий с их частотным (угловым) расположением вне высокочастотной и низкочастотной границ BSR (см. рис. 11, 12 и рис. 16, 17). Если поглощение оказывается изотропным и однородным, то линии оказываются симметричными относительно BSR с сильной зависимостью их интенсивности от толщины образца (см. рис. 11, 12). Однако если KL подвержена действию эффекта Бормана, то симметрия спектра относительно BSR нарушается и интенсивности двух линий оказываются различными, вплоть до того, что интенсивность одной из них может быть исчезающе малой для достаточно толстых образцов (см. рис. 16, 17). Эти качественные заключения развиваемой здесь теории находят свое подтверждение на рис. 1, на котором представлены результаты наблюдения рентгеновских KL в совершенном монокристалле германия, в котором разрешенные двойные линии состоят из двух разделенных линий различной интенсивности. Другой общий вывод теории о понижении интенсивностей рентгеновских KL с увеличением толщины образца также находит свое экспериментальное подтверждение (см. рис. 1.6 в работе [5], на котором показано понижение интенсивностей KL и даже исчезновение некоторых из них с ростом толщины образца).

9. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Результатом выполненной работы является формирование ясной физической картины рентгеновских линий Коссея (и их возникновения в рамках единого подхода, основанного на теории XRCEM), существующих в совершенных монокристаллических слоях (прежде всего, соответствующие результаты относятся к особенностям рентгеновской флюоресценции в совершенных кристаллах). Развитый подход дает аналитический метод для описания ре-

зультатов измерений, относящихся к упомянутым особенностям рентгеновской флюоресценции в совершенных кристаллах (рентгеновские линии Коссея) для каждого конкретного эксперимента. Что касается поляризационных свойств рентгеновской флюоресценции в совершенных кристаллах в линиях Коссея, то они определяются поляризационными свойствами XRCEM и оказываются двух типов, с π - и σ -поляризаций (в соответствии с двумя типами конусов Коссея, π - и σ -поляризованных). Положение максимумов интенсивности флюоресценции в спектре KL совпадает с последовательными частотами XRCEM для последовательных n , которые нумеруют XRCEM. Спектр KL для пренебрежимо малого поглощения в кристаллическом слое является симметричным относительно области селективного отражения, в то время как для достаточно сильного поглощения эта симметрия может быть нарушенной из-за эффекта Бормана. В результате выполненного исследования может быть сформулировано следующее нетривиальное утверждение. Интенсивность линии Коссея в поглощающем кристаллическом слое для отдельного акта эмиссии уменьшается с увеличением толщины образца, однако это уменьшение может отсутствовать или быть уменьшенным на частоте флюоресценции, для которой реализуется эффект Бормана.

Однако существует вопрос, который выходит за рамки проведенного рассмотрения. Это — вычисление абсолютной интенсивности эмиссии рентгеновской флюоресценции, выходящей из слоя в конус Коссея. В эксперименте детектируемая интенсивность рентгеновской флюоресценции представляет собой результат некогерентного суммирования многих актов эмиссии, происходящих в различных положениях эмитирующих атомов внутри кристаллического слоя. Выше мы рассматривали эмиссию (затухание) XRCEM, существующую в кристаллическом слое. В нашем подходе конус Коссея флюоресценции в кристаллическом слое возникает в результате затухания (эмиссии) XRCEM. Очевидно, что для вычисления абсолютной интенсивности эмиссии в конус Коссея необходимо знать, как вероятность возбуждения XRCEM в отдельном акте эмиссии зависит от положения эмитирующего атома в кристаллическом слое. Естественно, например, что вероятность возбуждения XRCEM актом эмиссии вблизи поверхности и в середине слоя должны быть различными. Поэтому выше приводилась интенсивность рентгеновской флюоресценции, испускаемой в конус Коссея, в произвольных единицах, что вполне приемлемо, поскольку соответствующее спектральное

распределение отличается от распределения абсолютной интенсивности только некоторым множителем, определяемым зависимостью вероятности возбуждения XRCEM в акте эмиссии от положения эмитирующего атома в кристаллическом слое.

Представленные выше соображения относительно абсолютной интенсивности на конусе Коссея не имеют отношения к частотным (угловым) положениям на конусе Коссея максимумов интенсивности (которые, согласно теории, одни и те же независимо от положения эмитирующего атома в кристаллическом слое). Этот теоретический результат находится в полном согласии с упомянутым во Введении экспериментальным фактом очень слабой зависимости наблюдаемой картины зависимости линий Коссея от расположения эмитирующих атомов в кристаллическом слое.

Экспериментальное наблюдение KL с характеристиками, согласующимися с представленной здесь теорией XRCEM, само по себе может рассматриваться как наблюдение XRCEM. Тем не менее, прямым доказательством связи KL с XRCEM может быть их подтверждение в измерениях с применением рентгеновской техники временной задержки детектирования. Если образование конуса Коссея рентгеновской флюоресценции при эмиссии отдельного атома происходит посредством возбуждения XRCEM, то эмиссия фотона рентгеновской флюоресценции из кристаллического слоя будет задержана относительно момента эмиссии отдельным атомом на временной интервал, определяемый временем жизни XRCEM. Для достаточно толстых и совершенных кристаллических слоев соответствующее время задержки может превосходить время флюоресценции отдельного атома. Таким образом, наблюдение временной задержки рентгеновской флюоресценции в конус Коссея может рассматриваться как прямое доказательство физического механизма флюоресценции в конус Коссея как процесса, осуществляющегося через возбуждение XRCEM.

Выше были изучены рентгеновские KL в обычных кристаллах с величинами периодичности порядка 10^{-8} см (и, следовательно, с величинами длин волн в XREM того же порядка). Заметим, что существуют искусственно выращенные структуры существенной прикладной важности с величинами периодичности, соответствующими мягкому рентгеновскому излучению. Это — многослойные рентгеновские зеркала (см., например, [22]), где мягкие рентгеновские линии Коссея наблюдаются в рентгеновской флюоресценции на характери-

ческих линиях, определяемых химическим составом соответствующих слоев [23]. Детектирование КЛ в этих многослойных рентгеновских зеркалах может быть применено для изучения совершенства этих зеркал. Однако эта проблема выходит за рамки настоящей статьи. Отметим, что наблюдавшиеся сравнительно недавно нейтронные линии Косселя [3], как и для случая рентгеновских КЛ, могут быть описаны в рамках теории нейтронных локализованных мод [24].

Финансирование. Работа выполнена в рамках государственного задания Министерства науки и высшего образования России № 0033-2019-0001.

ЛИТЕРАТУРА

1. W. Kossel, V. Loeck, and H. Voges, *Z. Für Phys.* **94**, 139 (1935).
2. S. Kikuchi, *Jap. J. of Phys.* **5**, 83 (1928); doi:10.1038/1211019a0.
3. B. Sur, R. B. Rogge, R. P. Hammond et al., *Phys. Rev. Lett.* **88**, 06505 (2002).
4. J. M. Cowley, *Diffraction Physics*, North-Holland, Amsterdam (1995).
5. A. Authier, *Dynamical Theory of X-Ray Diffraction*, Oxford University Press (2001).
6. V. Geist and R. Flaggmeyer, *Phys. Stat. Sol. (a)* **26**, K1 (1974).
7. V. V. Lider, *Crystallography Rep.* **56**, 169 (2011).
8. M. von Laue, *Ann. Phys. Lpz.* **23**, 705 (1935).
9. G. Borrmann, *Z. Kristallogr.* **120**, 143 (1964).
10. V. A. Belyakov and N. Kaputkina, *Proc. of XIV Int. Symp. Nanophysics and Nanoelectronics*, Nizhnii Novgorod, Vol. 2, 327 (2010).
11. V. A. Belyakov, *Proc. of XXIV Int. Symp. Nanophysics and Nanoelectronics*, Nizhnii Novgorod, Vol. 2, 829 (2020).
12. V. A. Belyakov, *Diffraction Optics of Complex Structured Periodic Media*, 2nd ed., Springer, Chaps. 5–8 (2019).
13. A. M. Afanas'ev et al., *JETP* **95**, 472 (2002).
14. B. W. Batterman and H. Cole, *Rev. Mod. Phys.* **36**, 681 (1964).
15. V. A. Belyakov, *Diffraction Optics of Complex Structured Periodic Media*, Springer Verlag, Chapt. 3 (1992).
16. V. A. Belyakov and S. V. Semenov, *JETP* **109**, 687 (2009).
17. G. Bortel, G. Faigel, M. Tegze, and A. Chumakov, *J. Synchrotron Rad.* **23**, 214 (2016); doi:10.1107/s1600577515019037.
18. J. Schmidtke and W. Stille, *Eur. Phys. J. B* **31**, 179 (2003).
19. A. M. Risse and J. Schmidtke, *J. Phys. Chem. C* **123**, 2428 (2019); doi:10.1021/jpcc.8b11134.
20. L. Penninck, J. Beeckman, de P. Visschere, and K. Neyts, *Phys. Rev. E* **85**, 041702 (2012).
21. V. A. Belyakov, *Crystals* **10**, 541 (2020); doi:10.3390/cryst10060541.
22. N. N. Salashenko, N. I. Chkhalo, S. V. Gaponov et al., *CEJP* **1**, 191 (2003).
23. P. Jonnard et al., *Phys. Res. B* **452**, 12 (2019).
24. V. A. Belyakov, *JETP* **124**, 994 (2017).