

Дисперсионные характеристики алмаза в жестком рентгеновском диапазоне длин волн

© А.Г. Турьянский, И.В. Пиршин, Р.А. Хмельницкий, А.А. Гиппиус

Физический институт им. П.Н. Лебедева Российской академии наук,
117924 Москва, Россия

E-mail: tour@sci.lebedev.ru

(Поступила в Редакцию 6 июля 2000 г.
В окончательной редакции 17 августа 2000 г.)

Впервые исследованы дисперсионные свойства монокристаллов природного алмаза в рентгеновском диапазоне длин волн 0.03–0.2 нм. Дисперсионный элемент представлял собой аналог прямоугольной призмы. Коллимированный пучок полихроматического излучения направлялся на преломляющую грань изнутри под малым углом скольжения ($\ll \pi/2$). Ввод излучения осуществлялся через боковую грань, ориентированную нормально к оси прямого пучка. В области энергий 8 keV достигнуто разрешение 106 eV, что приблизительно вдвое лучше соответствующего параметра для полупроводниковых детекторов. Как показывает расчет, в условиях идеальной геометрии предельное разрешение для алмазной призмы с одной преломляющей гранью может быть уменьшено до 36–40 eV. Это обеспечивает возможность создания нового типа аналитических приборов — дисперсионных рентгеновских спектрометров для исследования быстропротекающих процессов, связанных с генерацией и поглощением рентгеновского излучения.

Для детального анализа спектра рентгеновского излучения, распространяющегося вдоль заданного направления, при $\lambda < 0.3$ нм обычно используются монохроматоры из совершенных монокристаллов [1,2]. Для фиксированной ориентации единичного вектора S_0 , характеризующего заданное направление, в соответствии с брэгговским условием дифракции отражение может происходить только в узких спектральных участках. Поэтому для исследования полного спектра в широком диапазоне необходим механический поворот монохроматора и многократные повторения измерений. Очевидно, что такой метод непригоден для исследования нестационарных быстропротекающих процессов, например, при облучении мишени мощным лазерным импульсом [3]. Отметим, что на практике спектр, отражаемый кристаллом-монохроматором, часто регистрируется с помощью фотопластинки или других типов двухкоординатных приемников [4]. Однако при этом условие неизменности S_0 не выполняется.

Спектры импульсов излучения также не могут исследоваться с помощью охлаждаемых полупроводниковых детекторов [5], так как принципиальным условием их работы является последовательная регистрация отдельных квантов с интервалом времени ≥ 10 мкс [6]. Широко используемые в оптическом и мягком рентгеновском диапазонах дифракционные решетки при длине волны < 0.3 нм обладают низкой эффективностью ($\sim 1\%$) [7,8]. Кроме того, на спектрограмму накладываются неконтролируемые искажения, обусловленные сильной анизотропией рассеяния, так как для искусственных периодических структур $\lambda \ll p$, где p — период решетки.

Таким образом, в настоящее время, по существу, нет экспериментальных средств для спектрометрии направленных полихроматических пучков жесткого рентгенов-

ского излучения, генерируемых при быстрых нестационарных процессах.

В настоящей работе впервые показано, что дисперсионные свойства алмаза обеспечивают возможность разложения спектра жесткого рентгеновского излучения с длиной волны по меньшей мере до 0.03 нм ($E = 40$ keV). При этом благодаря угловой дисперсии может анализироваться спектр как стационарного, так и импульсного источника без каких-либо ограничений на время длительности импульса.

1. Экспериментальная схема

На рис. 1 показана разработанная нами экспериментальная схема для проведения дисперсионных измерений. Источником излучения является острофокусная рентгеновская трубка с медным анодом. Видимый размер фокуса в измерительной плоскости равен 40 мкм. По ходу рентгеновского пучка установлены два рентгеновских гониометра. Расстояния от фокуса рентгеновской

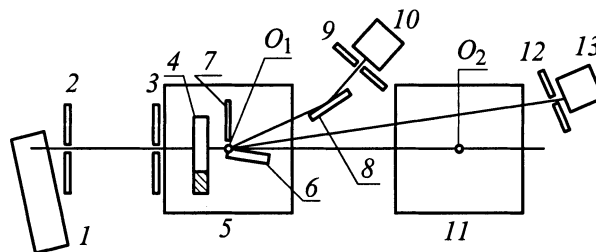


Рис. 1. Экспериментальная схема измерения. 1 — рентгеновская трубка, 2, 3, 9, 12 — вертикальные коллимационные щели, 4 — подвижная горизонтальная щель, 5, 11 — гониометры, 6 — образец, 7 — поглощающий экран, 8 — монохроматор, 10, 13 — детекторы излучения.

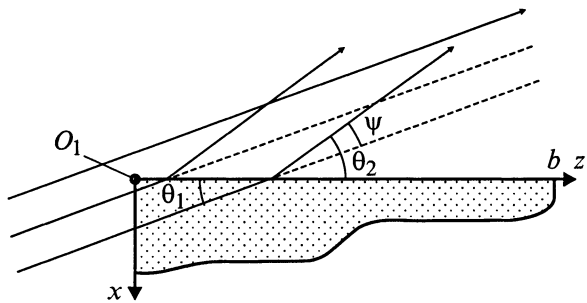


Рис. 2. Геометрия хода излучения при падении анализируемого пучка на базовую поверхность алмаза изнутри.

трубки до главных осей O_1 и O_2 гониометров 5 и 11 равны соответственно 330 и 1161 mm, а от осей O_1 и O_2 до приемных щелей 9, 12 — соответственно 225 и 192 mm. При использовании приемной щели шириной 30 μm схема обеспечивает угловое разрешение 0.0076° на первом по ходу пучка гониометре 5 и 0.0017° на гониометре 11.

В качестве образцов использовались монокристаллы природного алмаза (тип Ia), имеющие плотность 3.515 g/cm^3 . За базовую (преломляющую) поверхность принималась грань (110), перпендикулярно которой шлифовались две параллельные боковые грани. Полировка поверхности осуществлялась алмазным порошком АСМ28/20. Преломляющая грань повторно полировалась более мелким порошком со средним размером зерна $\sim 1 \mu\text{m}$. Были изготовлены три образца. Размер преломляющей грани с минимальной площадью 12 mm^2 в плоскости падения пучка составлял 2.2 mm. Для сравнения использовалась также пластина монокристаллического Si, выращенная из стандартного оптически полированного диска. При этом боковые поверхности, перпендикулярные базовой грани, были получены скалыванием по плоскости спайности.

Образцы устанавливались так, чтобы ребро, образованное базовой и боковой гранью, обращенной к фокусу рентгеновской трубки, было совмещено с осью вращения O_1 гониометра 5 (рис. 1, 2). Типичная угловая расходимость анализируемого пучка, падающего на преломляющую грань диспергирующего элемента, составляла $24''$. Расположенные на поворотном кронштейне графитовый монохроматор 8 и детектор 10 использовались для предварительной настройки рентгеновской схемы. Все приведенные далее результаты получены путем углового сканирования детектора 13 со сцинтилляционным кристаллом NaI(Tl) вокруг оси O_2 . Программа управления сбором данных при постоянной скорости перемещения детектора предусматривала возможность задания произвольного времени сбора данных в каждой угловой точке. Типичный угловой интервал между отсчетами составлял 0.0005° .

2. Угловая дисперсия при преломлении рентгеновских лучей

Рассмотрим в рамках геометрической оптики последовательное прохождение параллельного рентгеновского пучка через прямоугольную призму из однородного материала. Обозначим показатели преломления призмы и окружающей среды соответственно $n_1(\lambda) = 1 - \delta_1(\lambda) - i\beta_1(\lambda)$ и $n_2(\lambda) = 1 - \delta_2(\lambda) - i\beta_2(\lambda)$. Пусть ось z нормальна, а ось x параллельна первой границе раздела и лежит в плоскости падения (рис. 2). Положим, что излучение является монохроматическим с длиной волны $\lambda \sim 0.1 \text{ nm}$, а угол падения φ на первую границу раздела близок к нулю. При указанных условиях справедливы следующие упрощения. Во-первых, можно рассматривать только преломление на второй границе раздела, так как величины коэффициента отражения и изменения угла преломления при пересечении первой границы ничтожно малы. Во-вторых, можно не учитывать состояние поляризации падающего излучения, так как в соответствии с формулами Френеля коэффициенты пропускания для s - и p -поляризации при $\varphi \rightarrow \pi/2$ практически совпадают. Переходя от углов падения к углам скольжения $\theta = \pi/2 - \varphi$, закон синусов [9] для второй границы раздела можем преобразовать к виду

$$\frac{1 - \delta_1 - i\beta_1}{1 - \delta_2 - i\beta_2} = \frac{\sqrt{1 - \sin^2 \theta_2}}{\sqrt{1 - \sin^2 \theta_1}}, \quad (1)$$

где θ_1, θ_2 — углы скольжения падающего и преломленного излучения соответственно в первой и второй средах.

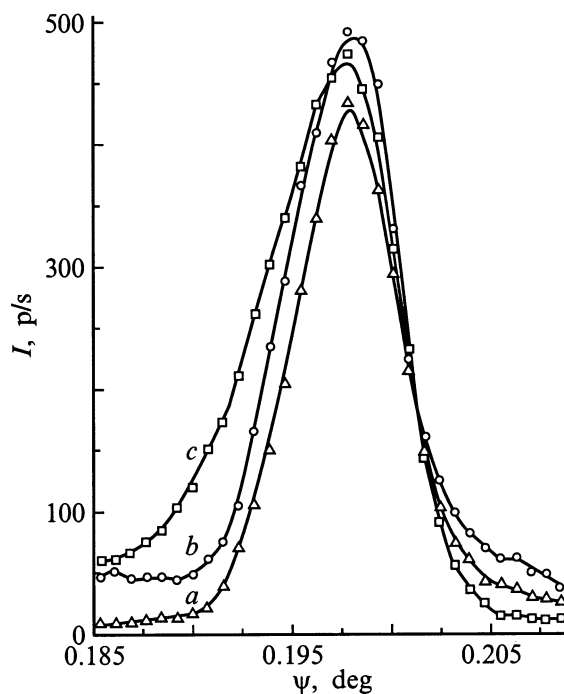


Рис. 3. Угловые профили преломленного пучка на линии CuK_α для трех образцов алмаза a – c . Падение изнутри при фиксированном угле скольжения. $\theta_1 = 0.09^\circ$.

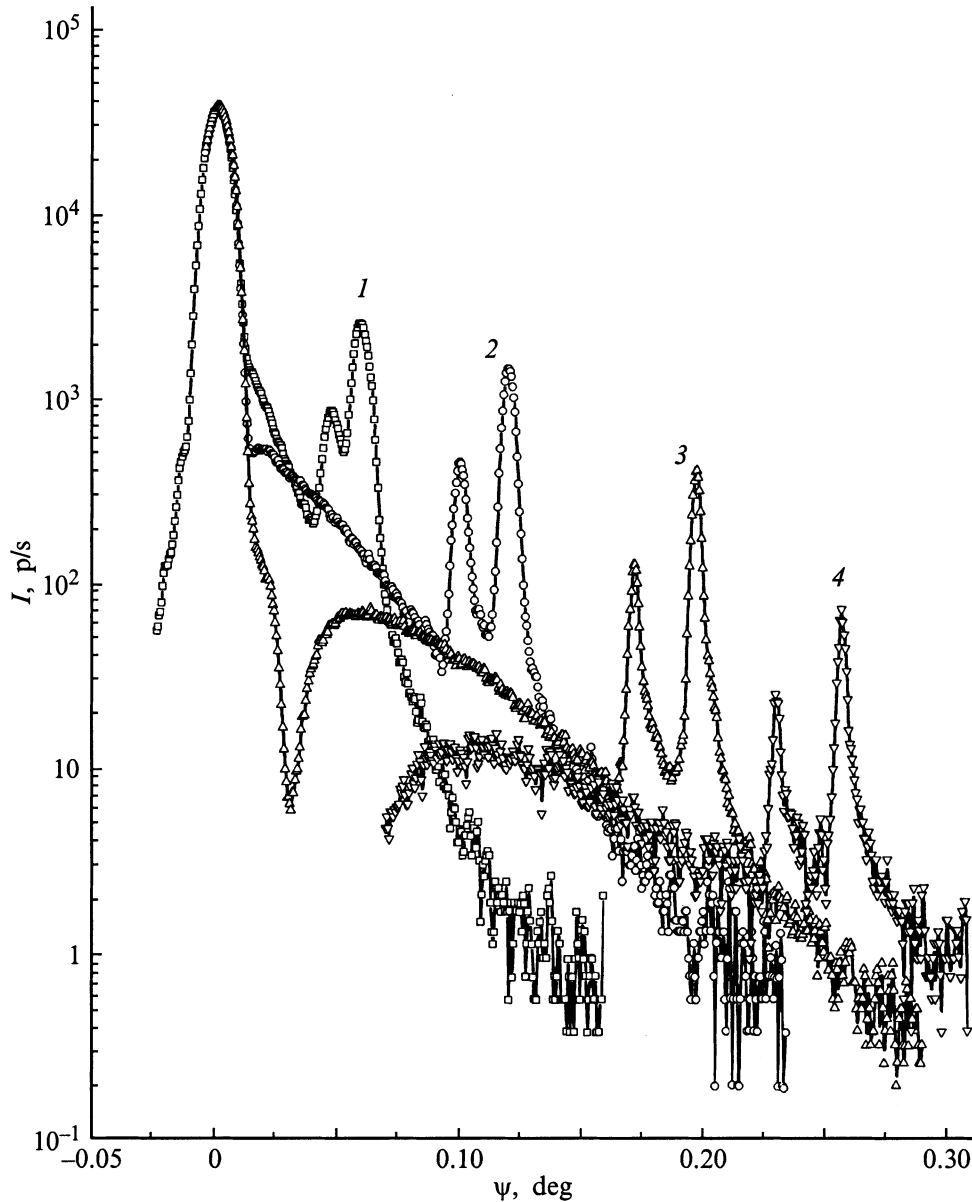


Рис. 4. Рефрактограммы алмаза при различных углах скольжения θ_1 анализируемого пучка: 1 — 0.60° , 2 — 0.25° , 3 — 0.09° , 4 — 0.01° .

Абсолютная величина декремента показателя преломления $|\delta + i\beta|$ при указанной длине волны для всех твердых тел меньше 10^{-4} [10], причем $\beta/\delta \ll 1$. Это позволяет в интересующей нас области малых углов скольжения $\theta_1 \ll \pi/2$ воспользоваться разложением в ряд и получить выражение для угла скольжения преломленного излучения во второй среде θ_2

$$\theta_2 \cong \sqrt{\theta_1^2 - 2(\delta_2 - \delta_1)}. \quad (2)$$

Продифференцируем (2) по θ_1 . Тогда для пучка с угловой расходимостью $\Delta\theta$ получаем следующую зависимость коэффициента углового сжатия от θ_1 (здесь

θ_1 — угол скольжения центрального луча):

$$C_a = \frac{\Delta\theta_1}{\Delta\theta_2} = \frac{\sqrt{\theta_1^2 - 2(\delta_2 - \delta_1)}}{\theta_1}. \quad (3)$$

Декрементом показателя преломления воздуха δ_2 можно пренебречь. Как следует из (3), в выбранной нами геометрии (рис. 2) происходит угловое сжатие преломленного пучка ($C_a > 1$). Отметим, что при обращении направления хода пучка, т.е. при переходе излучения из воздуха в образец, угловой раcтвор преломленного пучка будет возрастать, поскольку $C_a < 1$. Следовательно, в нашем случае обеспечивается максимальное угловое разрешение спектра.

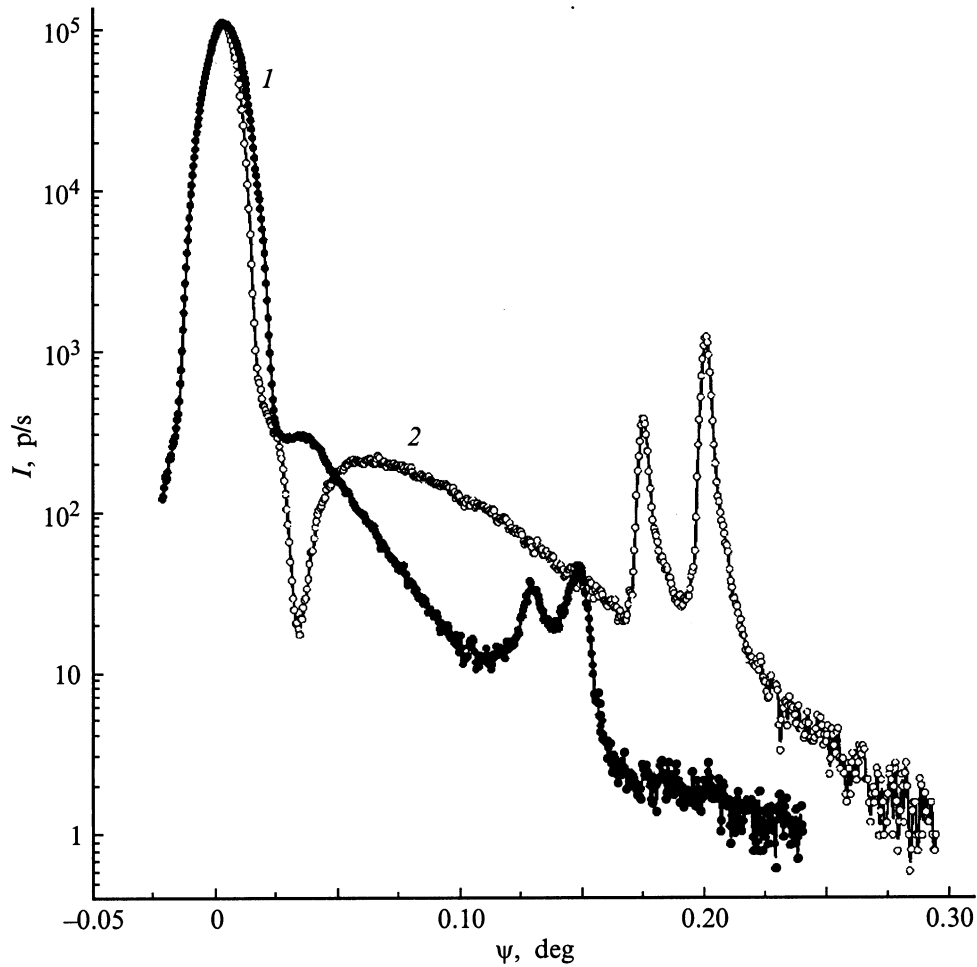


Рис. 5. Рефрактограммы монокристалла Si (1) и алмаза (2) при угле скольжения $\theta_1 = 0.08^\circ$ и напряжении на рентгеновской трубке 25 kV.

Учтем теперь спектральную зависимость показателя преломления. В рассматриваемой области спектра для всех электронных оболочек атома С выполняется условие $\nu_0^2 \gg \nu_i^2$, где ν_0 — частота колебаний произвольной линии из исследуемого рентгеновского диапазона, ν_i — собственная частота колебаний электрона i -й оболочки. При указанном условии в соответствии с электронной теорией дисперсии [10] для любой линии λ рентгеновского спектра

$$\delta(\lambda) = g\rho\lambda^2, \quad (4)$$

где g — размерный коэффициент, который может быть выражен через фундаментальные физические константы, ρ — физическая плотность материала образца. Подставляя (4) в (2) и дифференцируя по λ , получаем следующее выражение для угловой дисперсии:

$$D(\rho, \lambda) = d\theta_2/d\lambda = \frac{2\lambda g\rho}{\sqrt{\theta_1^2 + 2g\rho\lambda^2}}. \quad (5)$$

Очевидно, при углах скольжения $\theta_1 \rightarrow 0$ угловая дисперсия максимальна. При этом $D \propto \rho^{1/2}$ и не зависит от λ .

При $\theta_1^2 \gg 2g\rho\lambda^2$ величина $D(\rho, \lambda)$ изменяется приблизительно пропорционально ρ и λ . Как известно из теории призмных спектрометров [11], спектральное разрешение $A = \lambda/\Delta\lambda$ связано с дифракционным пределом. В рассматриваемом нами случае эффективное сечение преломленного пучка в плоскости падения может быть ограничено двумя факторами: во-первых, конечным размером преломляющей площадки b ; во-вторых, конечной величиной средней длины свободного пробега фотона в образце, которая равна обратной величине линейного коэффициента ослабления $\mu(\lambda)$. Более строго для дифракционной угловой ширины $\Delta\theta(\lambda)$ преломленного пучка можно записать

$$\Delta\theta_{d\lambda} \cong \begin{cases} \lambda/b\theta_2, & b \leq 2/\mu(\lambda), \\ \lambda\mu(\lambda)/2\theta_2, & b \geq 2/\mu(\lambda). \end{cases} \quad (6)$$

Введение множителя 2 обусловлено, тем, что при оценке дифракционного уширения необходимо учитывать ослабление волны по амплитуде. Для участков рентгеновского спектра вблизи характеристических линий

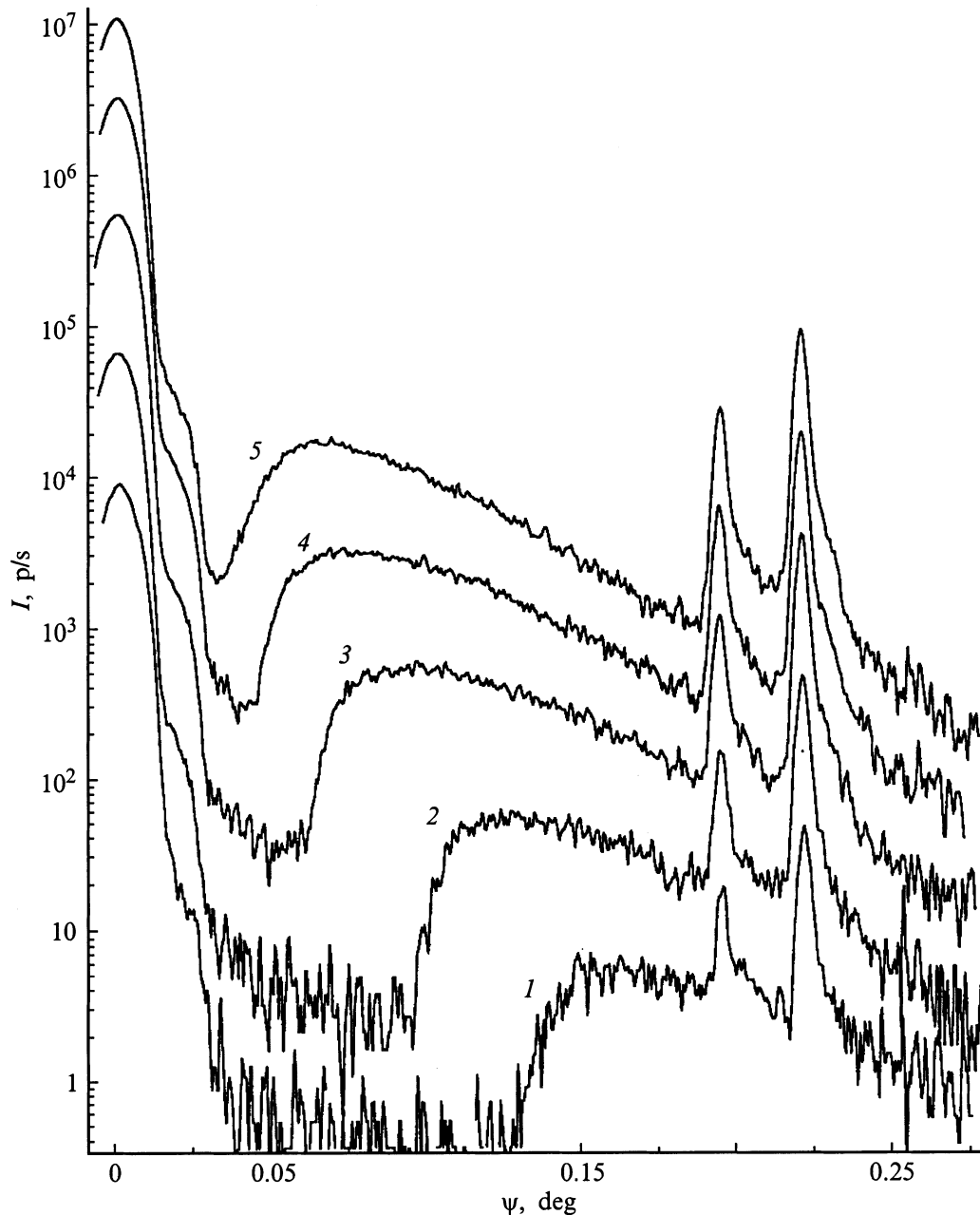


Рис. 6. Рефрактограммы алмаза при угле скольжения $\theta_1 = 0.06^\circ$ и напряжениях на рентгеновской трубке, равных 12 (1), 15 (2), 20 (3), 25 (4) и 35 kV (5).

CuK_α (0.154 nm) и CuK_β (0.139 nm) выполняется условие $b \geq 2/\mu(\lambda)$. Подставляя в (6) значение $\mu(\lambda)$ алмаза для указанных длин волн и типичную величину угла $\theta_2 = 0.2^\circ$ (3.5 mrad), получаем $\Delta\theta_d(\text{CuK}_\alpha) \approx 0.0019^\circ$ (32 mrad) и $\Delta\theta_d(\text{CuK}_\beta) \approx 0.0012^\circ$ (2.1 mrad). Это позволяет оценить спектральное разрешение дисперсионного элемента $A(\lambda)$. Умножая левую и правую части уравнения (5) на $\Delta\lambda$ и подставляя величины констант при указанных параметрах, находим $A_\alpha = 200$ и $A_\beta = 251$. Переходя от $\Delta\lambda$ к энергетическому разрешению, получаем для линий 0.154 и 0.139 nm величины ΔE , равные соответственно 40 и 36 eV.

3. Результаты измерений

На рис. 3 показаны угловые профили преломленного пучка для трех образцов алмаза (*a, b, c*) при идентичных условиях облучения. Здесь и далее по шкале абсцисс отложен угол отклонения $\Psi = \theta_2 - \theta_1$, отсчитываемый от направления первичного пучка. Анализируемый пучок в соответствии с геометрией рис. 2 проходил через боковую грань и падал изнутри на боковую поверхность образца. Сохранение неизменной величины угла скольжения θ_1 является принципиальным условием получения максимального разрешения. Как видно из сравнения,

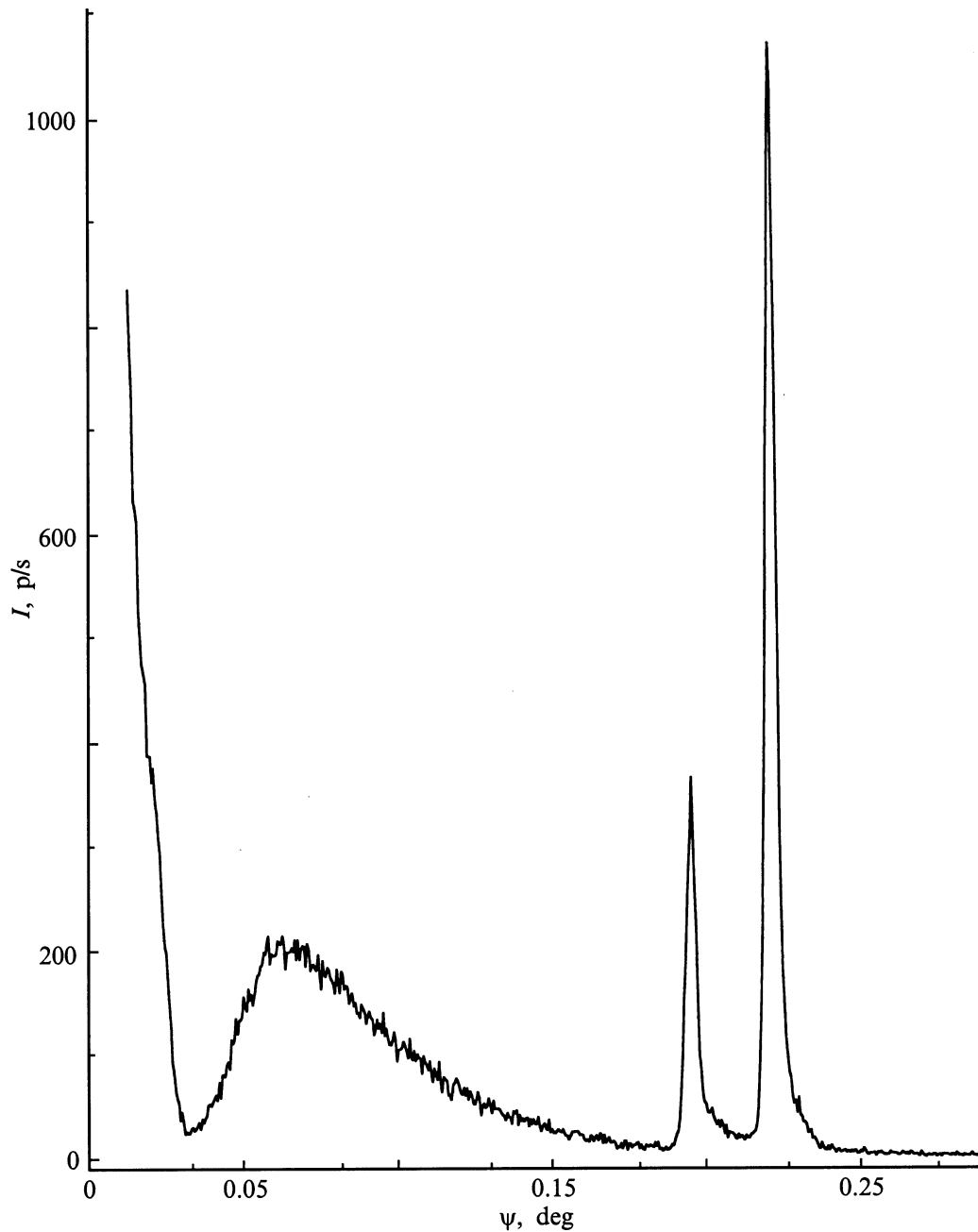


Рис. 7. Рефрактограмма алмаза при угле скольжения $\theta_1 = 0.06^\circ$ и напряжении на рентгеновской трубке 40 kV.

ширина на полувысоте пика рефракции минимальна для образца *a*. Это свидетельствует о том, что большая часть его преломляющей поверхности удовлетворяет требованию плоскостности. Поэтому именно этот образец использовался для дальнейших измерений.

При уменьшении угла скольжения θ_1 в соответствии с (5) угловая дисперсия должна возрастать. Как показано в [12] для геометрии по рис. 2, эффективная ширина входной апертуры дисперсионного элемента на линии спектра с длиной волны λ равна $\theta_1/\mu(\lambda)$, и при уменьшении θ_1 интенсивность преломленного пучка

будет монотонно падать. При этом зависимость будет нелинейной, так как при $\theta_1 \rightarrow 0$ на границе алмаз–воздух коэффициент отражения $R(\theta_1) \rightarrow 1$. Указанные закономерности подтверждаются серией рефрактограмм, полученных путем углового сканирования детектором *I3* при нескольких фиксированных углах скольжения θ_1 (рис. 4).

При замене алмаза монокристаллическим Si ($Z = 14$) эффективная длина пробега рентгеновских фотонов $l_e = 1/\mu$ в дисперсионном элементе резко падает для любой длины волны из рассматриваемого диапазона.

В частности, при $\lambda = 0.154 \text{ nm}$ (линия CuK_α) по данным [13–16] $\mu(\text{Si}) = 145 \text{ cm}^{-1}$, $\mu(\text{C}) = 14.7 \text{ cm}^{-1}$. В соответствии с (6) для Si при этом должно наблюдаться уменьшение $D(\rho, \lambda)$. Как видно из рис. 5, на котором представлены рефрактограммы Si (кривая 1) и алмаза (кривая 2) при угле скольжения $\theta_1 = 0.08^\circ$, дисперсионный элемент из Si не позволяет полностью разделить спектральные линии CuK_α и CuK_β . При этом наиболее жесткая часть спектра излучения трубки при напряжении 25 kV полностью не отделяется от бокового крыла прямого пучка, проходящего через зазор между образцом и экраном 7 (рис. 1).

На рис. 6 представлена серия рефрактограмм алмаза, полученных при фиксированном угле скольжения $\theta_1 = 0.06^\circ$ и различных величинах напряжения на рентгеновской трубке в интервале от 12 до 35 kV.

Определение спектрального разрешения алмазной призмы проводилось по рефрактограмме (рис. 7), полученной при $U_m = 40 \text{ kV}$ и $\theta_1 = 0.06^\circ$. Измерение ширины на полувысоте пиков линий 0.154 и 0.139 nm с поправкой на аппаратную функцию дает соответственно значения $\Delta\lambda$, равные 19.7 и 17.1 pm или при переходе к энергетической шкале величины ΔE , равные соответственно 103 и 110 eV. При меньших углах, как следует из (5), спектральное разрешение должно возрастать. На практике этого не наблюдается, поскольку излучение распространяется вдоль поверхности через нарушенный механической обработкой слой. При этом возрастает интенсивность рассеяния на неоднородностях рельефа, что приводит к размытию углового спектра.

Таким образом проведенные исследования показывают возможность использования монокристаллов алмаза для практических измерений жесткого рентгеновского спектра с длиной волны от 0.03 до 0.25 nm. Указанный диапазон содержит характеристические линии K - или L -серий практически всех элементов с порядковым номером $Z > 25$. Анализируемый диапазон может быть слегка расширен в длинноволновую часть спектра до 0.3–0.5 nm при полном или частичном вакуумировании рентгенооптической схемы. При дальнейшем увеличении λ линейный коэффициент ослабления быстро возрастает, а величина b падает, и поэтому разрешение вследствие дифракционных эффектов, связанных с конечным размером эффективной преломляющей поверхности, будет уменьшаться.

С практической точки зрения наиболее важный результат заключается в том, что благодаря угловой дисперсии излучения для регистрации полного спектра может быть использован одно- или двухкоординатный приемник, например, на базе ПЗС-линейки или матрицы. Это обеспечивает возможность анализа состава спектра без каких-либо ограничений на величину измеряемого промежутка времени. Поскольку угловое распределение хорошо описывается выражением (5), полученным из закона синусов, а абсорбционные свойства углерода протабулированы, по экспериментальной зависимости

$I(\Psi)$ может быть рассчитана спектральная плотность излучения $I^\lambda(\lambda)$.

Альтернативой алмазу как материалу дисперсионного элемента может являться бериллий. По сравнению с поликристаллическим Ве плотность природного алмаза больше в 1.9 раза, что в соответствии с (5) обеспечивает большую угловую дисперсию. Кроме того, благодаря монокристаллической структуре рассеяние вблизи нулевого узла обратной решетки минимально. Разумеется, в полихроматическом спектре некоторые узлы обратной решетки монокристалла С неизбежно попадают на сферу Эвальда, и поэтому часть потока энергии будет рассеиваться на большие углы в соответствии с дифракционными условиями. Дифракционные углы рассеяния ϑ должны быть $\geq \lambda/d$, где d — максимальное расстояние между атомными плоскостями в образце. В рассматриваемом диапазоне спектра заведомо $\vartheta \gg \Psi$, т. е. дифракционные пики не могут попадать в характерную область углов, измеряемых при рефракции. Кроме того, как указывалось выше, дифракционные условия выполняются в узких спектральных полосах для конечного набора рефлексов, и поэтому их наличие практически не искажает монотонное распределение непрерывной части спектра (рис. 7). Что же касается характеристических линий, то при известной кристаллографической ориентации монокристалла алмаза можно заранее рассчитать углы между преломляющей поверхностью и атомными плоскостями, при которых не выполняются дифракционные условия для заданного набора характеристических линий. Отметим, что используемые нами образцы природного алмаза с эффективной площадью преломляющей грани $\sim 10 \text{ mm}^2$ значительно дешевле синтетических. Кроме того, в связи с блочной структурой последних для них должны быть характерны более широкие спектральные полосы, в которых за счет брэгговских отражений может искажаться распределение интенсивности в угловом спектре.

Список литературы

- [1] Рентгенотехника. Справочник / Под ред. В.В. Клюева. Машиностроение, М. (1980). Т. 2. С. 60.
- [2] Н.Г. Волков, В.А. Христофоров, Н.П. Ушаков. Методы ядерной спектрометрии. Энергоатомиздат, М. (1990). С. 148.
- [3] J.A. Kyrala, J. Workman, S. Evans, G.T. Schappert, T. Tiermay. Int. Conf. "High-Speed Photography and Photonics". Moscow (20–25 Sept. 1998). P. 26.
- [4] К.Н. Мухин. Экспериментальная ядерная физика. Энергоатомиздат, М. (1993). Кн. 1. Ч. 1. 316 с.
- [5] Л.С. Горн, Б.И. Хазанов. Современные приборы для измерения ионизирующих излучений. Энергоатомиздат, М. (1989). С. 72.
- [6] Р. Вольдсет. Прикладная спектроскопия рентгеновских излучений. Атомиздат, М. (1977). С. 28.
- [7] A. Boscolo, L. Poletto, G. Tondello. Pure Appl. Opt. 6, 1, L1 (1997).

- [8] А.В. Виноградов, И.А. Брытов, А.Я. Грудский, И.В. Кожевников, М.Т. Коган, В.А. Слемзин. Зеркальная рентгеновская оптика. Машиностроение, Л. (1989). 467 с.
- [9] М. Борн, Э. Вольф. Основы оптики. Наука, М. (1973). 719 с.
- [10] М.А. Блохин. Физика рентгеновских лучей. ГИТТЛ, М. (1957).
- [11] А.Н. Зайдель, Г.В. Островская, Ю.И. Островский. Техника и практика спектроскопии. Наука, М. (1976). 392 с.
- [12] А.Г. Турьянский, И.В. Пиршин. ПТЭ, 6, 104 (1999).
- [13] М.А. Блохин, И.Г. Швейцер. Рентгеноспектральный справочник. Наука, М. (1982). 376 с.
- [14] V.L. Henke, E.M. Gullikson, J.C. Davis. Atom. Data Nucl. Data Tabl. 54, 2, 181 (1993).
- [15] Физические величины. Справочник / Под ред. И.С. Григорьева, Е.З. Мейлихова. Энергоатомиздат, М. (1991). 1232 с.
- [16] Д.В. Федосеев, Н.В. Новиков, А.С. Вишневский, И.Г. Теремецкая. Алмаз. Справочник. Наук. думка, Киев (1981). 78 с.