

由透射波的摇摆曲线求 GaAs 中 Ga 的反常散射因数

周圣明 赵宗彦 韩家骅 胡余根

(安徽大学物理系, 合肥 230039)

深町共荣 根岸利一郎 吉沢正美

(日本埼玉工业大学, 埼玉, 冈部 369-02)

中岛哲夫

(日本高能物理研究所放射光实验设施, 茨城, 筑波, 大穗 305)

(1995 年 9 月 14 日收到)

利用同步辐射光, 在对称 Laue 情况下, 于 Ga 的 K 吸收限附近, 测定了 GaAs(200) 的衍射波和透射波的摇摆曲线. 通过测定的透射波的摇摆曲线和 X 射线衍射动力学理论的相应计算结果的定量比较, 求得 GaAs 中的 Ga 原子在其 K 吸收限附近的反常散射因数.

PACC: 6110D; 6110F; 7870D

1 引 言

同步辐射 X 射线源的出现, 使原子吸收限附近的强反常散射在 X 射线研究领域, 特别是在结构因数位相决定方面的应用, 愈加受到关注^[1]. 现在测定吸收限附近原子反常散射因数, 已有不少方法, 其中有代表性的方法如强度比法^[2-4]、X 射线 Pendellösung 条纹法^[5-7]以及色散关系法^[8]等. 强度比法一般只适用于吸收限高能侧; Pendellösung 条纹法对弱吸收的情况效果较好; 而色散关系法实际上是先通过测定线吸收系数求 f'' , 再通过一个积分式了求 f' . 本文阐述的测定原子吸收限附近的反常散射因数的方法, 既适用于低能侧也适用于高能侧, 它以最近 Kato^[9]和 Fukamachi 等^[10]拓宽了适用范围的 X 射线衍射动力学理论, 计算对称 Laue 情况下吸收限附近的摇摆曲线, 再将之与实测结果作模拟比较, 求得 GaAs 晶体中 Ga 原子的反常散射因数.

2 实 验

实验测定是在日本高能物理研究所同步辐射实验室(简称 KEK-PF)的 BL6C1 站完成. 实验装置如图 1 所示. 同步辐射光通过狭缝 S_1 , 经 Si(111) 单色化, 再经过狭缝 S_2 , 照射到 GaAs 晶体样品上. 样品是厚度 $133 \pm 1 \mu\text{m}$ 的平行平板, 其 EPD 值在 $500/\text{cm}^2$ 以下. GaAs(200) 的 Laue 情况的衍射波强度由闪烁计数器(SC)检测, 透射波强度由固体探测器

(SSD)检测. 在实验过程中, 同步辐射光源的强度随时间不断缓慢地衰减, 每测一对衍射波和透射波的摇摆曲线的时间也不尽相同. 这些外界条件的差异使得所测的强度没有一个共同可比较的标准, 因此必须对实验数据进行规格化处理. 设 $I_h(\omega, \Delta\theta)$ 和 $I_d(\omega, \Delta\theta)$ 分别为以光子数表示的能量为 ω 时的实测衍射波和透射波在偏离布拉格角度 $\Delta\theta$ 处的强度, $R'(\omega)$ 为能量为 ω 时的实测衍射波的积分反射强度, 其

表示式为 $R'(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} I_h(\omega, \Delta\theta) d(\Delta\theta)$. 取 $\omega_0 = 10349.7 \text{ eV}$ 的能量点的衍射波和透射波作为比较的基准. 规格化后的透射波可表示为

$$I_d(\omega, \Delta\theta) = \frac{R'(\omega_0)}{R'(\omega)} \cdot \frac{1}{C'_M} \cdot I'_d(\omega, \Delta\theta), \quad (1)$$

其中系数 C'_M 为 $I'_d(\omega_0, \Delta\theta)$ 中的最大值, 其作用是使作为基准的规格化后的透射波强度的最大值为 1. 根据(1)式对实验数据进行处理, 部分结果如图 2(a)和(b)所示. 图 2(a)为 Ga 的 K 吸收限(10368 eV)的低能侧的结果, (b)为高能侧的结果. 在图 2(a)中, 当能量小于或等于 10357.2 eV 时, 摇摆曲线上有一个明显的谷; 当能量大于或等于 10365.6 eV 时, 在原来出现谷的角度位置附近则呈现一个峰. 此外, 当能量小于 10357.2 eV 时, 摇摆曲线的低角度一侧的强度大于同曲线高角度一侧的强度; 当能量大于 10357.2 eV 时, 则相反; 而当能量等于 10357.2 eV 时, 摇摆曲线几乎左右对称. 图 2(a)清楚地显示, GaAs(200)的 Laue 情况的透射波的强度及其摇摆曲线的形状在 Ga 的 K 吸收限附近的低能侧, 随着能量的变化而发生显著的变化. 另一方面, 在图 2(b)中, 中央峰的高度随着能量

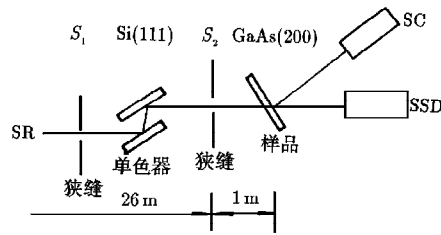
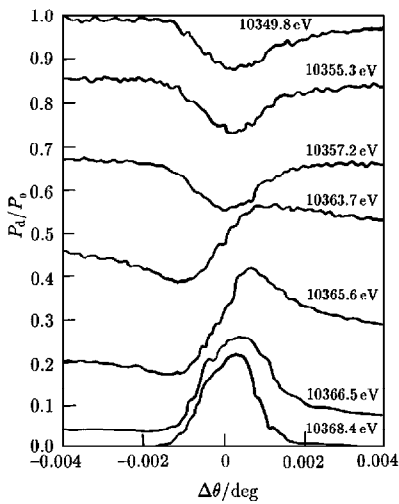
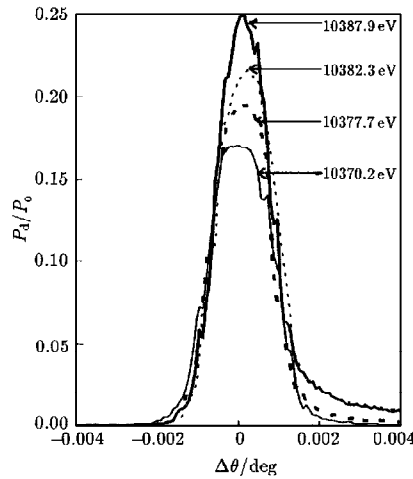


图 1 实验装置示意图



(a)Ga 的 K 吸收限低能侧的情况



(b)Ga 的 K 吸收限高能侧的情况

图 2 GaAs(200)对称 Laue 情况的规格化后透射波摇摆曲线的测定结果

的增加而增加, 摇摆曲线高角度一侧的强度稍稍大于同曲线低角度一侧的强度, 并且在中央位置总是出现一个尖锐的峰. 在这里看不到在图 2(a) 中出现过的那种明显的变化.

3 理论计算

在对称 Laue 情况下, X 射线衍射动力学二波近似衍射波和透射波的相对强度可分别表示为

$$\frac{P_h}{P_0} = e^{-\mu H / \cos \theta_B} \frac{\sin^2(sH \operatorname{Re} \sqrt{L}) + \sinh^2(sH \operatorname{Im} \sqrt{L})}{|\sqrt{L}|^2}, \quad (2)$$

$$\begin{aligned} \frac{P_d}{P_0} = \frac{e^{-\mu H / \cos \theta_B}}{|\sqrt{L}|^2} & \left\{ \frac{1}{2} [(|\sqrt{L}|^2 - W^2) \cos(2sH \operatorname{Re} \sqrt{L}) \right. \\ & \left. + (|\sqrt{L}|^2 + W^2) \cosh(2sH \operatorname{Im} \sqrt{L}) \right] \\ & \left. + W \operatorname{Im} \sqrt{L} \sin(2sH \operatorname{Re} \sqrt{L}) \right. \\ & \left. - W \operatorname{Re} \sqrt{L} \sinh(2sH \operatorname{Im} \sqrt{L}) \right\}, \quad (3) \end{aligned}$$

其中 P_0 , P_h 和 P_d 分别为入射波、衍射波和透射波的强度, μ 为线吸收系数, θ_B 为 Bragg 角, H 为晶体的厚度. 把晶体极化率 χ 及其虚数部分和实数部分向倒格子空间作傅里叶展开的 h 分量(乘以 4π)分别记为 χ_h , χ_{hi} 和 χ_{hr} . χ_{hi} 和 χ_{hr} 的相角之差记为 δ , 参数 W 和 s 为

$$W = \Delta \theta \sin(2\theta_B) / |\chi_h|, \quad (4)$$

$$s = \pi \kappa_{0r} |\chi_h| / \cos \theta_B, \quad (5)$$

其中 κ_{0r} 为晶体内入射波波矢的实部, $\Delta\theta$ 为偏离精确 Bragg 条件的角度大小. 令

$$A = W^2 + 1 - b, \quad (6)$$

$$B = 2p \cos \delta, \quad (7)$$

则

$$|\sqrt{L}|^2 = \sqrt{A^2 + B^2}, \quad (8)$$

$$\operatorname{Re} \sqrt{L} = \sqrt{(A + |\sqrt{L}|^2) / 2}, \quad (9)$$

$$\operatorname{Im} \sqrt{L} = \pm \sqrt{(-A + |\sqrt{L}|^2) / 2}. \quad (10)$$

引入参量

$$k = |\chi_{hr} / \chi_{hi}|, \quad (11)$$

$$g_0 = \chi_{0i} / |\chi_{hi}|, \quad (12)$$

因此 $\mu H / \cos \theta_B$, b 和 p 可写成

$$\mu H / \cos \theta_B = -2g_0 sH / (k^2 + 1 - 2k \sin \delta)^{1/2}, \quad (13)$$

$$b = 2(1 - k \sin \delta) / (k^2 + 1 - 2k \sin \delta), \quad (14)$$

$$p = k / (k^2 + 1 - 2k \sin \delta). \quad (15)$$

在(10)式中,当 $p \cos \delta \geq 0$ 时,取“+”号,反之取“-”号.可见,(2)和(3)式等号右边的基本参量只有 g_0 , k , W , s 和 δ ,而对于 GaAs 的(200)面,在原子单位制($\hbar = m = e = 1$)中,它们又可进一步表示为

$$g_0 = - (f_{Ga}'' + f_{As}'') / |f_{Ga}'' - f_{As}''|, \quad (16)$$

$$k = |F_{hr} / F_{hi}|, \quad (17)$$

$$W = cV \sqrt{(d\omega)^2 - (\pi c)^2} / [2d^2 \sqrt{F_{hr}^2 + F_{hi}^2}] \Delta \theta, \quad (18)$$

$$s = 2\pi d \sqrt{F_{hr}^2 + F_{hi}^2} / [cV \sqrt{(\omega d)^2 - (\pi c)^2}], \quad (19)$$

$$\delta = \begin{cases} \pi & F_{hr} < 0, \text{ 且 } F_{hi} > 0, \\ 0 & F_{hr} \cdot F_{hi} \geq 0, \\ -\pi & F_{hr} > 0, \text{ 且 } F_{hi} < 0, \end{cases} \quad (20)$$

其中 F_{hr} 和 F_{hi} 分别为 GaAs 的结构因数的实部和虚部,可表示为 $F_{hr} = 4(f_{Ga}^0 + f_{Ga}'') - 4(f_{As}^0 + f_{As}'')$ 和 $F_{hi} = 4(f_{Ga}'' - f_{As}'')$,考虑到温度的影响, F_{hr} 和 F_{hi} 还应再乘以热振动修正因子 $D = \exp(-B/(2d)^2)$,同时(16)式的 g_0 应再除以 D ,这里取 $B = 5.8 \times 10^{-9} \mu\text{m}^2$.式中 V , d 和 c 分别是晶胞体积、晶面间距和光速.因此,对于 GaAs 的(200)面,(2)和(3)式仅为 Ga 和 As 的原子散射因数、入射波的能量 ω 以及对布拉格角的偏离 $\Delta \theta$ 的函数.由于实验是在 Ga 的 K 吸收限(10368 eV)附近进行的,远离 As 的 K 吸收限(11864 eV),所以 As 的反常散射效应微弱,其反常散射因数 f_{As}' 和 f_{As}'' 可由 Cromer 和 Liberman(简称 CL)的理论较精确地求得^[11-13],同时 Ga 和 As 的正常散射因数 f_{Ga}^0 和 f_{As}^0 也可从 X 射线结晶学国际表中查得,这些量都可作为常量处理,因此(2)和(3)式最终可表示为

$$P_h / P_0 = P_h / P_0 (f_{Ga}', f_{Ga}'', \omega, \Delta \theta), \quad (21)$$

$$P_d / P_0 = P_d / P_0 (f_{Ga}', f_{Ga}'', \omega, \Delta \theta). \quad (22)$$

另一方面,由于入射波有一定的发散度,其影响相当于在(21)和(22)式的基础上取了卷积,即

$$P_h' / P_0 (f_{Ga}', f_{Ga}'', \omega, \Delta \theta) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{P_h}{P_0} (f_{Ga}', f_{Ga}'', \omega, \Delta \theta - x) g(x) dx, \quad (23)$$

$$P_d' / P_0 (f_{Ga}', f_{Ga}'', \omega, \Delta \theta) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{P_d}{P_0} (f_{Ga}', f_{Ga}'', \omega, \Delta \theta - x) g(x) dx, \quad (24)$$

其中 $g(x)$ 为卷积的窗口函数,本文近似地取如下形式的 Gauss 函数:

$$g(x) = \frac{1}{\sigma \sqrt{\pi}} \exp(-x^2 / \sigma^2), \quad (25)$$

其中 σ 的大小是根据入射波的发散度来决定的.为了使理论计算和实验结果能在同一标度下进行比较,必须对衍射波和透射波的理论计算数据也进行规格化处理,其处理方法和上述的对实验数据规格化处理的方法相同.经过处理后,可把实验结果和理论计算结果以方程

$$I_d(\omega, \Delta \theta) = \frac{R(\omega_0)}{R(\omega)} \cdot \frac{1}{C_M} P_d' / P_0 (f_{Ga}', f_{Ga}'', \omega, \Delta \theta) \quad (26)$$

联系起来,其中 C_M 为 $P'_d/P_0(f'_{Ga}, f''_{Ga}, \omega_0, \Delta\theta)$ 中的最大值, $R(\omega)$ 为由 $R(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} P'_h/P_0(f'_{Ga}, f''_{Ga}, \omega, \Delta\theta)d(\Delta\theta)$ 从理论上算得的能量为 ω 的衍射波的积分反射强度. 由(26)式,借助计算机,通过调节 f'_{Ga} 和 f''_{Ga} ,找到了与图 2 所示的实验结果符合得很好的理论计算结果,如图 3 所示.由此求得 GaAs 晶体中 Ga 的反常散射因数 f'_{Ga} 和 f''_{Ga} ,其结果如图 4 中的实线所示,虚线是由 CL 理论给出的.

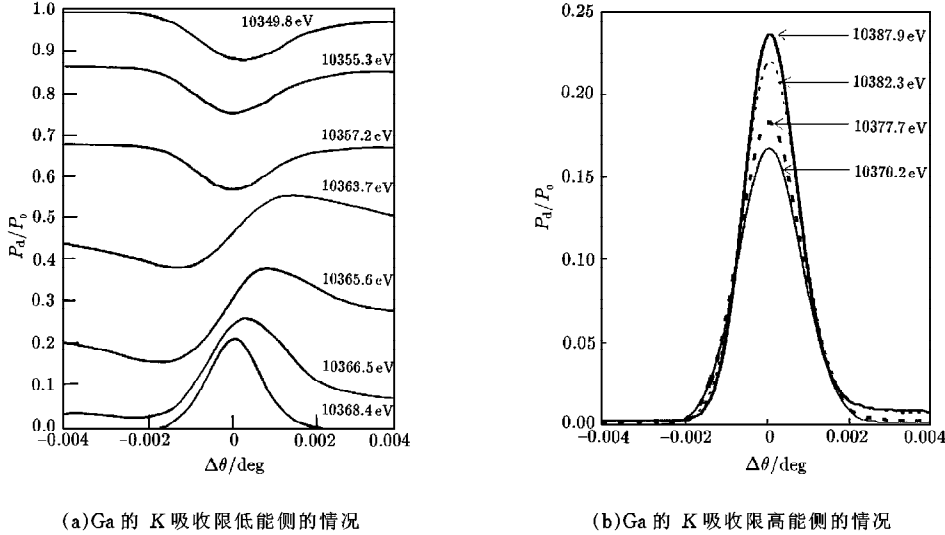


图 3 GaAs(200)对称 Laue 情况的规格化后透射波摇摆曲线的计算结果

4 结果与讨论

如图 4 所示, f'_{Ga} 在偏离 Ga 的 K 吸收限约 13 eV 以上的高能侧和低能侧,本文给出的结果和 CL 的理论结果趋于一致,而在吸收限附近的高能侧前者呈现出明显的 XANES 现象,与后者之间存在着较大的差别.这与文献[2—4, 8, 14]等的结果一致,其原因是 CL 理论基于自由原子模型,而本文被测的 Ga 原子处于 GaAs 晶体中.另一方面, f'_{Ga} 在吸收限高能侧本文的结果几乎和 CL 的结果一致,但在低能侧本文的结果则明显地比 CL 的结果小 0.5 左右.

本文给出的方法虽既适用于低能侧也适用于高能侧,但在高能侧由于透射波的摇摆曲线随能量的变化没有低能侧显著,致使所得结果比低能侧的精度差些.但我们通过计算机模拟发现,如能

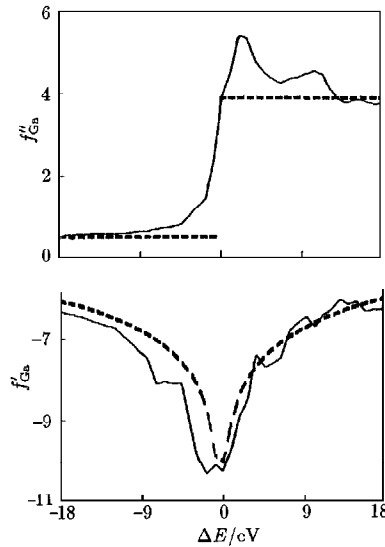


图 4 Ga 在其 K 吸收限附近的反常散射因数 (取 Ga 的 K 吸收限为能量的零点) 实线为本文所得结果;虚线为 CL 理论所给出的结果

制得更薄的晶体,则即使采用和本文一样的实验光学系统,也可使高能侧透射波的摇摆曲线随能量变化显著.因此,可通过制作更薄的晶体样品,来提高高能侧反常散射因数的测定精度.

- [1] T. Sakamaki *et al.*, *Acta Cryst.*, **A36**(1980), 183.
- [2] 细谷资明,日本结晶学会志, **19**(1977), 68.
- [3] T. Fukamachi and S. Hosoya, *Acta Cryst.*, **A31**(1975), 215.
- [4] 赵宗彦等,物理学报, **40**(1991), 1460.
- [5] 加藤范夫、竹田武弘,日本结晶学会志, **19**(1977), 95.
- [6] T. Fukamachi *et al.*, *Acta Cryst.*, **A46**(1990), 945.
- [7] T. Takama, M. Iwasaki and S. Sato, *Acta Cryst.*, **A36**(1980), 1025.
- [8] T. Fukamachi *et al.*, *Acta Cryst.*, **A33**(1977), 54.
- [9] N. Kato, *Acta Cryst.*, **A48**(1992), 829.
- [10] T. Fukamachi and T. Kawamura, *Acta Cryst.*, **A49**(1993), 384.
- [11] D. T. Cromer and D. Liberman, *J. Chem. Phys.*, **53**(1970), 1891.
- [12] S. Sasaki, KEK Report 88-14 M/D(1989).
- [13] T. Saka and N. Kato, *Acta Cryst.*, **A43**(1987), 252.
- [14] Zhao Zongyan *et al.*, *J. Phys.: Condens. Matter*, **6**(1994), 1619.

DETERMINATION OF ANOMALOUS SCATTERING FACTOR FOR Ga BY USING ROCKING CURVES OF TRANSMITTED BEAM IN GaAs

ZHOU SHENG-MING ZHAO ZONG-YAN HAN JIA-HUA HU YU-GEN

(*Department of Physics, Anhui University, Hefei 230039*)

TOMOE FUKAMACHI RIICHIROU NEGISHI MASAMI YOSHIZAWA

(*Saitama Institute of Technology, Okabe, Saitama, Japan 369-02*)

TETSUO NAKAJIMA

(*Photon Factory, KEK, Oho, Tsukuba, Ibaraki, Japan 305*)

(Received 14 September 1995)

ABSTRACT

The diffracted and the transmitted rocking curves for GaAs(200) in the symmetric Laue case are observed near the Ga K-absorption edge by using the synchrotron radiation. The quantitative comparison between the measured transmitted rocking curves and the corresponding calculated ones based on the dynamical theory of X-ray diffraction has been carried out, and the anomalous scattering factors for Ga near the Ga K-absorption edge in GaAs have been determined.

PACC: 6110D; 6110F; 7870D