

原子吸收限附近 Bragg 情况的衍射波 和透射波的观测

周圣明 赵宗彦 戚泽明 徐章程

(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, 筑波, 大穗 305)

(1995 年 9 月 14 日收到)

在 Ga 的 K 吸收限附近的强反常散射条件下, 测定了 GaAs(600) 对称 Bragg 情况的衍射波和透射波的摇摆曲线, 并将其和 X 射线衍射动力学理论的相应计算结果作了比较, 指出了原子吸收限附近 Bragg 情况的透射波在研究反常散射中的应用价值.

PACC: 6110D; 6110F; 7870D

1 引 言

当利用同步辐射 X 光源作原子吸收限附近的 X 射线衍射动力学的理论和实验研究时, 鉴于其时反常散射显著, 原子反常散射因数的虚数部分变得突出, 致使原来将其作为小量处理的 X 射线衍射动力学理论需要拓宽和修正. 为此, Kato^[1], Fukamachi 等^[2]探讨了这个问题, 对以往的动力学公式进行了修正, 给出了无限厚晶体 Bragg 情况衍射波的动力学公式. 最近, 赵宗彦等^[3]又进一步导出了强反常散射条件下有限厚晶板 Bragg 情况的衍射波和透射波公式. 这些新的理论公式在反常散射显著的条件究竟是否正确及有没有新的应用前景, 是个需要探讨的问题. 本文就对称 Bragg 情况, 在 Ga 的 K 吸收限附近, 测定了 GaAs(600) 的衍射波和透射波, 并把实验结果和理论结果作了详细的比较和讨论, 指出了原子吸收限附近 Bragg 情况的透射波在研究反常散射中的应用价值.

2 理 论

当反常散射显著时, 有限厚晶板 Bragg 情况的衍射波强度 P_h 和透射波强度 P_d , 在二波近似下, 依文献[3]中所给公式, 可得

$$\frac{P_h}{P_0} = |\sin(sH\sqrt{B})|^2 / |\sqrt{B}\cos(sH\sqrt{B}) + (-g' + iW)\sin(sH\sqrt{B})|^2, \quad (1)$$

$$\frac{P_d}{P_0} = \exp(-\mu H') / |\sqrt{B}|^2 / |\sqrt{B} \cos(sH \sqrt{B}) + (-g' + iW) \sin(sH \sqrt{B})|^2, \quad (2)$$

其中 P_0 为入射波强度, μ 为线吸收系数, H 为晶体的厚度. 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), 依次记为 χ_h 、 χ_{hi} 和 χ_{hr} . W , s , g' , H' 和 B 分别为

$$W = (-X_0 \sin 2\theta) / (|\cos \theta_1 \cos \theta_2|^{1/2} \kappa_{0r} |\chi_h|), \quad (3)$$

$$s = \pi \kappa_{0r} |\chi_h| (\cos \theta_1 \cos \theta_2)^{-1/2}, \quad (4)$$

$$g' = \chi_{0i} \sin \theta \cos \beta / (|\chi_h| \sqrt{\cos \theta_1 \cos \theta_2}), \quad (5)$$

$$H' = (\cos \theta_1 + \cos \theta_2) H / (2 \cos \theta_1 \cos \theta_2), \quad (6)$$

$$B = (W + i g')^2 - \chi_h \chi_{-h} / |\chi_h|^2, \quad (7)$$

式中 θ 是 Bragg 角, κ_{0r} 是入射波在晶体内波矢的实部. X_0 , θ_1 , θ_2 和 β 等参量的物理意义可参见文献[4].

对于 GaAs 的(600)面, 其结构因数的实部 F_{hr} 和虚部 F_{hi} 分别为 $F_{hr} = 4(f_{Ga}^0 + f_{As}^0) - 4(f_{As}^0 + f_{As}')$ 和 $F_{hi} = 4(f_{Ga}' - f_{As}')$, 它们是能量 ω 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(简记为 CL)的理论比较准确地算出^[5-7]. 对于 Ga, 由于有强烈的反常散射存在, 因此 GaAs 中 Ga 的反常散射因数 f_{Ga}' 和 f_{Ga}'' 须另法求出, 本文是通过测定线吸收系数和利用积分关系来求得它们的^[8]. 另外, Ga 和 As 的正常散射因数 f_{Ga}^0 和 f_{As}^0 可从 X 射线结晶学国际表中查得. 这样, 便可利用(1)和(2)式从理论上算出 GaAs(600)对称 Bragg 情况的摇摆曲线, 其结果如图 1(a), (b), (c)所示, 它们分别是在能量 10350, 10360 和 10366 eV 处算得的. 图中横坐标表示偏离精确 Bragg 条件的角度大小, 纵坐标表示衍射和透射的强度(取任意单位), 实线代表透射波的摇摆曲线, 虚线代表衍射波的摇摆曲线. Bragg 情况下的透射波强度是极其微弱的, 在这里为了便于说明, 我们将透射波强度放大了. 由图 1 可见, 随着能量的增加, 透射波摇摆曲线的形状发生显著的变化, 这些特征, 在我们的实验测试中得到了证实.

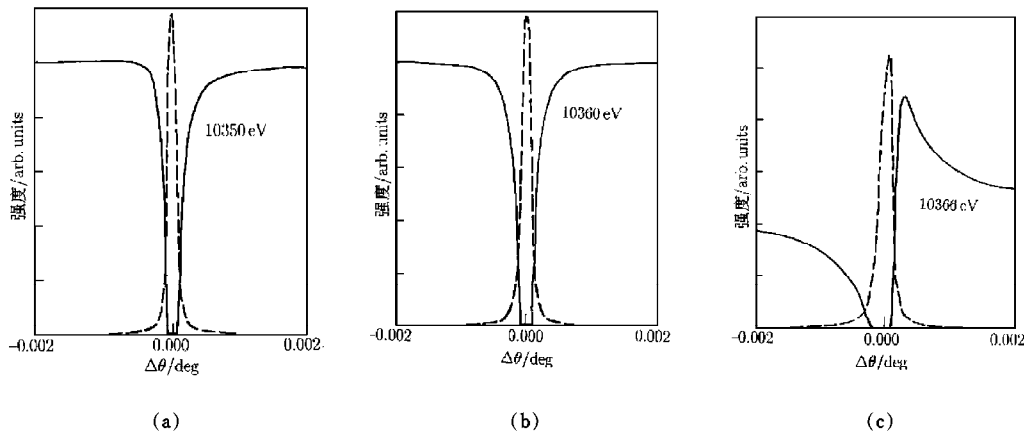


图 1 GaAs(600)对称 Bragg 情况衍射波和透射波摇摆曲线的计算结果 (a)能量等于 10350 eV 时的情况, (b)能量等于 10360 eV 时的情况, (c)能量等于 10366 eV 时的情况

3 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 站完成的. 实验装置如图 2 所示. 同步辐射光通过狭缝 S1, 经 Si(333) 单色化, 再经过狭缝 S2, 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(600) 的 Bragg 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. 实验结果如图 3(a), (b), (c) 所示, 它们分别是在能量 10350.0, 10360.0 和 10367.5 eV 处测得的. 横坐标表示偏离精确 Bragg 条件的角度大小, 纵坐标是检测器检测到的光子数. 虚线代表衍射波, 其强度由左侧的纵坐标表示; 实线代表透射波, 其强度由右侧的纵坐标表示. 在这里我们看到, 实测的透射波和衍射波的摇摆曲线与理论预测的结果在变化趋势上是一致的.

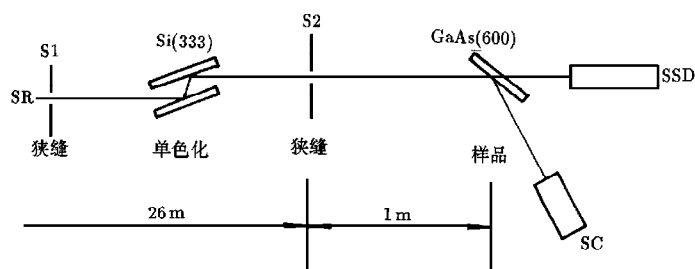


图 2 实验装置示意图

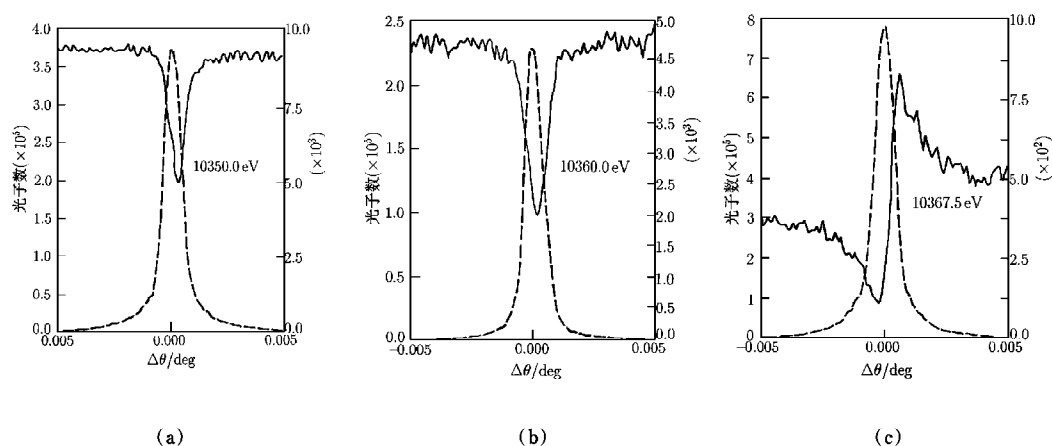


图 3 GaAs(600) 对称 Bragg 情况衍射波和透射波的摇摆曲线测定结果 (a) 能量等于 10350.0 eV 时的情况, (b) 能量等于 10360.0 eV 时的情况, (c) 能量等于 10367.5 eV 时的情况

4 讨 论

在图 1 的理论结果中, 10360 eV 的透射波摇摆曲线关于 Bragg 角位置几乎左右对称,

但 10350 eV 的透射波在低角度一侧的强度稍稍大于高角度一侧,而对于 10366 eV 的透射波则相反.这种理论预言的透射波摇摆曲线非对称性随能量的变化倾向在图 3 的实验结果中完全得到了证实.发生这种非对称性变化的原因可解释如下:对于 GaAs 的(600)面,由式 $\delta = \arg(\chi_{hi}/\chi_{hr})$ 计算可知,相因子 δ 是能量的函数,并且实际上只取两个值,即 0 和 π .当在 Ga 的 K 吸收限附近的某能量点, δ 发生大小为 π 的跃变时,透射波的摇摆曲线的形状也因此而发生变化.当能量小于这个跃变点的能量时,透射波的摇摆曲线低角度一侧的强度大于同曲线高角度一侧的强度;当能量大于跃变点的能量时则相反;而当能量等于跃变点能量时,透射波的摇摆曲线才表现出左右对称.在 Ga 的 K 吸收限附近的能量区域,上述的跃变点只有一个,理论计算表明这个跃变点在 10360 eV 附近(见图 1(b)),这与实验结果(见图 3(b))是一致的.

在 Ga 的 K 吸收限的低能侧,由于 f''_{Ga} 比较小,吸收的影响也比较小,因此 10350 和 10360 eV 的摇摆曲线,无论是算得的还是测得的,在 Bragg 角度处透射波摇摆曲线上都出现了一个谷.这是由于相应的衍射波在 Bragg 角度处发生了较强的衍射,夺去了一部分能量的缘故.但是,随着能量的增加光电吸收增强,在原来出现谷的位置附近,出现了向峰过渡的倾向,如图 1(c)或 3(c)所示.这种从谷向峰过渡的能量区间,实验结果为 10365.0—10367.5 eV,宽度大约是 2.5 eV.透射波摇摆曲线的这种从谷向峰过渡的形状特征以及这种过渡的能量区间的宽度,作为实验事实是非常重要的.当我们用 CL 理论所给出的 f'_{Ga} 和 f''_{Ga} ,通过(2)式去计算透射波的摇摆曲线时,见不到上述从谷向峰过渡的摇摆曲线形状的变化特征,这是由于 CL 理论所给出的 f''_{Ga} 值在 Ga 的 K 吸收限处直接从 0.490 跃迁到 3.892 的缘故.根据对称 Bragg 情况透射波摇摆曲线的测定结果, f''_{Ga} 从 Ga 的 K 吸收限低能侧向高能侧的过渡不是跃变而是一个连续的渐变过程,并且这个渐变区间的宽度大约有 2.5 eV.(2)式的计算表明,在 Ga 的 K 吸收限附近, f''_{Ga} 的微小变化也能极其灵敏地在 Bragg 情况的透射波摇摆曲线的形状和强度上表现出来.因此,摇摆曲线的实验测定和理论计算,对研究原子吸收限附近的反常散射是有益的.在 Ga 的 K 吸收限高能侧,通过(2)式算得的透射波的摇摆曲线,在 Bragg 角位置处出现了一个尖锐的峰,但实验只能测到 10367.5 eV,当能量再大时,由于 Ga 的反常散射非常显著,强烈的光电吸收使透射波的强度弱到无法测定的程度.

衍射波的半高宽度,理论结果是 $1''$ 左右,如图 1 所示,而测得结果大约在 $4''$,如图 3 所示.理论结果与实测结果的不符,并不能说明理论本身有问题.(1)式和(2)式的成立条件是入射波为理想平面波,而照射到样品上的入射波有一定的发散角,它的影响相当于对理论公式(1)和(2)作了卷积,因此如果对(1)式和(2)式取卷积,就可以使摇摆曲线的半高宽度的理论结果和实验结果一致.另外,如令晶板的厚度趋于无穷大,(1)式在反常散射微弱的情况下给出了和传统 Bragg 衍射强度公式一致的结果.

Bragg 情况的透射波,因其强度极其微弱,实验测定非常困难,所以其理论和实验研究一向不被重视.如今,同步辐射光源的出现,使 Bragg 情况的透射波的精确测定成为可能,因此与其相关的理论研究也就有了必要性.通过以上的讨论我们看到,一方面(1)式和(2)式给出的理论结果在实验上得到了证实;另一方面 Bragg 情况透射波的摇摆曲线的形状和强度对研究原子吸收限附近的反常散射是有价值的.

- [1] N. Kato, *Acta Cryst.*, **A48**(1992), 829.
- [2] T. Fukamachi and T. Kawamura, *Acta Cryst.*, **A49**(1993), 348.
- [3] 赵宗彦、樊晓泉、韩家骅、周圣明、深町共荣、根岸利一郎、吉沢正美, *物理学报*, **44**(1995), 734.
- [4] 三宅静雄, *X 线の回折*, (朝仓书店, 1988), 第 136 页.
- [5] D. T. Cromer and D. A. Liberman, *J. Chem. Phys.*, **53**(1970), 1891.
- [6] S. Sasaki, KEK Report, 88-14 M/D(1989).
- [7] T. Saka and N. Kato, *Acta Cryst.*, **A43**(1987), 252.
- [8] T. Fukamachi, S. Hosoya, T. Kawamura *et al.*, *Acta Cryst.*, **A33**(1977), 54.

THE OBSERVATIONS OF DIFFRACTED AND TRANSMITTED ROCKING CURVES IN BRAGG CASE NEAR ABSORPTION EDGE

ZHOU SHENG-MING ZHAO ZONG-YAN QI ZE-MING XU ZHANG-CHENG

(*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 transmitted rocking curves for GaAs(600) in the symmetric Bragg case have been measured under the condition of extremely anomalous scattering near the Ga K-absorption edge, and then compared with the corresponding results calculated in the dynamic theory of X-ray diffraction. We have thereof pointed out that the transmitted rocking curves near the atomic absorption edge in Bragg case are useful in the study of anomalous scattering.

PACC: 6110D; 6110F; 7870D