

吸收限附近非对称反射条件下 X 射线的异常透射

徐章程^{1)†} 郭常霖¹⁾ 赵宗彦²⁾ 深町共荣³⁾ 根岸利一郎³⁾

1) (中国科学院上海硅酸盐研究所, 上海 200050)

2) (安徽大学物理系, 合肥 230039)

3) (日本埼玉工业大学电子工学科, 埼玉, 冈部 369-02)

(1997 年 12 月 29 日收到; 1998 年 6 月 1 日收到修改稿)

研究了原子吸收限附近非对称布拉格条件下完整平板晶体的 X 射线异常透射. 当衍射主要由原子散射因子的虚部引起时, 在严格的布拉格角处, 晶体内部驻波的波节位于衍射原子上, 从而导致异常透射的发生. 透射波主要来源于晶体内部坡印廷矢量指向晶体下表面 (入射面为上表面) 的波场. 该波场的有效吸收系数随非对称因子 α 的增大而减小, 所以整个晶体的透射系数随 α 的增大而增大. 当原子散射因子的实虚部对衍射的贡献之比一定时, 晶体内部坡印廷矢量偏离色散面实部法向的程度随反射的非对称程度的增大而增大.

PACC: 6110D

1 引 言

根据是否考虑晶体内的多重散射效应, X 射线衍射理论^[1-5]分为动力学理论和运动学理论. Borrmann 效应和 Pendellösung 条纹的实验观测, 证明了动力学理论的正确性.

利用同步辐射光源产生的能量可调、高强度 X 射线, 在晶体的某组成原子的某吸收限附近, 可以使 $|F_{hr}| < |F_{hi}|$. 这里 F_{hr} 和 F_{hi} 分别为原子散射因子实部和虚部对结构因子 F_h 的贡献 (h 为密勒指数 $[hkl]$ 的缩写). 1992 年 Kato 研究了 $|F_{hr}| \ll |F_{hi}|$ 时半无限厚完整晶体在布拉格情况下的衍射特征^[6]. 1993 年 Fukamachi 和 Kawamura 又研究了 $|F_{hr}| \ll |F_{hi}|$ 时完整晶体在劳厄情况下的衍射特征, 并且在实验上实现了 $|F_{hr}| \ll |F_{hi}|$ ^[7,8]. 1995 年徐章程等人给出了有限厚平板晶体在布拉格情况下的衍射通式, 该通式即使在 $F_{hr} = 0$ 时也适用^[9]. 他们在理论上发现, 当 $|F_{hr}| \ll |F_{hi}|$ 时, 在严格的布拉格角处有异常透射发生, 而且透射系数随非对称因子 $\alpha = \sin(\theta + \beta) / \sin(\theta - \beta)$ 的增大而增大. 这里 θ 和 β 分别为布拉格角和衍射格子面与晶体表面之间的夹角. 该异常透射效应会导致负消光现象, 即完整晶体的积分反射强度比相应的镶嵌晶体的大^[10]. Moran 等人于 1992 年实验观测到了 CdTe(222) 的负消光现象^[11]. 最近, 徐章程等人又发现当 $|F_{hr}|$ 可以与 $|F_{hi}|$ 相比较时, 在对称反射条件下与色散面上某一结点相对应的能流并不总是与色散面的实部相垂

† 中国高等科学技术中心联协成员.

直^[12-14].该结论是对著名的 Kato-Ewald 定理^[5]的推广,也是完整晶体的共振 X 射线动力学衍射的特征之一.

本文将研究原子吸收限附近布拉格情况下 X 射线的异常透射及其随非对称反射条件变化的物理原因,以及非对称反射条件下色散面与晶体内坡印廷矢量的关系.本文所使用的参数与文献[9]相同.

2 非对称布拉格情况下 X 射线异常透射

2.1 透射波的摇摆曲线

利用文献[9](45)式,计算了 $|F_{hr}| \ll |F_{hi}|$ 时有限厚晶体在布拉格情况下透射波的摇摆曲线随非对称因子 a 的变化,如图 1 所示.从图 1 可看出,各曲线在 $W=0$ 附近为一峰,发生异常透射.随 a 的增大,异常透射越来越显著.异常透射的原因是晶体内部的驻波的波节正好位于原子面上,波场与原子之间的相互作用最小^[3,15].

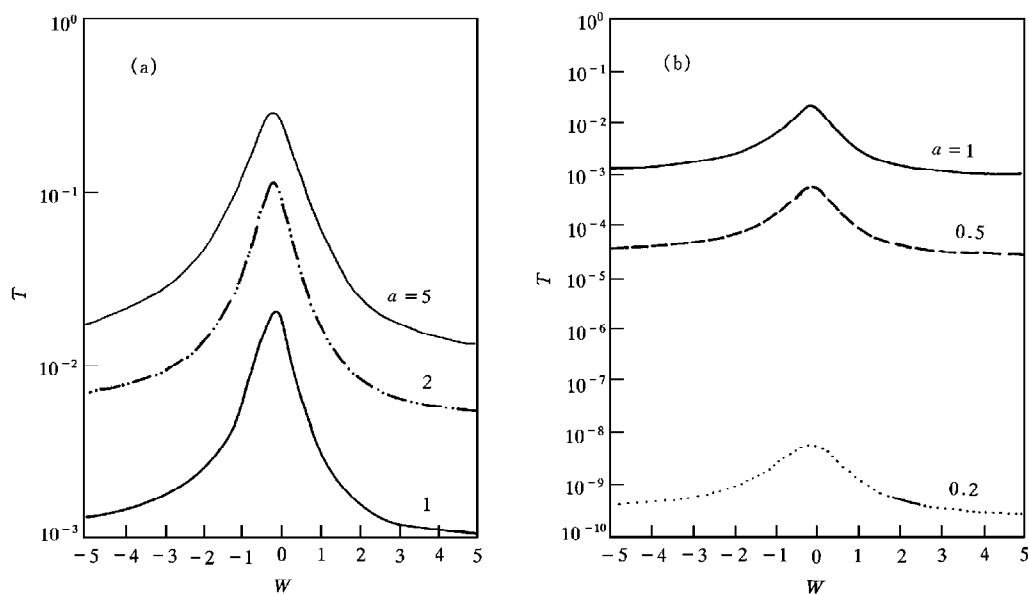


图 1 $|F_{hr}| \ll |F_{hi}|$ 时布拉格情况下透射波的摇摆曲线

2.2 晶体内部波场的相对大小

我们称晶体内部坡印廷矢量指向入射面(上表面)的波场为波场 1,其有效吸收系数为负,坡印廷矢量指向下表面的波场为波场 2,其有效吸收系数为正.根据文献[9](25)和(26)式,在晶体的下表面两支折射波的强度比为

$$I_1/I_2 = |r_2/r_1|^2. \quad (1)$$

利用(1)式和文献[9](19)和(20)式,计算了 $|F_{hr}| \ll |F_{hi}|$ 时 I_1/I_2 在反射区域内的变化,

如图 2 所示. 从图 2 可看出 I_1/I_2 小于 1, 且随 a 偏离 1 越远, I_1/I_2 越小, 所以在布拉格情况下波场 2 起主要作用. 值得注意的是, 非对称因子取 a 和 $1/a$ 时, I_1/I_2 完全相同.

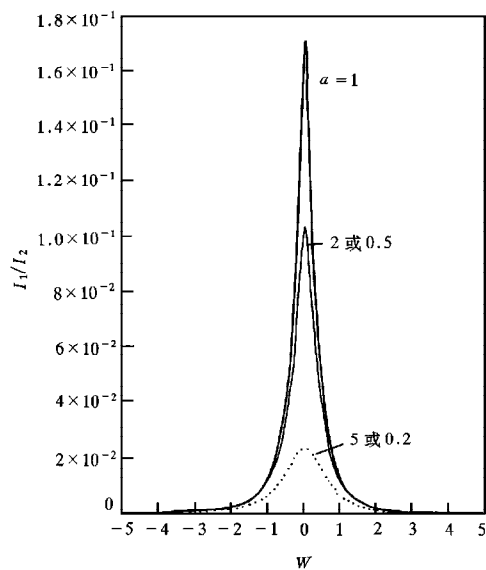


图 2 晶体下表面两支折射波的强度比

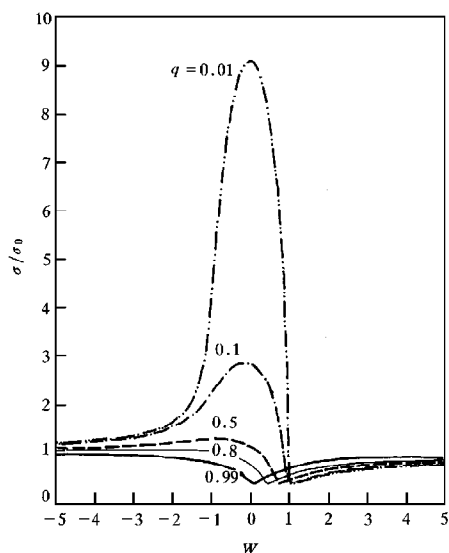


图 3 $\alpha = 1$ 时波场 2 的有效吸收系数 σ 随 q 的变化

$$\sigma_0 = -2\pi g\kappa_{0r} |\bar{\chi}_k| / \sin \theta$$

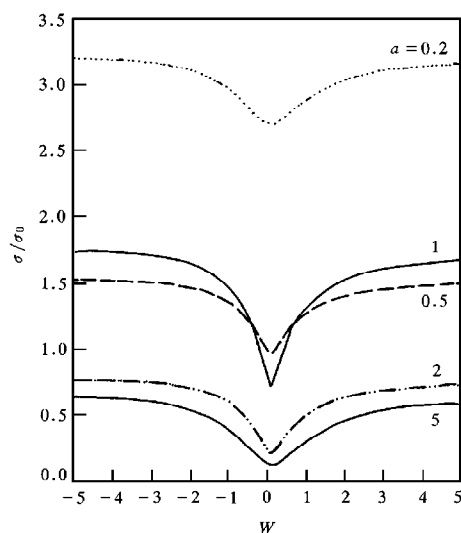


图 4 $q = 0.99$ 时波场 2 的有效吸收系数 σ 随 a 的变化

$$\sigma_0 = -2\pi g\kappa_{0r} |\bar{\chi}_k| / \sin \theta$$

2.3 能流向下的波场有效吸收系数

如上所述, 布拉格情况下晶体内部能流向下的波场 2 起主要作用. 根据文献[9](15)

式,波场 2 的有效吸收系数 σ 可表示为

$$\sigma = \frac{2\pi\kappa_{0r}|\bar{\chi}_h|}{|\cos\theta_1\cos\theta_2|^{1/2}} \left\{ g \frac{\cos\theta\sin\beta}{|\cos\theta_1\cos\theta_2|^{1/2}} + \text{Im} \sqrt{B}, \right\}, \quad (2)$$

式中

$$\text{Im} \sqrt{B} = [((W^2 - g'^2 - 1 + b^2)^2 + 4(g'W - p\cos\delta)^2)^{1/2} - (W^2 - g'^2 - 1 + b^2)]^{1/2}. \quad (3)$$

根据(2)和(3)式,在对称反射条件下($a=1$)计算了 σ 在反射区内随因子 q 的变化,如图 3 所示.当 $q=0.01$ 时,在所谓的“全反射”区内,可以看到两种效应的叠加:光电吸收和动力学消光.当 $q=0.99$ 时,在整个反射区内几乎都有异常透射发生.另外,还计算了 $q=0.99$ 时, σ 在反射区内随 a 的变化,如图 4 所示.可以看出,随 a 的增大, σ 逐渐减小.

3 色散面与坡印廷矢量

3.1 复色散面实部的法线方向

图 5 为非对称劳厄情况下的色散面示意图,其中 θ 为布拉格角, β 为衍射格子面与晶体表面之间的夹角. θ_1 和 θ_2 分别为

$$\theta_1 = \frac{\pi}{2} - \theta - \beta, \quad (4a)$$

$$\theta_2 = \frac{\pi}{2} + \theta - \beta. \quad (4b)$$

劳厄情况下 $\theta_2 < \frac{\pi}{2}$; 布拉格情况下 $\theta_2 > \frac{\pi}{2}$. 图 5 中其余各符号以及下面文字中其他符号的物理意义参阅文献[9]. 由文献[9](23)式,可得到在直角坐标系(X, Y)中的色散面方程为

$$X^2 \sin\theta_1 \sin\theta_2 + Y^2 \cos\theta_1 \cos\theta_2 + XY \sin 2\beta - 2i\kappa_{0i} \cos\theta (X \cos\beta + Y \sin\beta) - \kappa_{0i}^2 = \frac{\kappa_{0r}^2}{4} \chi_h \bar{\chi}_h, \quad (5)$$

式中 X 为一实数, Y 为一复数. 如果令

$$Y = Y_1 + iY_2, Y_1, Y_2 \in R, \quad (6)$$

$$\text{则 } dY = dY_1 + idY_2. \quad (7)$$

色散面的实部上(X, Y)点处的法线与 X 轴的夹角 σ_1 可表示为

$$\sigma = \frac{\pi}{2} - \arctan \left(\left| \frac{dY_1}{dX} \right| \right). \quad (8)$$

如果令 $X' = \frac{X}{\kappa_{0r}|\bar{\chi}_h|}$, $Y' = \frac{Y}{\kappa_{0r}|\bar{\chi}_h|}$, $Y'_1 = \frac{Y_1}{\kappa_{0r}|\bar{\chi}_h|}$ 和 $Y'_2 = \frac{Y_2}{\kappa_{0r}|\bar{\chi}_h|}$, 那么

$$\frac{dY_1}{dX} = \frac{dY'_1}{dX'} = -\frac{U'}{V'}, \quad (9a)$$

$$U' = (2X' \sin\theta_1 \sin\theta_2 + Y'_1 \sin 2\beta)(2Y'_1 \cos\theta_1 \cos\theta_2 + X' \sin 2\beta) + (2Y'_2 \cos\theta_1 \cos\theta_2 - g \cos\theta \cos\beta)(Y'_2 \sin 2\beta - g \cos\theta \cos\beta), \quad (9b)$$

$$B = -2Xg' \frac{\sin 2\theta}{|\cos \theta_1 \cos \theta_2|^{1/2}} + 2p \cos \delta. \quad (10g)$$

在布拉格情况下

$$Y'_1 = -\frac{1}{2|\cos \theta_1 \cos \theta_2|^{1/2}} \left[-X' \frac{\sin 2\beta}{|\cos \theta_1 \cos \theta_2|^{1/2}} \pm \operatorname{Re} \sqrt{B} \right], \quad (11a)$$

$$Y'_2 = -\frac{1}{2|\cos \theta_1 \cos \theta_2|^{1/2}} \left[g \frac{\cos \theta \sin \beta}{|\cos \theta_1 \cos \theta_2|^{1/2}} \pm \operatorname{Im} \sqrt{B} \right], \quad (11b)$$

$$\operatorname{Re} \sqrt{B} = \pm \left[\frac{1}{2}(C + B_1) \right]^{1/2}, \quad (11c)$$

$$\operatorname{Im} \sqrt{B} = \pm \left[\frac{1}{2}(-C + B_1) \right]^{1/2}, \quad (11d)$$

$$B_1 = (C^2 + D^2)^{1/2}, \quad (11e)$$

$$C = \left(X' \frac{\sin 2\theta}{|\cos \theta_1 \cos \theta_2|^{1/2}} \right)^2 - g'^2 - 1 + b^2, \quad (11f)$$

$$D = -2Xg' \frac{\sin 2\theta}{|\cos \theta_1 \cos \theta_2|^{1/2}} - 2p \cos \delta. \quad (11g)$$

(10a), (10b), (11a)和(11b)式中的 $\pm$ 号分别与色散面上的两个传播点相对应.(5)式中的 X 表示偏离严格布拉格角的程度.(10c)和(11c)式中当且仅当 $A < 0$ ($C < 0$)和 $B < 0$ ($D < 0$)时取负号;(10d)和(11d)式中当且仅当 $A > 0$ ($C > 0$)和 $B < 0$ ($D < 0$)时取负号.

3.2 坡印廷矢量的方向

晶体内部与色散面上某一传播点(X, Y)相应的平均坡印廷矢量可写成

$$\langle \mathbf{S} \rangle = \frac{c}{8\pi} \sum_h \mathbf{s}_h |\mathbf{D}_h|^2, \quad (12a)$$

$$\text{式中} \quad \mathbf{s}_h = \mathbf{k}_h / |\mathbf{k}_h|. \quad (12b)$$

$\langle \mathbf{S} \rangle$ 与 X 轴的夹角 σ_2 可表示为

$$\sigma_2 = \arctan \left(\left| \frac{S_y}{S_x} \right| \right), \quad (13a)$$

式中

$$\frac{S_y}{S_x} = \frac{\sin \theta_1 + |D_h/D_0|^2 \sin \theta_2}{\cos \theta_1 + |D_h/D_0|^2 \cos \theta_2}. \quad (13b)$$

根据文献[9](10)和(19)式, D_h/D_0 可表示为

$$D_h/D_0 = \frac{|\bar{\chi}_h|}{\chi_h} [2(X' \sin \theta_1 + Y'_1 \cos \theta_1) + i(2Y'_2 \cos \theta_1 - g)]. \quad (14)$$

3.3 非对称反射条件色散面与坡印廷矢量的关系

定义因子 $F = \frac{|\sigma_1 - \sigma_2|}{\sigma_1}$ 表示坡印廷矢量偏离色散面实部法向的程度.利用(8)和(10)

式,即可计算 F 因子随非对称反射条件的变化.

1) 劳厄情况 $\left(\frac{\pi}{2} - \theta < \beta < \frac{\pi}{2} + \theta\right)$

不失一般性,取 $\theta = \frac{\pi}{6}$, 反射的非对称程度相同时 (取 $\beta = \frac{8\pi}{15}$) 就几种不同的吸收情形在布拉格角附近计算了 F 值,如图 6 所示.从图 6 可看出,在没有吸收时 ($q=0, g=0$),坡印廷矢量仍然与色散面垂直.随原子散射因子虚部对衍射的贡献比例的增大 (q 增大),坡印廷矢量偏离色散面实部法向的程度也逐渐增大,变化趋势与对称反射条件下的相似^[9].对于给定的 q ,例如 $q=0.1$,在不同的非对称反射条件下计算了 F 值,如图 7 所示.从图 7 可看出,反射的非对称程度越大,坡印廷矢量偏离色散面实部法向的程度越大.

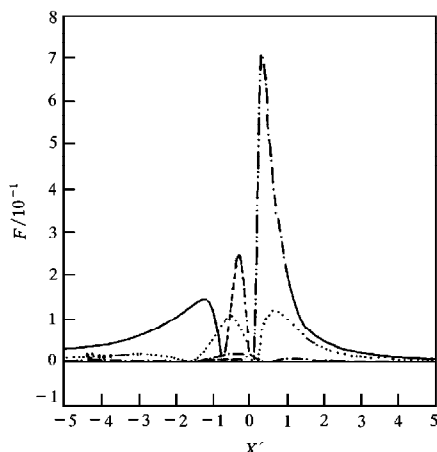


图 6 劳厄情况下, $\beta = \frac{8\pi}{15}$ 时 F 随 q 的变化 —: $q=0, g=0$; ---: $q=0, g=-0.1$; -·-·: $q=0.1$; ···: $q=0.5$; ———: $q=0.99$

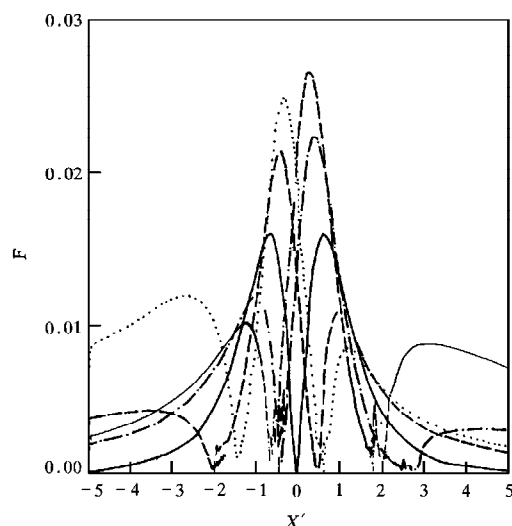


图 7 劳厄情况下, $q=0.1$ 时 F 随 β 的变化 —: $\beta = \frac{\pi}{2}$; ---: $\beta = \frac{8\pi}{15}$; -·-·: $\beta = \frac{7\pi}{15}$; ···: $\beta = \frac{5\pi}{9}$; ———: $\beta = \frac{4\pi}{9}$

2) 布拉格情况 $(-\theta < \beta < \theta)$

非对称程度相同时 (取 $\beta = \frac{\pi}{30}$) 就几种不同的吸收情形在布拉格角附近计算了 F 值,如图 8 所示.从图 8 可看出,在没有吸收时 ($q=0, g=0$),在所谓的“全反射”区内,坡印廷矢量仍然与色散面平行;在“全反射”区外,坡印廷矢量仍然与色散面垂直.随原子散射因子虚部对衍射的贡献比例的增大 (q 增大),在“全反射”区内坡印廷矢量偏离色散面实部法向的程度逐渐减小;在“反全反射”区外偏离程度逐渐增大.这也与对称反射条件下的结论相似.对于给定的 q ,例如 $q=0.1$,在不同的非对称反射条件下计算了 F 值,如图 9 所示.从图 9 可看出,在“全反射”区内偏离程度与反射的非对称程度关系不大;而在低角度区内偏离程度随 β 的增大而增大,在高角度区内随 β 的增大而减小.

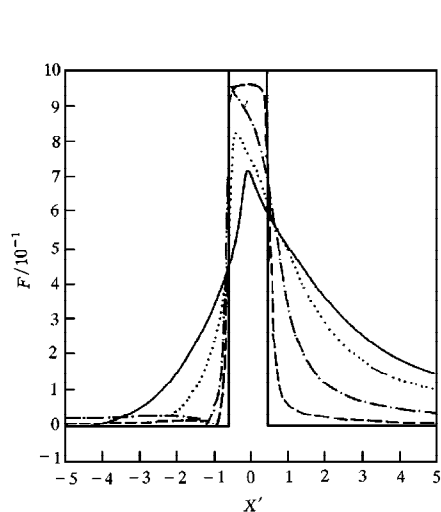


图 8 布拉格情况下, $\beta = \frac{8\pi}{15}$ 时 F 随 q 的变化 曲线
说明同图 6

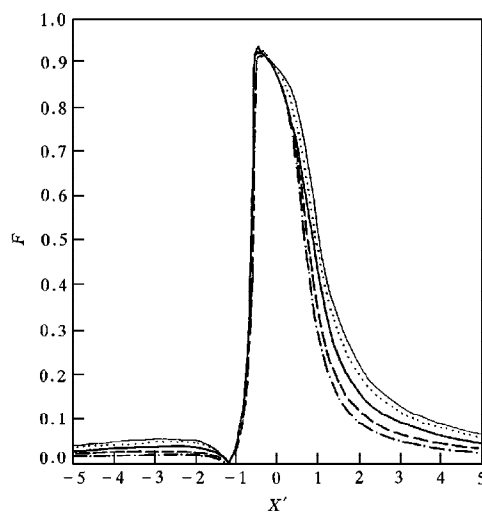


图 9 布拉格情况下, $q = 0.1$ 时 F 随 β 的变化
——: $\beta = 0$; ---: $\beta = \frac{\pi}{30}$; -·-·: $\beta = \frac{\pi}{18}$; ···: $\beta = \frac{\pi}{30}$; -·-·: $\beta = -\frac{\pi}{18}$; ···: $\beta = -\frac{\pi}{30}$

4 结 论

本文研究了原子吸收限附近布拉格情况下 X 射线的异常透射及其随非对称反射条件变化的物理原因.当衍射主要由原子散射因子的虚部引起时,在严格的布拉格角处,晶体内部驻波的波节位于原子面上,从而导致异常透射的发生.与劳厄情况不同的是,透射波主要来源于晶体内部坡印廷矢量指向晶体下表面的波场.该波场有效吸收系数随非对称因子 a 的增大而减小,所以透射系数随 a 的增大而增大.本文还给出了在非对称反射条件下计算色散面与晶体内坡印廷矢量关系的一般理论表达式.经理论计算表明,在反射的非对称程度相同时,色散面与晶体内坡印廷矢量的关系随原子散射因子的实虚部对衍射的贡献之比的变化与对称反射条件下的相似.当该比例给定时,晶体内坡印廷矢量偏离色散面实部法向的程度随反射的非对称程度的增大而增大.该结论是 Kato-Ewald 定理在非对称反射条件下的推广.

众所周知,用通常的 X 射线形貌术很难分辨尺寸在 $1 \mu\text{m}$ 以下的微缺陷,为此必须利用异常透射效应.Kishino 发现晶格缺陷对极端非对称布拉格情况下的异常透射波最敏感^[16].但 Kishino 是在极端非对称反射条件下进行的研究,实验观测较困难.在有同步辐射光源的今天,本文提出的吸收限附近的异常透射,只须在一般的非对称反射条件下就能实现,实验观测较容易,这对近完整晶体中微缺陷的观测非常有意义.该结论的实验观测将是下一步的工作.

- [1] W. H. Zachariasen, *Theory of X-Ray Diffraction in Crystals* (Wiley, New York, 1945).
- [2] R. W. James, *Solid State Physics* (Academic New York, 1963).
- [3] B. W. Batterman, H. Cole, *Rev. Mod. Phys.*, **36**(1964), 681.
- [4] N. Kato, *X-Ray Diffraction* (McGraw-Hill, New York, 1974).
- [5] Z. G. Pinsker, *Dynamical Scattering of X-Rays in Crystals* (Springer, Berlin, 1978).
- [6] N. Kato, *Acta Cryst.*, **A48**(1992), 829.
- [7] T. Fukamachi, R. Negishi, M. Yoshizawa *et al.*, *Acta Cryst.*, **A49**(1993), 573.
- [8] T. Fukamachi, T. Kawamura, *Acta Cryst.*, **A49**(1993), 384.
- [9] Z. C. Xu, Z. Y. Zhao, C. L. Guo *et al.*, *J. Phys. : Condens. Matter*, **7**(1995), 8089.
- [10] Z. C. Xu, C. L. Guo, Z. Y. Zhao, *Fizika*, **A3**(1997), 103.
- [11] P. D. Moran, R. J. Matyi, *J. Appl. Cryst.*, **25**(1992), 358.
- [12] Z. C. Xu, Z. Y. Zhao, C. L. Guo, *J. Phys. : Condens. Matter*, **8**(1996), 5977.
- [13] Z. C. Xu, C. L. Guo, Z. Y. Zhao *et al.*, *J. Phys. : Condens. Matter*, **9**(1997), L275.
- [14] Z. C. Xu, C. L. Guo, Z. Y. Zhao *et al.*, *Acta Physica Sinica*, **46**(1997), 2188 (in Chinese).
- [15] A. Authier, *Acta Cryst.*, **A42**(1986), 414.
- [16] S. Kishino, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **13**(1974), 587.

ANOMALOUS TRANSMISSION OF X-RAYS UNDER ASYMMETRICAL REFLECTION CONDITION NEAR THE ABSORPTION EDGE

XU ZHANG-CHENG¹⁾ GUO CHANG-LIN¹⁾ ZHAO ZONG-YAN²⁾ T. FUKAMACHI³⁾ R. NEGISHI³⁾

1) (Shanghai Institute of Ceramics, Academia Sinica, Shanghai 200050)

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

3) (Department of Engineering, Saitama Institute of Technology, Okabe, Saitama 369 -02 Japan)

(Received 29 December 1997; revised manuscript received 1 June 1998)

ABSTRACT

Anomalous transmission of X-rays for plane-parallel perfect crystals under asymmetrical Bragg reflection condition near the atomic absorption edge is studied in detail. When diffraction is induced mainly by the imaginary part of atomic scattering factor, the nodes of the standing wave within the crystal lie on the atomic plane at the exact Bragg angle, which results in an anomalous transmission. The transmitted beam comes mainly from the wave-field with its Poynting vector Poynting toward the lower surface of the crystal (the entrance surface being the upper one). The effective absorption coefficient of this wave-field decreases with the asymmetrical factor a . Therefore, the transmitted coefficient of the whole crystal increases as a increases. For a given ratio between the contributions of the real and imaginary parts of atomic scattering factor to diffraction, the deviation of Poynting vector from the normal of the real part of the dispersion surface increases with the degree of asymmetrical reflection condition.

PACC: 6110D