Химия поверхности раздела металл—газ. М., 1981. С. 146. [15] Somorjai G. A., Farrell H. H.//Adv. Chem. Phys. 1971. 20. Р. 215—339. [16] Витовский Н. А. и др.//ФТП. 1979. 13, № 5. С. 925—932. [17] Вавилов В. С., Кив А. Е., Ниязова О. Р.//Механизмы образования и миграции дефектов в полупроводниках. М., 1981. С. 129.

Поступила в редакцию 27.11.85

ВЕСТН. МОСК. УН-ТА. СЕР. 3, ФИЗИКА. АСТРОНОМИЯ. 1987. Т. 28, № 2

УДК 548.732

ТЕОРИЯ ФОРМИРОВАНИЯ ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ СПЕКТРОВ КОГЕРЕНТНОГО КОМПТОНОВСКОГО РАССЕЯНИЯ

В. А. Бушуев, А. О. Айт

(кафедра физики твердого тела)

Когерентное комптоновское рассеяние (ККР) рентгеновских лучей в совершенных кристаллах характеризуется образованием когерентной, суперпозиции неупруго рассеянных волн с модами $|\mathbf{k}_0, \omega\rangle$ и $|\mathbf{k}_0+\mathbf{h}, \omega\rangle$, где \mathbf{k}_0 — волновой вектор, ω — частота КР, \mathbf{h} — вектор обратной решетки [1, 2]. В процессе ККР импульс отдачи \hbar передается всему кристаллу как целому, что приводит к значительному изменению энергетического спектра по сравнению с некогерентным КР. В результате динамического взаимодействия между пространственно-сопряженными модами КР на фоне широкого спектра КР формируются узкие линии, форма которых определяется видом парциальных сечений КР, а также структурой и степенью совершенства кристалла. Экспериментальное исследование дифракционных провалов при КР в несовершенных кристаллах проведено в работе [3]. Когерентное КР в условиях дифракции внешнего излучения наблюдалось в работе [4].

Настоящая работа посвящена дальнейшему развитию теории ККР, в частности, учтено влияние недиагональных сечений КР и аномального прохождения комптоновских квантов на спектральную интенсивность линий ККР в поглощающих кристаллах произвольной толщины. Проанализированы возможности ККР как метода исследования электронной структуры твердого тела.

Пусть внешнее излучение с волновым вектором k_1 , частотой ω_1 и поляризацией e_1 падает под углом φ_1 к нормали п на плоскопараллельный кристалл толщины *l*, выведенный из отражающего положения для внешнего излучения. Регистрация КР ведется в направлении ж. В силу граничных условий $k_0 = \varkappa + \varkappa en$, где $\varkappa = \omega/c$, $e \ll 1$ [2]. В работе рассматриваются две геометрии рассеяния — «на отражение» и «на прохождение». В первом случае кванты КР k_0 и $k_h = k_0 + h$ выходят из кристалла через ту же грань, на которую падает внешнее излучение, во втором — через противоположную грань. С учетом [2] для спектральной интенсивности КР можно получить

$$I(\omega, \vartheta) = \sum_{\alpha, \alpha'} \sum_{m} \left[\left(L_{\alpha m}^{(0)} L_{\alpha' m}^{(0)*} \sigma_{00}^{(m)} + L_{\alpha m}^{(h)} L_{\alpha' m}^{(h)*} \sigma_{hh}^{(m)} \right) V_{\alpha \alpha'}^{(m)} + \right]$$

+ 2 Re $(L_{\alpha m}^{(0)} L_{\alpha' m}^{(h)^{\star}} \sigma_{0h}^{(m)} V_{\alpha \alpha'}^{(m)})] I_1 n_0$,

(1)

где I₁ — интенсивность внешнего излучения, n₀ — плотность элементарных ячеек. Дифференциальные сечения КР имеют вид

$$\sigma_{gg'}^{(m)} = P_{gg'}^{(m)} \sum_{l} \sum_{\nu,\nu'} (n_{\nu} - n_{\nu'}) f_{\nu\nu'}^{(l)} (\mathbf{S}_{g}) f_{\nu\nu'}^{(l)*} (\mathbf{S}_{g'}) e^{-W_{g-g'}^{(l)}} e^{i(g-g')\mathbf{r}_{l}} \delta(\omega_{1} - \omega - \omega_{\nu\nu'}^{(l)}),$$

$$f_{\nu\nu'} (\mathbf{S}) = \langle \psi_{\nu} | \exp(i\mathbf{S}\mathbf{r}) | \psi_{\nu'} \rangle,$$
(2)

Здесь g, g'=0, h, r_i — координаты атомов в ячейке, $\exp(-W_g)$ — фактор, учитывающий тепловые и статические смещения атомов, n_v — функция распределения Ферми — Дирака, $S_g = k_1 - k_0 - g$, $P_{gg}^{(m)} = (\mathbf{e}_g^{(m)} \mathbf{e}_1) \times \times (\mathbf{e}_{g'}^{(m)} \mathbf{e}_1)$ — поляризационный множитель, $\mathbf{e}_g^{(m)}$ — орты поляризации, m = 1, 2 отвечают σ- и л-поляризациям квантов КР соответственно (в дальнейшем для простоты индекс *m* будем опускать).

Коэффициенты $L_{\alpha}^{(g)}$ в (1) определяют эффективность динамического взаимодействия комптоновского излучения с кристаллом:

$$L_{\alpha}^{(0)} = \frac{\pm y + \sqrt{1 + y^2}}{2\sqrt{1 + y^2}}, \ L_{\alpha}^{(h)} = \pm \frac{\sqrt{\chi_h/\chi_{\tilde{h}}}}{2\sqrt{b}\sqrt{1 + y^2}}, \tag{3}$$

где χ_h — фурье-компоненты рентгеновской поляризуемости, γ_0 и γ_h — косинусы углов между нормалью п и \varkappa , $\varkappa + h$ соответственно, $b = = \gamma_h/\gamma_0$ — коэффициент асимметрии отражения. Верхний и нижний: знаки в (3) относятся к точкам возбуждения $\alpha = 1$ и 2 на дисперсионной поверхности. Частотная өтстройка

$$y = -\frac{1}{\Delta \omega_B} \left[\Delta \omega + \omega_B \frac{\chi_0 (1-b)}{4 \sin^2 \vartheta} \right]$$

измеряется в единицах полуширины спектральной кривой дифракционного отражения $\Delta \omega_B = \omega_B C_m \sqrt{b} \sqrt{\chi_h \chi_h} / 2 \sin^2 \vartheta$ и характеризует степень отклонения частоты КР $\omega = \omega_B + \Delta \omega$ от брэгговской, которая при заданном угле ϑ между направлением наблюдения \varkappa и отражающими плоскостями задается соотношением $\omega_B(\vartheta) = ch/2 \sin \vartheta$; $C_1 = 1$, $C_2 = = |\cos 2\vartheta_B|$.

Эффективные объемы КР $V_{\alpha\alpha'}$ в (1) определяются коэффициентом поглощения внешнего пучка μ_1 и экстинкцией $\mu_{\alpha\alpha'}$ излучения на частоте КР. В геометрии «на отражение»

$$V_{\alpha\alpha'} = \frac{A}{\gamma_1} \frac{1 - \exp\left[-(\mu_{\alpha\alpha'} + \mu_1/\gamma_1)l\right]}{\mu_{\alpha\alpha'} + (\mu_1/\gamma_1)}.$$
 (4.1)

В геометрии «на прохождение»

$$V_{\alpha\alpha'} = \frac{A}{\gamma_1} \frac{\exp(-\mu_1 l/\gamma_1) - \exp(-\mu_{\alpha\alpha'} l)}{\mu_{\alpha\alpha'} - (\mu_1/\gamma_1)}, \qquad (4.2)$$

где A — сечение рентгеновского пучка, $\gamma_1 = \cos \varphi_1$. Экстинкционные коэффициенты ослабления, характеризующие внутриветвевое ($\alpha = \alpha'$) и межветвевое ($\alpha \neq \alpha'$) рассеяние, имеют вид

$$\mu_{\alpha\alpha} = \frac{\mu}{2} \left[\gamma_0^{-1} + \gamma_h^{-1} \pm \frac{(\gamma_0^{-1} - \gamma_h^{-1}) y_r + 2\delta C_m (\gamma_0 \gamma_h)^{-1/2}}{\sqrt{1 + y_r^2}} \right],$$
(5)

$$\mu_{12} = \mu_{21}^{*} = i L_{\text{ext}}^{-1} \sqrt{1 + y_r^2} + \frac{\mu}{2} (\gamma_0^{-1} + \gamma_h^{-1}), \qquad (6)$$

70

где μ — коэффициент поглощения на частоте КР, $L_{ext} = \sqrt{\gamma_0 \gamma_h} / \varkappa C_m \times |\chi_{hr}|$ — длина экстинкции для дифрагирующего комптоновского излучения, $\delta = \cos v_h |\chi_{hi}| / \chi_{0i}$, v_h — разность фаз действительной и мнимой частей χ_h , $y_r = \operatorname{Re} y$. Коэффициенты μ_{11} и μ_{22} (5) описывают соответственно аномально слабое (бормановское) и сильное поглощение. Экспоненты с мнимыми показателями (6) в (4) учитывают маятниковый эффект для комптоновского излучения.

Полученное выше общее соотношение (1) имеет простую физическую интерпретацию. Детектор, установленный под фиксированным углом к падающему на кристалл излучению, регистрирует как комптоновские фотоны, рассеянные в направлении k₀ с волновыми функциями $\xi_0 = \hat{M}_0 | \mathbf{k}_0 \rangle$, так и фотоны той же энергии, рассеянные в направлении \mathbf{k}_h с волновыми функциями $\xi_h = \hat{M}_h | \mathbf{k}_h \rangle$. Здесь \hat{M}_0 и \hat{M}_h – максвелловские операторы взаимодействия кристалла с квантами ko k_h соответственно. Из общего принципа суперпозиции следует, что регистрируемая интенсивность КР будет представлять собой сумму интенсивностей, которые наблюдались бы в экспериментах, поставленных для наблюдения КР в каждой моде $|\mathbf{k}_0\rangle$ и $|\mathbf{k}_h\rangle$ в отдельности, плюс дополнительный член. Этот член учитывает интерференционные эффекты, возникающие в тех конечных состояниях, в которые система «кристалл — излучение» может перейти при рассеянии комптоновского кванта как в направлении k_0 , так и в направлении k_h :

$$I \sim |\xi_0 + \xi_h|^2 = \langle \mathbf{k}_0 | \widehat{\mathcal{M}}_0 \widehat{\mathcal{M}}_0^+ | \mathbf{k}_0 \rangle + \langle \mathbf{k}_h | \widehat{\mathcal{M}}_h \widehat{\mathcal{M}}_h^+ | \mathbf{k}_h \rangle + 2 \operatorname{Re} \langle \mathbf{k}_0 | \widehat{\mathcal{M}}_0 \widehat{\mathcal{M}}_h^+ | \mathbf{k}_h \rangle.$$

Легко видеть, что общий вид этого выражения совпадает со строгим расчетом интенсивности ККР (1).

Ранее в [1,2] не учитывался вклад в интенсивность ККР за счет взаимодействия волн, распространяющихся из разных центров возбуждения α≠а' на дисперсионной поверхности, так как в этих работах рассматривались кристаллы с толщиной, значительно превышающей длину экстинкции. Кроме того, в [1,2] не был проведен детальный учет влияния аномального поглощения на форму спектра ККР, а были только вычислены дифференциальные сечения в центре комптоновской линии и интегральные по частоте сечения. В настоящей работе эти недостатки существующей теории ККР преодолены и в общем виде решена задача о динамической двухволновой дифракции Лауэ комптоновского излучения.

Диагональные сечения КР σ_{00} и σ_{hh} отвечают обычным сечениям некогерентного рассеяния квантов первичного пучка \mathbf{k}_1 в моды \mathbf{k}_0 и \mathbf{k}_h соответственно. Недиагональные сечения $\sigma_{0h} = \sigma_{h0}^*$ описывают интерференцию (когерентную суперпозицию) состояний $|\mathbf{k}_0\rangle$ и $|\mathbf{k}_h\rangle$. В случае $|y| \gg 1$ интенсивность КР $I_{\infty} = \sigma_{00}I_1n_0V_{\infty}$, так как $L^{(0)} = 1$, $L^{(h)} = 0$, $\mu_{\alpha\alpha} = \mu/\gamma_0$.

В импульсном приближении [2] из (2) следует, что

$$\sigma_{gg'} \sim \int d\mathbf{p} \langle \mathbf{p} | \mathbf{p} + \mathbf{g}' - \mathbf{g} \rangle \quad \delta \left(\frac{\hbar S_g^2}{2m} + \frac{\hbar \mathbf{p} S_g}{m} - \omega_1 + \omega \right). \tag{7}$$

Таким образом, сечения КР определяются диагональными и недиагональными элементами одноэлектронной матрицы плотности $\langle p | p' \rangle = = \psi(p) \psi^*(p')$, где $\psi(p)$ — волновая функция основного состояния электрона в импульсном пространстве. Отсюда следует, что из энергетических спектров ККР, как и в случае КР при дифракции внешнего излучения [4], можно извлекать информацию об одномерной (в проекции на S_g) корреляционной функции (p|p+h) валентных электронов. Отметим, что измерения профилей некогерентного КР и интенсивностей брэгговских рефлексов такой информации не дают.

Соотношение (1) описывает также когерентные явления при диффузном рассеянии [5, 6] и флуоресценции [7], если в (1) заменить σ_{gg} , на сечения соответствующих вторичных процессов.

В зависимости от геометрии эксперимента, энергии квантов и эффективного размера электронного распределения сечения (7) могут меняться в значительных пределах, что сказывается на величине спектральной интенсивности (1). Анализ (1) упрощается, когда $k_1 \perp h$, т. е. внешнее излучение падает параллельно отражающим плоскостям. При этом $\sigma_{00} = \sigma_{hh}$, что позволяет ввести параметр $\beta_{0h} = \sigma_{0h}/\sigma_{00}$ и построить для каждого рассматриваемого случая семейство кривых, описывающих спектр ККР в зависимости от величины β_{0h} .

Вычисление интерференционного параметра β₀^h требует знания точных волновых функций ψ_{*}, однажо для общего анализа можно ограничиться приближенным аналитическим выражением, полученным в рамках импульсной аппроксимации:

$$\beta_{0h} = \exp\left\{-\frac{1}{2}(\alpha ah)^2\left[1+\cos^2\eta+\frac{4x}{ah}\cos\eta\right]\right\},\tag{8}$$

где a — радиус электронного распределения, η — угол между S_0 и h, $x = \Delta \Omega / \Delta \Omega_c$ — отстройка от максимума спектра KP, выраженная в единицах полуширины комптоновского спектра [2], величина $\alpha \sim 1$ и зависит от выбранной нормировки спектра KP.

В случае сильно связанных электронов и малых индексов отражения $(ah \ll 1)$ из (8) следует, что $\beta_{0h} \approx 1$. При рассеянии на легких атомах или на почти свободных электронах $ah \gg 1$, так что $\beta_{0h} \approx 0$.

Расчеты спектральной интенсивности (1) проводились для КР σ -поляризованного излучения AgK_{α_1} в кремнии, отражение 220. Значения $\chi_g(\omega_1)$ взяты из [8]. Учтена зависимость χ_g от частоты, поскольку, например, при значении угла КР $\psi = 171^\circ$ поляризуемость χ_{hr} увеличивается на 19%, а коэффициент поглощения — на 28%.

На рис. 1 представлены нормированные спектры ККР $\kappa = I/I_{\infty}$ в в случае геометрии «на прохождение» для различных толщин l крис+ талла. Отражающие плоскости перпендикулярны поверхности образца (b=1), $\varphi_1 = 85^\circ$, $\psi = 85,1^\circ$. Для определенности $\omega_B = \omega_C$, где ω_C положение максимума спектра КР. В тонких кристаллах, когда $\mu l \ll 1$, в спектр ККР дает вклад только третий, пропорциональный 80h интерференционный член в (1), так как первые два члена в сим* метричной геометрии КР «гасят» друг друга. Отчетливо видны осцилляции вследствие маятникового эффекта для комптоновского излучения. С увеличением l период и амплитуда осцилляций уменьшаются. В тонких кристаллах спектры ККР имеют симметричную черно-белую структуру (рис. 1, а), поэтому ее нельзя обнаружить с помощью фотометодики, регистрирующей лишь интегральную по энергии интенсивность.

В случае толстых кристаллов с $\mu l \gg 1$ начинает проявляться эффект Бормана для квантов КР, что приводит к значительному превышению интенсивности ККР над некогерентным КР и изменению симметрии спектров (рис. 1, б). При фоторегистрации это должно приводить к появлению темной линии вблизи направления $\vartheta =$ = arcsin(*ch*/2 ω *c*). Из рис. 1 видно резкое повышение чувствительности спектров ККР в толстых кристаллах к изменению интерференционного параметра β_{0h} . Особенно заметно это проявляется при малых значениях β_{0h} , характеризующих поведение валентных электронов.

Указанная чувствительность спектров еще больше возрастает с использованием резко асимметричных отражений с $b \ll 1$, что объясняется проявлением эффекта Бормана даже для тонких кристаллов с $\mu l \sim 0, 1-1$ из-за уменьшения длины экстинкции.



Рис. 1. Энергетические спектры ККР в геометрии «на прохождение»: $\mu l = 0.04$ (a), 4 (б); β_{0h} : 1.0 (1); 0.6 (2); 0.2 (3) и 0.0 (4)





На рис. 2 представлены спектры ККР, рассчитанные в геометрии «на отражение» для различных углов падения φ_1 , b=1. Из сравнения рис. 2, *а* и *б* видно, что уменьшение φ_1 приводит к увеличению влияния эффекта Бормана на спектр ККР. Это связано с тем, что при

6 ВМУ, № 2, физика, астрономия

нормальном падении внешнее излучение глубже проникает в кристалл, чем при косом, кванты КР «рождаются» на большей глубине и, следовательно, эффективнее взаимодействуют с кристаллом. Наиболее значительно при этом меняется вклад в КР валентных электронов, плотность которых распределена в основном между атомами (см. кривые 3, 4).

В случае асимметричной дифракции комптоновского излучения амплитуды линий ККР возрастают, а их ширина сужается. Например,, если b=0,15, то по отношению к кривым рис. 2, б максимальные значения к возрастают в 3 раза для кривой с $\beta_{0h}=1$ и в 37 раз в случае $\beta_{0h}=0$. Линии ККР сужаются примерно в 1,5—2 раза.

- Как уже отмечалось, спектры ККР наиболее чувствительны к малым значениям параметра вол, которые отвечают рассеянию на валентных электронах (см. (8)). Вклад сильно связанных внутренних электронов легко учесть, поскольку их волновые функции известны и с большей точностью совпадают с таковыми, вычисленными для свободных атомов. Зная полный экспериментальный профиль χ(ω). простым вычитанием легко выделить вклад внешних электронов, несущий информацию, об их блоховских волновых функциях. Заметим, что такая процедура реализуется и в стандартных экспериментах по измерению комптоновских профилей оо [2]. Различные модели поведения валентных электронов приводят к отличию теоретических значений некогерентных сечений КР от на 2-4% [2], что соизмеримо с экспериментальными погрешностями и не позволяет выявить преимущества той или иной модели. Однако в условиях когерентного комптоновского рассеяния, особенно в случае асимметричной дифракции, вклад интерференционного сечения ооh может изменять интенсивность ККР в десятки раз, что открывает новые возможности исследования электронной структуры кристаллов.

О возможностях реального эксперимента можно судить из следующей оценки. Если $I_1=10^{11}$ квант/с [2], $\psi=171^\circ$, апертура приемной щели кристалла-анализатора 2×180 угл. мин (см. [3]), то интенсивность КР в интервале 1 эВ составит 20 квант/с, что вполне измеримопри современном уровне экспериментальной техники.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

[1] Бушуев В. А., Кузьмин Р. Н.//ЖТФ. 1974. 44, № 12. С. 2568—2571. [2] Бушуев В. А., Кузьмин Р. Н.//УФН. 1977. 122, № 1. С. 81—124. [3] Бушуев В. А., Любимов А. Г., Кузьмин Р. Н.//ФТТ. 1984. 26, № 11. С. 3480— 3482. [4] Schülke W., Bonse U., Mourikis S.//Phys. Rev. Lett. 1981. 47, N 17. Р. 1209—1212. [5] Chukhovskii F. N., Alexanjan L. A., Pinsker Z. G.// //Acta Cryst. 1973. A29, N 1. Р. 38—45. [6] Молодкин В.Б., Олиховский С.И., Осиновский М. Е.// Металлофизика. 1983. 5, № 5. С. 3—11. [7] Каули Дж. Физика дифракции. М., 1979. [8] Пинскер З. Г. Рентгеновская кристаллооптика. М., 1982.

> Поступила в редакцик» 27.12.85