

УДК 548.73

## МНГОВОЛНОВОЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ РЕНТГЕНОВСКИХ ЛУЧЕЙ В КРИСТАЛЛЕ ПАРАТЕЛЛУРИТА ПРИ ВОЗБУЖДЕНИИ УЛЬТРАЗВУКОВЫХ КОЛЕБАНИЙ

© 2019 г. Я. А. Элиович<sup>1,2,\*</sup>, А. В. Таргонский<sup>1,2</sup>, А. Н. Даринский<sup>1</sup>, П. А. Просеков<sup>1,2</sup>,  
Ю. В. Писаревский<sup>1,2</sup>, А. Е. Благов<sup>1,2</sup>, В. И. Аккуратов<sup>1,2</sup>, В. А. Ломонов<sup>1</sup>,  
В. Р. Кочарян<sup>3</sup>, А. Р. Мкртчян<sup>3</sup>, М. В. Ковальчук<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>Институт кристаллографии им. А.В. Шубникова ФНИЦ “Кристаллография и фотоника” РАН,  
119333 Москва, Россия

<sup>2</sup>Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, 123098 Москва, Россия

<sup>3</sup>Институт прикладных проблем физики НАН РА, 375014 Ереван, Республика Армения

\*E-mail: yan.eliovich@gmail.com

Поступила в редакцию 27.11.2018 г.

После доработки 15.01.2019 г.

Принята к публикации 18.01.2019 г.

Проведено исследование многоволнового взаимодействия рентгеновских лучей в кристалле парателлуриата ( $\text{TeO}_2$ ) в условиях модуляции кристаллической решетки низкочастотными ультразвуковыми колебаниями. Показано, что с их помощью возможна реализация прецизионного сканирования или перестройки многоволновой области взаимодействия рентгеновских лучей.

**Ключевые слова:** рентгенодифракционные методы, многоволновая дифракция, рентгеновская акустооптика.

**DOI:** 10.1134/S0207352819070059

### ВВЕДЕНИЕ

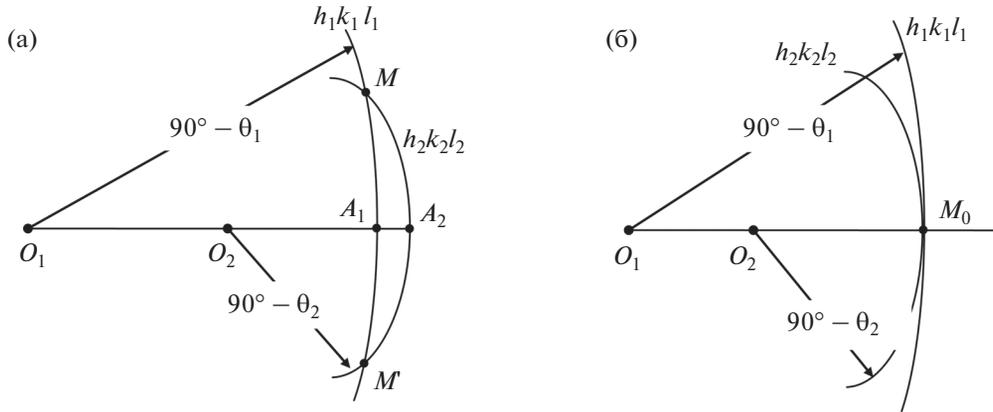
Многоволновая дифракция является эффективным методом исследования кристаллов, так как позволяет выявить фазовые характеристики используемых рентгеновских рефлексов [1–3]. Этот метод отличается высокой чувствительностью к обнаружению дефектов из-за возможности использования фазовых характеристик в случаях, когда в экспериментах регистрируются биеения, вызванные набегом фаз взаимодействующих волн. Кроме того, он позволяет получать информацию об объемных дефектах, так как рентгеновские лучи одновременно отражаются от нескольких семейств кристаллических плоскостей [4, 5].

В связи с этим особенно актуален вопрос о возможности прецизионного сканирования или перестройки многоволновой области. Реализовать это на практике можно, например, с помощью рентгеноакустического метода управления параметрами рентгеновского пучка [6, 7], позволяющего перестраивать экспериментальную схему с временным разрешением вплоть до 3 мкс. Недостатком данного метода является относительно небольшой диапазон угловой перестройки — до 100 угл. с, что накладывает определенные огра-

ничения на его применение. Однако исследования области многоволнового взаимодействия обычно не требуют более широкого диапазона угловой подстройки. В этом случае необходимо быстрое и прецизионное сканирование в весьма ограниченном интервале углов, поэтому использование рентгеноакустического метода крайне перспективно. В настоящей работе изучено влияние низкочастотных ультразвуковых колебаний на многоволновое взаимодействие в кристалле пьезоэлектрике — парателлуриате, одном из широко используемых акустооптических, а в перспективе и рентгеноакустических, элементов. Исследованы возможности управления параметрами пучка без необходимости одновременной подстройки отражений сразу в нескольких направлениях с помощью сложных механических систем поворота образца.

### МЕТОДИЧЕСКАЯ ЧАСТЬ

В настоящей работе для реализации многоволновой дифракции в кристалле использована схема высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии. Рассмотрим случай трехволновой



**Рис. 1.** Стереорафические проекции для двух рефлексов, соответствующих брэгговской компланарной геометрии дифракции:  $\Psi_0 > 0$  (а);  $\Psi_0 = 0$  (б).  $\Psi_0 = A_1A_2$ ;  $O_1, O_2$  – выходы нормалей к плоскостям  $(h_1k_1l_1), (h_2k_2l_2)$ ;  $\theta_1, \theta_2$  – углы Брэгга, соответствующие рефлексам  $h_1k_1l_1, h_2k_2l_2$ ; линии  $h_1k_1l_1, h_2k_2l_2$  – геометрические места точек, удовлетворяющих условию дифракции для соответствующих кристаллографических плоскостей [8].

компланарной геометрии дифракции, когда отражения от трех систем атомных плоскостей происходят в одной и той же плоскости рассеяния. Отражения от двух систем плоскостей регистрируются в эксперименте, третье отражение является связующим и определяет трехволновое взаимодействие в кристалле [2].

На рис. 1 показаны стереорафические проекции для двух рефлексов  $h_1k_1l_1$  и  $h_2k_2l_2$ , соответствующие брэгговской геометрии дифракции. В компланарном случае точки  $O_1, O_2$  расположены на одной прямой, а рефлексы  $h_1k_1l_1, h_2k_2l_2$  разнесены на некоторое угловое расстояние  $\Psi_0 = A_1A_2$  (рис. 1а). Исходя из построения,  $\Psi_0$  всегда достигает предельного значения (максимального или минимального) в компланарной геометрии (рис. 1). В данном случае экспериментальная зависимость  $\Psi_0$  от положения рентгеновского пучка на образце позволяет определять локальные вариации параметров элементарной ячейки с относительной точностью до  $4 \times 10^{-6}$  – методика квазимноговолновой дифракции [6].

Интересен случай, когда линии  $h_1k_1l_1, h_2k_2l_2$  пересекаются (рис. 1). В точках  $M, M'$  при  $\Psi_0 > 0$  (рис. 1а) или в  $M_0$  при  $\Psi_0 = 0$  (рис. 1б), точках пересечения этих линий, реализуется геометрия трехволновой дифракции. В случае  $\Psi_0 > 0$ , если угол  $\Psi_0$  достаточно велик и каждое отражение  $h_1k_1l_1, h_2k_2l_2$  – результат дифракции двух волн, следует перестроить схему от квазимноговолновой геометрии дифракции к трехволновой (рис. 1а).

Перестройка схемы может быть осуществлена путем изменения длины волны  $\lambda$  излучения. Для реализации такого способа потребуется использование синхротронного излучения (СИ), как

было показано, например, в [9]. В этом случае компланарность не нарушается, и реализуется схема, изображенная на рис. 1б.

Интересные результаты могут быть получены и в лабораторных условиях. При использовании характеристической линии рентгеновского излучения длина волны  $\lambda$  полагается неизменной. В таком случае имеют место два варианта перестройки схемы при  $\Psi_0 > 0$ : с помощью вариации азимутального угла  $\Delta\varphi$  или путем изменения величины межплоскостного расстояния  $d$  в кристалле.

Пусть отклонение азимутального угла  $\Delta\varphi$  осуществляется в ходе поворота кристалла вокруг нормали к плоскости отражения  $(h_1k_1l_1)$ , что соответствует вращению вокруг оси, проходящей через точку  $O_1$  (рис. 1а). В таком случае при повороте на  $\Delta\varphi$  условие компланарности для  $h_2k_2l_2$  нарушается, а точка  $M$ , двигаясь по дуге  $h_1k_1l_1$ , ложится на горизонтальную прямую аналогично схеме на рис. 1б. После относительно небольшого азимутального угла поворота ( $\Delta\varphi < 3^\circ$ ) точка  $O_2$  будет расположена практически на прямой  $O_1M$  (квазикомпланарная геометрия). Можно полагать, что компланарный случай точно выполняется, а “подстройка” условий трехволновой дифракции реализуется за счет изменения  $\lambda$  в пределах спектральной линии [5].

Важно отметить, что относительная ширина спектральной линии характеристического излучения более чем в десять раз превышает угловую область динамической дифракции в монокристалле. Бездисперсионное или слабодисперсионное рассеяние можно обеспечить только для  $h_1k_1l_1$ , а угловая зависимость интенсивности отра-

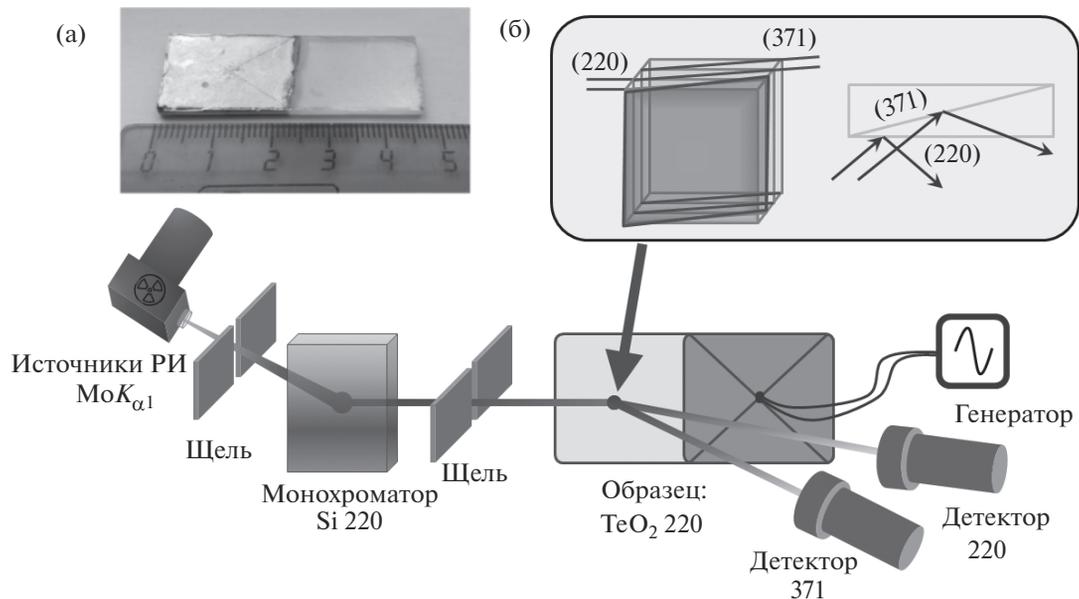


Рис. 2. Образец – рентгеноакустический резонатор на основе кристалла парателлурифта (а). Двухкристальная параллельная схема для проведения исследований многоволновой дифракции, реализованная на базе ТРС (б).

жения  $h_2k_2l_2$  будет существенно уширенной, и интенсивность отражения значительно слабее (в десятки раз). Это слабое отражение  $h_2k_2l_2$  – результат трехволновой дифракции, и данная ситуация аналогична методу стоячих рентгеновских волн, в котором  $h_2k_2l_2$  играет роль вторичного излучения [5].

Второй способ реализации трехволновой дифракции (в лабораторных условиях) при  $\Psi_0 > 0$  может быть осуществлен путем модуляции величины межплоскостного расстояния  $\Delta d$  в кристалле. На практике модуляция  $\Delta d$  осуществляется путем создания деформаций кристаллической решетки различного рода. Один из способов модуляции  $\Delta d$  в рентгенодифракционных экспериментах может быть реализован в кристаллах, подвергнутых ультразвуковым колебаниям. Наиболее эффективная модуляция достигается, когда  $d_{h_1k_1l_1}$  практически не меняется, а  $d_{h_2k_2l_2}$  меняется существенно, что приводит к изменению расстояния  $O_1O_2$  и угла Брэгга  $\theta_2$  и позволяет реализовать перестройку условий дифракции вблизи трехволновой области взаимодействия. Более подробно методика возбуждения ультразвуковых колебаний и модуляции параметра  $\Delta d$  в исследуемом кристалле описывается в следующем разделе.

Важно отметить, что в отличие от способа, основанного на азимутальной перестройке, метод модуляции параметра решетки не нарушает юстировку образца, что позволяет сохранить компланарность рентгенодифракционной схемы.

## ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА И ОБРАЗЦЫ

Все эксперименты проводились в двухкристальной схеме рентгеновской дифракции, собранной на базе лабораторного дифрактометра ТРС-1 [10]. Принципиальная схема представлена на рис. 2. Модульная конструкция данной установки позволяла добавить в экспериментальную конфигурацию второй детектор для одновременного наблюдения пары рефлексов 220, 371, а возможность прецизионного перемещения кристалла на гониометре позволяла осуществлять продольное сканирование образца. Источником излучения являлась лабораторная рентгеновская трубка с молибденовым анодом. С помощью совершенного кристалла кремния (отражение 220, угол Брэгга  $10.64^\circ$ ), используемого в качестве монохроматора, и двух механических щелей шириной 0.15 мм выделяли линию  $MoK_{\alpha 1}$ . Излучение направляли на исследуемый кристалл парателлурифта, расположенный на втором гониометре. Угол падения рентгеновских лучей на образец составлял  $12.04^\circ$ , а двойные углы Брэгга для установки детекторов –  $24.08^\circ$ ,  $68.58^\circ$  относительно падающего пучка. Слабый рефлекс 371 регистрировали с помощью схемы совпадения, позволяющей анализировать не только интегральную интенсивность дифракционного отражения, но и регистрировать интенсивность дифракции в определенных фазах колебаний, например, в фазах максимального растяжения или сжатия (стробоскопический метод измерений).

Наиболее удобной конфигурацией образца для возбуждения низкочастотных ультразвуковых колебаний на основной резонансной частоте при использовании пьезоэлектрических кристаллов с высоким коэффициентом электромеханической связи является монокристалл, при которой одна часть кристалла используется для возбуждения колебаний, а другая – для дифракции рентгеновских лучей [11]. В настоящей работе использован резонатор, изготовленный из кристаллической пластинки с размерами  $47.67 \times 15.02 \times 1.54$  мм (рис. 2), которая была вырезана из кристалла, выращенного методом Чохральского на установке, позволяющей получать высококачественные кристаллы диаметром до 50 мм, не содержащие двойников. Широкие грани перпендикулярны направлению [110] и наполовину покрыты токопроводящим слоем (серебряная паста). При приложении переменного электрического поля в пластине возбуждаются ультразвуковые колебания вдоль оси [110]. В данной геометрии локальные искажения решетки должны слабо сказываться на рефлексе 220, основную роль будет играть эффект Пуассона. Изменяться будут рефлекс 371 и связующий рефлекс 151.

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Амплитудно-частотная характеристика (АЧХ) получившегося резонатора измерена с помощью электронного анализатора цепей, реализованного на основе осциллографа с трекинг-генератором (TiePie HS5). На рис. 3а приведена часть АЧХ, содержащая резонансную частоту, которая составляла 118.5 кГц. Все измерения в условиях ультразвуковых колебаний проведены при данной частоте. Области с максимальными относительными деформациями в кристалле были определены путем анализа уширения кривой дифракционного отражения (КДО), полученной для разных участков кристалла при продольном сканировании [12]. На рис. 3б показано распределение полуширины КДО по длине пластины в направлении [110] при выключенном (кривая 1) и включенном (кривые 2, 3) ультразвуке. Видно, что распределение имеет сложный характер, и деформации существенно изменяются от одной точки к другой. Для выяснения причин возникновения данных особенностей с помощью метода конечных элементов [13] проводилось численное моделирование акустических полей в резонаторе, изготовленном из кристалла парателлуриата.

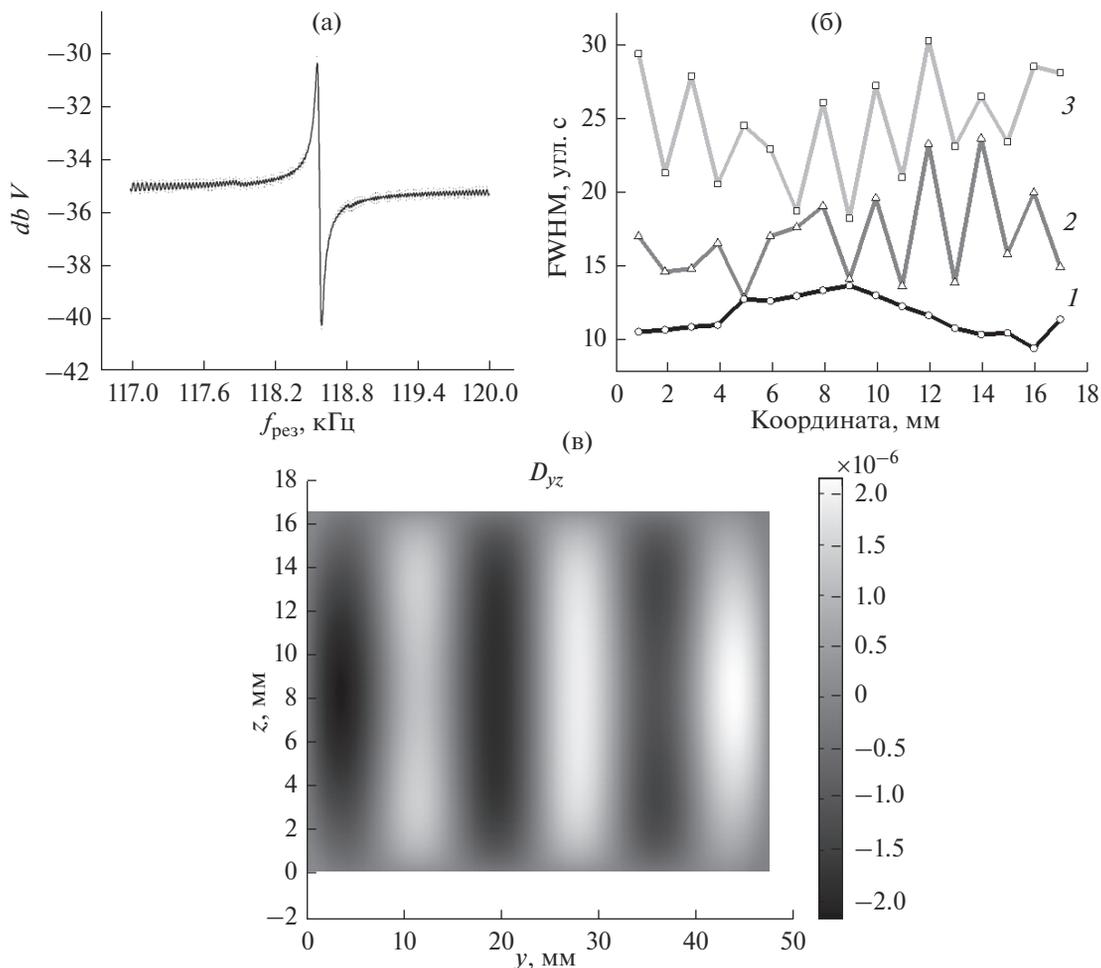
Расчеты показали, что в используемом резонаторе на самом деле возбуждается не чистая мода колебаний (о возникновении которой можно су-

дить по анализу АЧХ), а смешанные колебания со смещениями по всем трем направлениям. Смещения неоднородны, что и приводит к сложной картине распределения искажений по объему пластины, значительно отличающейся от той, что предсказывает простая одномерная модель. Более подробно информация о расчетах представлена в [14].

Из анализа распределения полуширины КДО по длине пластинки при выключенном ультразвуке хорошо видно, что оно достаточно равномерное, что говорит о высоком качестве используемого в работе кристалла парателлуриата. При приложении переменного электрического сигнала на резонансной частоте 118.5 кГц распределение полуширины вдоль кристалла существенно изменилось. Оно похоже по форме на распределение, полученное при исследовании резонатора на основе кварца–германия [14], что связано, по видимому, с наличием паразитных мод колебаний.

Ранее было установлено, что воздействие достаточно интенсивного ультразвука приводит к созданию метастабильной дефектной структуры, которая релаксирует в исходное состояние при выключении ультразвука [15]. В настоящей работе данный эффект проявился в том, что со временем при возбужденных ультразвуковых колебаниях полуширина КДО увеличилась более чем на 30%, при отключении ультразвука кристалл вернулся в исходное состояние (рис. 3). Исследования многоволновых взаимодействий проводились в области, соответствующей максимальному уширению КДО (рис. 3, точка с координатой 12 мм), спустя длительное время нахождения кристалла под ультразвуковой нагрузкой, когда полуширина уже не увеличивалась.

В дальнейшем проводили юстировку и настройку экспериментальной схемы по азимутальному углу для второго, слабого рефлекса 371. Начальная точка азимутального сканирования была выбрана, исходя из условия, когда расстояние между максимумами пиков порядка 100 угл. с (рефлексы 220 и 371 только начинают вовлекаться в многоволновую дифракцию). Затем с азимутальным шагом 10 угл. мин для каждой точки проводили серию из пяти экспериментов –  $\omega$ -сканирование, осуществляемое с помощью поворота гониометра в следующих случаях: ультразвук выключен; ультразвук включен; при включенном ультразвуке и задействованной системе стробоскопической регистрации три сканирования для каждой фазы ультразвуковых колебаний – “нейтральной”, фазы максимального растяжения и фазы максимального сжатия. Здесь приведены лишь некоторые, самые наглядные результаты



**Рис. 3.** АЧХ резонатора  $\text{TeO}_2$  (а). Результаты продольного сканирования готового резонатора без звука (1) и со звуком (2, 3) (б). Результаты численного моделирования колебаний в резонаторе на частоте 117 кГц (в).

для точек с азимутальной подстройкой 0, 30, 40 и 80 угл. мин.

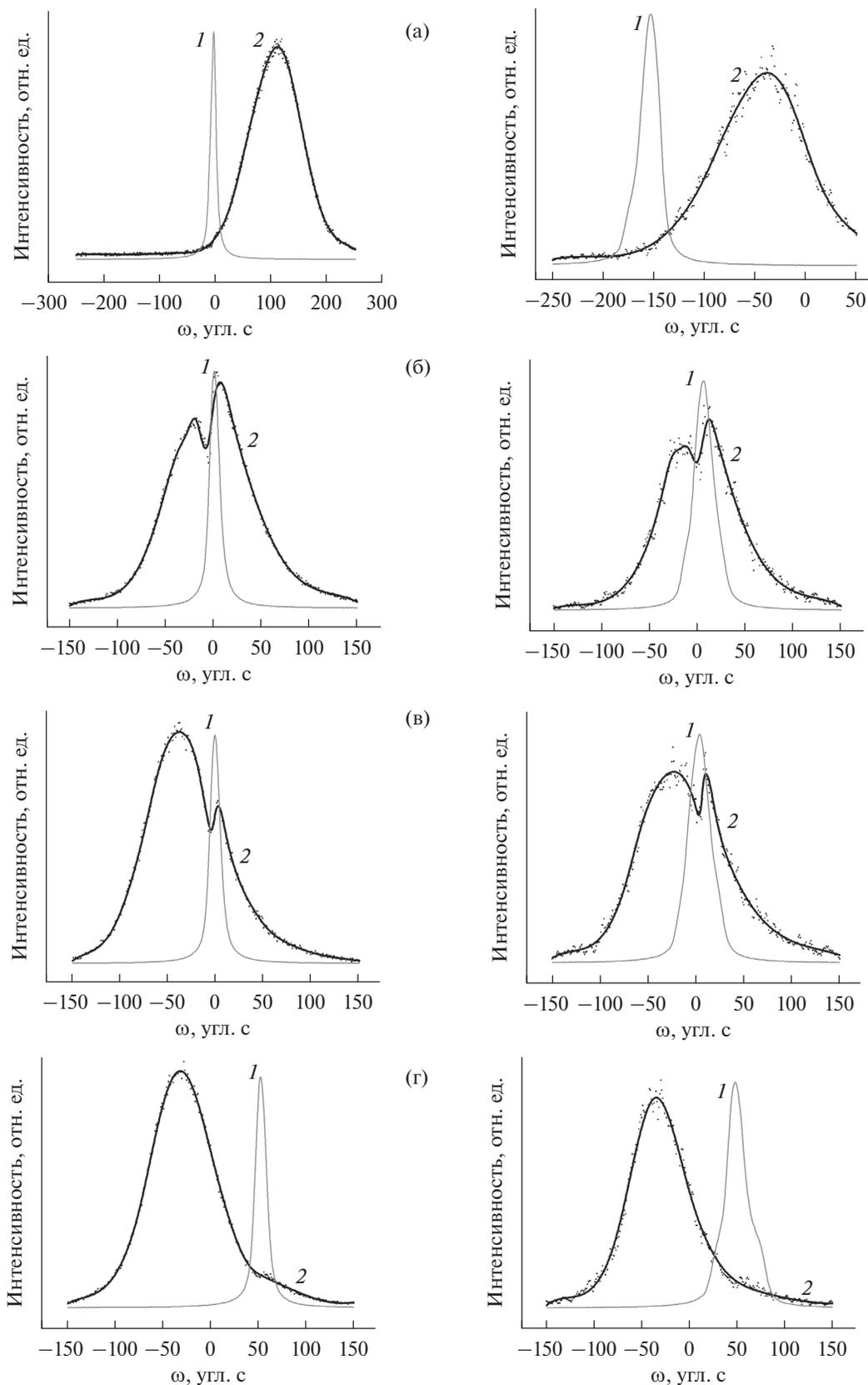
На рис. 4 представлены результаты, полученные при выключенном ультразвуке (исходное состояние) и при нулевой фазе колебаний, когда кристалл находится в невозмущенном состоянии. На рис. 5 представлены результаты, полученные для двух противоположных фаз колебаний. На всех графиках узкий пик – отражение 220, широкий пик – отражение 371, при этом интенсивность пика 220 в 60 раз больше интенсивности пика 371.

Из полученных результатов можно сделать несколько выводов. Результаты (рис. 4) хорошо согласуются в случае кристалла, не подвергнутого ультразвуковой деформации, и нулевой фазы колебаний, т.е. в случае “невозмущенного” состояния кристалла. На рис. 5, наоборот, отчетливо видна разница между противоположными фазами колебаний. Наиболее заметно это в точке с

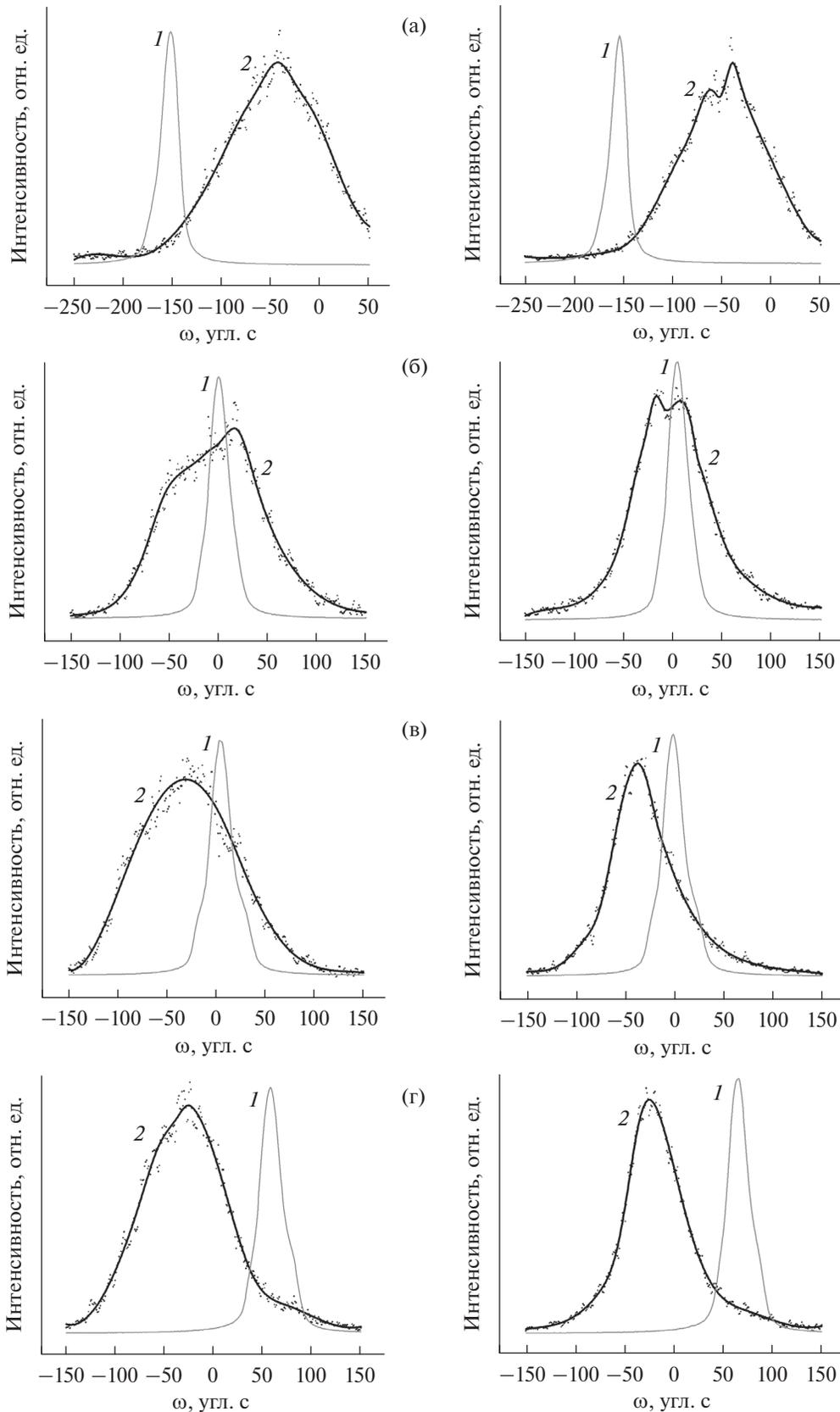
азимутальной подстройкой (+30 угл. мин), в области центра совпадения пиков – в разных фазах происходит сдвиг одного пика относительно другого, многоволновое взаимодействие при этом сохраняется. Это дает возможность контролируемо изменять область многоволнового взаимодействия и открывает новые перспективы для проведения прецизионных экспериментов в этом направлении. Стоит также отметить, что влияние ультразвуковых колебаний на пик 220 минимально, и основные изменения происходят именно с пиком 371, что полностью согласуется с теоретической моделью.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведенные эксперименты позволяют сделать вывод о том, что низкочастотные ультразвуковые колебания изменяют взаимное расположение дифракционных пиков и изменяют картину рассеяния в условиях многоволновой дифрак-



**Рис. 4.** КДО пары рефлексов 220 (1), 371 (2), соотношение интенсивностей максимумов (1) и (2) 60 : 1, полученные в результате  $\omega$ -сканирования образца при отключенном ультразвуке (слева) и зарегистрированные с помощью системы стробоскопической регистрации в нулевой фазе (справа), при  $\Delta\phi$ : а – 0; б – 30; в – 40; г – 80 угл. мин.



**Рис. 5.** Результаты измерения КДО пары рефлексов 220 (1), 371 (2), соотношение интенсивностей максимумов (1) и (2) 60 : 1, полученные в результате  $\omega$ -сканирования образца и зарегистрированные с помощью системы стробоскопической регистрации, в фазе максимального растяжения (слева) и максимального сжатия (справа) при  $\Delta\varphi$ : а – 0; б – 30; в – 40; г – 80 угл. мин.

ции, что дает возможность подстраивать условия многоволнового взаимодействия и находить оптимальные точки для контроля дефектной структуры без использования большого количества шагов сканирования.

Анализ области многоволнового взаимодействия лучей показал, что даже небольшие изменения структуры вне зависимости от направления вызывают значительные изменения картины рассеяния, что можно использовать, например, для диагностики нанослоев с деформациями в латеральных направлениях.

Представляется также интересным проведение аналогичных экспериментов на синхротронном источнике, где можно влиять на многоволновую область, подстраивая длину волны.

Еще одним перспективным направлением может стать настройка бездисперсионной схемы для слабого рефлекса, что позволит уменьшить влияние аппаратной функции на уширение КДО слабого рефлекса и тем самым детально изучить эффекты, связанные с влиянием ультразвуковой модуляции на область многоволнового взаимодействия.

Кроме того, многоволновая дифракция является одним из способов пространственного разделения пучков, а изменение профиля кривой вследствие наложения рефлексов и возможность быстрой перестройки схемы с помощью ультразвука позволяют рассматривать такие элементы в качестве потенциальных рентгенооптических устройств в линиях задержки и разделения сигнала для синхротронных источников и лазеров на свободных электронах.

#### БЛАГОДАРНОСТИ

Исследования проводились с использованием оборудования центра коллективного пользования ФНИЦ “Кристаллография и фотоника” РАН при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования РФ в рамках государственного задания ФНИЦ “Кристаллография и фотоника” РАН в части развития рентгеноаку-

стических методов, РФФИ (проекты № 18-52-05024 Арм\_а совместно с ГКН МОН РА 18RF-142 и № 16-29-14057 офи\_м) в части математического моделирования и рентгенодифракционных исследований и Совета по грантам Президента РФ (грант № МК-2451.2018.2) в части исследования возможностей пространственного разделения пучков.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Weckert E., Hümmel K.* // Acta Crystallogr. A. 1997. V. 53. P. 108.
2. *Chang S.-L.* Multiple Diffraction of X-rays in Crystals. Berlin: Springer Verlag, 1984. 300 p.
3. *Афанасьев А.М., Зозуля А.В., Ковальчук М.В. и др.* // Письма в ЖЭТФ. 2002. Т. 75. С. 379.
4. *Марченков Н.В., Благов А.Е., Ломонов В.А. и др.* // Кристаллография. 2013. Т. 58. № 2. С. 181.
5. *Благов А.Е., Ковальчук М.В., Кон В.Г. и др.* // Кристаллография. 2010. Т. 55. № 1. С. 12.
6. *Zolotoyabko E.* Basic Concepts of X-ray Diffraction. Weinheim: Wiley-VCH, 2014. 312 p.
7. *Liss K.-D., Magerl A., Hock R. et al.* // Proceed. SPIE. Int. Soc. Opt. Eng. 1998. V. 3451. P. 117.
8. *Благов А.Е., Декапольцев М.В., Ковальчук М.В. и др.* // Кристаллография. 2010. Т. 55. № 6. С. 1133.
9. *Благов А.Е., Ковальчук М.В., Кон В.Г. и др.* // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2011. № 9. С. 12.
10. А.с. 463045 (СССР) Рентгеновский спектрометр / ИК АН. *Пинскер З.Г., Ковьев Э.К., Миренский А.В. и др.* // 05.03.1975. Бюл. № 9.
11. *Благов А.Е., Просяков П.А., Таргонский А.В., Элиович Я.А.* // Кристаллография. 2015. Т. 50. № 2. С. 189.
12. *Благов А.Е., Ковальчук М.В., Писаревский Ю.В. и др.* // Кристаллография. 2008. Т. 53. № 3. С. 411.
13. *Zienkiewicz O.C., Taylor R.L., Zhu J.Z.* The Finite Element Method: Its Basis and Fundamentals. Elsevier, 2016. 756 p.
14. *Благов А.Е., Даринский А.Н., Ковальчук М.В. и др.* // Акустический журн. 2013. Т. 59. № 5. С. 561.
15. *Благов А.Е., Писаревский Ю.В., Таргонский А.В. и др.* // ФТТ. 2017. Т. 59. № 5. С. 947.

## Multiple-Wave Interaction of X-Rays in a Paratellurite Crystal under Excitation of Ultrasonic Vibrations

**I. A. Eliovich, A. V. Targonskii, A. N. Darinskii, P. A. Prosekov, Yu. V. Pisarevsky, A. E. Blagov, V. I. Akkuratov, V. A. Lomonov, V. R. Kocharyan, A. R. Mkrtchyan, M. V. Kovalchuk**

A multi-wave X-ray interaction in paratellurite crystal, TeO<sub>2</sub>, under crystal lattice modulation by low-frequency ultrasonic vibrations has been studied. The use of such vibrations allows accurate scanning or tuning of the multi-wave area of X-ray interaction.

**Keywords:** X-ray diffraction, multiple-wave diffraction, X-ray acoustooptics.