

*На правах рукописи*



**Благов Александр Евгеньевич**

**РАЗВИТИЕ МЕТОДОВ РЕНТГЕНОВСКОЙ  
ДИФРАКЦИОННОЙ ДИАГНОСТИКИ  
КОНДЕНСИРОВАННЫХ СРЕД В УСЛОВИЯХ  
ДИНАМИЧЕСКИХ ВОЗДЕЙСТВИЙ**

Специальность 01.04.07 – «Физика конденсированного состояния»

**АВТОРЕФЕРАТ**

диссертации на соискание ученой степени  
доктора физико-математических наук

**Москва 2016**

Работа выполнена в лаборатории рентгеновских методов анализа и синхротронного излучения Института кристаллографии им. А.В. Шубникова Российской академии наук, г. Москва.

**Научный консультант:**

*Ковальчук Михаил Валентинович*, доктор физико-математических наук, профессор, член-корреспондент РАН, Президент НИЦ «Курчатовский институт», г. Москва.

**Официальные оппоненты:**

*Пустовойт Владислав Иванович*, академик РАН, доктор физико-математических наук, научный руководитель Научно-технологического центра уникального приборостроения РАН, г. Москва;

*Суворов Эрнест Витальевич*, доктор физико-математических наук, профессор, главный научный сотрудник лаборатории структурных исследований Института физики твердого тела РАН, г. Черноголовка;

*Чуев Михаил Александрович*, доктор физико-математических наук, заведующий лабораторией физики поверхности микро- и нанoeлектронных структур Физико-технологического института РАН, г. Москва.

**Ведущая организация:**

Национальный исследовательский технологический университет «МИСиС», г. Москва.

Защита диссертации состоится 20 октября 2016 г. в 15.00 на заседании диссертационного совета Д520.009.01 при Национальном исследовательском центре "Курчатовский институт" по адресу: 123182 Россия, Москва, пл. академика Курчатова, д. 1, Главное здание, конференц-зал (ауд. 231-236).

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке НИЦ «Курчатовский институт» и на сайте [www.nrcki.ru](http://www.nrcki.ru).

Автореферат разослан «    » \_\_\_\_\_ 2016 г.

Ученый секретарь  
диссертационного совета  
Д 520.009.01, к.ф.-м.н.



А.В. Мерзляков

## **Актуальность**

Уникальные свойства рентгеновского излучения – его высокая разрешающая и большая проникающая способности, возможность неразрушающего контроля – определяют широкий круг исследовательских и диагностических задач, решаемых с применением рентгеновских лучей в различных областях науки и техники. Рентгеновские методы анализа повсеместно вошли в практику современной жизни и стали инструментальным фундаментом важнейших научных исследований в материаловедении, нанотехнологии, кристаллографии, электронике, биохимии, медицине, биологии, астрономии и т.д.

В то же время, потенциал рентгеновского излучения используется далеко не полностью в значительной степени из-за ограниченных возможностей оперативного управления такими параметрами рентгеновского пучка, как длина волны, угловое и пространственное положение, фокусировка, сходимоссть, вызванных «медлительностью» механических систем, применяемых для перестройки рентгенооптической схемы.

В настоящее время управление рентгеновским экспериментом осуществляется с помощью прецизионных устройств и механизмов, позволяющих с высокой точностью ( $<1''$ ) поворачивать и устанавливать кристалл относительно падающего на него рентгеновского пучка. Именно механическое управление ограничивает возможности использования рентгеновского излучения и связано это, в первую очередь, с низкой скоростью перестройки рентгенооптической схемы. В связи с этим разработка методов немеханического управления представляется крайне актуальной для развития и совершенствования рентгеновской диагностики объектов, находящихся в условиях внешних воздействий.

Возможность относительно простого возбуждения в кристаллах ультразвуковых колебаний и изменения в широких пределах их параметров, создает условия контролируемого управления пространственно-временной структурой дифрагированного рентгеновского пучка на основе модуляции

параметра кристаллической решетки. Ультразвуковое управление позволяет с высокой точностью и скоростью, на несколько порядков превышающей скорость механических систем, перестраивать рентгенооптическую схему.

Электрическое поле – еще один способ контролируемого воздействия на кристаллическую структуру, который позволяет создавать условия объемной статической и динамической деформации кристаллической решетки с высокой степенью однородности по кристаллу. Такую деформацию кристаллической решетки также можно эффективно использовать для управления рентгеновской дифракцией в кристаллах. Возбуждение ультразвука в кристаллах также напрямую связано с приложением электрического поля к кристаллу. Таким образом, исследование воздействия динамического и статического электрического поля на элементарную ячейку, на микро и макроструктуру кристалла, с одной стороны, представляет крайне важную задачу для развития методов управления рентгеновскими пучками, а с другой стороны, – самостоятельную область с массой фундаментальных и прикладных структурных задач.

Внешние воздействия (такие как ультразвук или электрическое поле) могут приводить и к необратимым изменениям кристаллической структуры, к появлению или размножению дефектов, образованию доменов и т.д., что может существенно изменить свойства самого материала используемого в качестве рабочего рентгенооптического элемента. В связи с этим востребованы методы прецизионного рентгеновского контроля изменений в дефектной структуре кристаллических материалов как находящихся в нормальных условиях, так и в условиях внешних воздействий. Применение фазочувствительных методов, таких как многоволновая дифракция, вместе с методами, чувствительными к изменениям параметра кристаллической решетки может дать существенный выигрыш в информативности и чувствительности рентгеновских методов.

Таким образом, развитие методов рентгеновской дифракционной диагностики конденсированных сред в условиях динамических воздействий позволит реализовать немеханическое управление пространственными и

спектральными параметрами рентгеновского излучения, т.е. вывести рентгеновскую диагностику на совершенно новый уровень исследований. Вместе с тем, этот подход даст возможность изучения поведения кристаллической структуры в условия статических и динамических нагрузок разной природы и возможность получения информации об упругих и неупругих свойствах различных технически важных кристаллических материалов при внешних воздействиях, вызывающих структурные изменения обратимого и необратимого характера.

### **Цель работы**

Всестороннее изучение области рентгеноакустических взаимодействий в условия длинноволновых ультразвуковых колебаний. Развитие рентгеновских методов исследования конденсированных сред с разрешением по времени, достаточным для наблюдения за структурными изменениями, вызванными внешними воздействиями, изучение динамики структуры непосредственно в процессе её перестройки, например, в условиях акустических нагрузок. Развитие комплексных исследований дефектной структуры кристаллических объектов, в том числе в условиях внешних воздействий, с применением фазочувствительных рентгеновских методов и методов рентгеновской дифрактометрии высокого разрешения. Изучение поведения дефектной структуры кристаллических материалов в условиях воздействия электрическим полем.

*Для достижения поставленной цели были решены следующие задачи:*

1. Изучить особенности взаимодействия рентгеновских и упругих волн, распространяющихся в кристалле в различных диапазонах частот ультразвука. Исследовать специфику взаимодействия рентгеновских и упругих волн в геометрии Лауэ и Брэгга в условиях резонансного возбуждения длинноволнового ультразвука, в частности, в условиях однородной и градиентной деформации кристаллической решетки;
2. Изучить условия возбуждения длинноволнового ультразвука в кристаллах, решить задачу формирования однородных и градиентных упругих

деформаций в области дифракции рентгеновского пучка в рентгеноакустических резонаторах. Разработать рентгеноакустические резонаторы, позволяющие модулировать параметры кристаллической решетки (для управления рентгеновской дифракцией) в широком диапазоне вплоть до перехода в область пластических деформаций и разрушения кристалла.

3. Разработать рентгенооптические схемы и элементы рентгеновской акустооптики, позволяющие управлять основными параметрами рентгеновского пучка в эксперименте:

- направлением распространения (углом) и длиной волны рентгеновского пучка в условия сохранения геометрических размеров, угловой и спектральной расходимости;
- угловой расходимостью рентгеновского пучка, позволяющей выполнять его фокусировку, коллимацию и дефокусировку.

4. Разработать аппаратно-методический комплекс по исследованию рентгеноакустических взаимодействий, моделированию экспериментальных кривых, ультразвуковых деформационных полей и смещений в кристаллах и изучению дефектной структуры, в том числе, в условиях внешних воздействий.

5. Создать лабораторный образец рентгеновского дифрактометра, основанного на рентгеновской акустооптике, обеспечивающего быструю перестройку рентгенооптической схемы и измерение кривой дифракционного отражения (КДО) с разрешением по времени.

6. Исследовать поведение (деформационные характеристики, динамику дефектной структуры, разрушение) различных кристаллических материалов, в условиях акустических вибрационных нагрузок при различных амплитудах колебаний и временах воздействия. На основе полученных результатов провести поиск подходящих кристаллических материалов для создания элементов рентгеновской акустооптики.

7. Развить комплексный подход разномасштабной структурной диагностики кристаллов с применением двух-, трехкристальной, двухволновой и

многоволновой дифракции, в том числе в условиях возбуждения ультразвука и воздействия электрического поля

8. Изучить влияние электрического поля на двухволновую, трехволновую и квазимноговолновую рентгеновскую дифракцию в кристаллах, обладающих пьезоэлектрическим эффектом.

### **Научная новизна**

1. Всесторонне изучена область взаимодействия рентгеновской волны с длинноволновым ультразвуком: изучены акустические аспекты, связанные с созданием упругих деформаций в кристаллах, а также особенности рентгеновской дифракции в условиях медленно меняющейся по пространственной координате, быстро и периодически во времени деформации кристаллической решетки, в том числе:

– Экспериментально обнаружено и теоретически интерпретировано существование сильной пространственной модуляции упругих деформаций, накладывающейся на классическое полуволновое распределение. На основании проведенного моделирования и экспериментальных данных в резонаторах продольных колебаний показана возможность создания поперечных деформаций по эффективности сопоставимых с основной продольной модой.

– Применена техника фазового управления рентгеновским пучком в условиях рентгеноакустических взаимодействий. В отличие от наиболее распространенного подхода, когда ультразвуковое воздействие на рентгеновскую дифракцию полагается стационарным при постоянной амплитуде ультразвука, в настоящей работе показано, что интегральная картина рентгеновской дифракции является суперпозицией составляющих, соответствующих различным фазам колебания кристалла.

– Реализована быстрая ультразвуковая перестройка угла рентгеновского пучка. На этой основе разработаны методы исследования кристаллических материалов с микросекундным временным разрешением с применением рентгеновской дифрактометрии.

– Реализована быстрая ультразвуковая перестройка длины волны рентгеновского излучения. На этой основе разработаны методы проведения исследований с микросекундным временным разрешением с применением рентгеновской спектроскопии и резонансной дифрактометрии.

– Реализовано управление сходимостью рентгеновского пучка с помощью длинноволновых ультразвуковых колебаний. Разработаны методы коллимации и фокусировки рентгеновского пучка с перестройкой фокусного расстояния.

2. Проведены рентгенодифракционные исследования дефектной структуры кристаллов Si, Ge, SiO<sub>2</sub>, LGT, TeO<sub>2</sub> и LiF в условиях вибрационных нагрузок с применением быстрой акустической развертки рентгеновского пучка.

3. Реализована ультразвуковая подстройка схемы квазимоноволновой дифракции и сканирование условий многоволновой дифракции в схеме высокого разрешения для лабораторного источника, основанные на перестройке взаимного положения рентгеновских рефлексов.

4. Экспериментально зарегистрировано влияние дефектной структуры на дисперсионную зависимость при трехволновом взаимодействии. Показано, что многоволновая дифракция сохраняет чувствительность к дефектам кристаллической структуры в условиях, когда обнаружение дефектов на основе двухволновой дифракции затруднено.

5. Обнаружено образование доменов неферроэлектрического типа при воздействии на пьезоэлектрический кристалл парателлуриата (TeO<sub>2</sub>) тетрагональной сингонии электрическим полем.

### **Практическая значимость**

1. Разработан комплексный подход по моделированию и созданию рентгеноакустической оптики, составляющих её элементов и кристаллов. Разработаны методы расчета и визуализации объемного поля смещений, возникающих в условиях возбуждения ультразвуковых колебаний.

2. Разработанные схемы проведения экспериментов по рентгеновской спектроскопии с временным разрешением могут быть использованы для методов EXAFS, XANES, резонансной дифракции, а также для реализации



модуляционной рентгеновской спектроскопии и создания нового поколения рентгеноспектральных приборов, использующих ультразвуковую подстройку и модуляцию длины волны рентгеновского излучения.

3. Разработанные схемы проведения экспериментов по рентгеновской дифрактометрии с временным разрешением могут быть использованы для реализации принципиально новых экспериментальных подходов по измерению КДО и анализу угловой расходимости отраженного кристаллом рентгеновского излучения. Получены патенты на рентгеноакустические методы управления угловым положением и анализа углового распределения рентгеновского пучка.

4. Разработанный образец рентгеноакустического дифрактометра для измерения КДО с разрешением по времени является представителем нового класса дифракционных приборов и может быть использован для исследования кинетики быстропротекающих процессов, связанных со структурными изменениями в кристаллах. Разработанная концепция модернизации рентгеновских приборов позволит усовершенствовать большое количество дифрактометров низкого разрешения на основе комплектации их компактными рентгеноакустическими модулями.

5. Методы многоволновой дифракции в комбинации с методами высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии позволят повысить информативность и чувствительность при исследовании дефектной структуры кристаллических образцов. Результаты комплементарного применения многоволновой и трехкристальной диагностики создают основу новых методов изучения дефектов кристаллической решетки, обладающих большей чувствительностью и информативностью по сравнению с используемыми в настоящее время.

6. Результаты экспериментов и методы изучения поведения дефектной структуры кристаллов непосредственно в условиях динамической ультразвуковой нагрузки могут стать основой для контроля качества разнообразных устройств или составляющих их элементов, эксплуатируемых в условиях вибронагрузок и других деформационных воздействий.

## **Положения, выносимые на защиту**

1. Комплексный подход по созданию рентгеноакустической оптики, включающий: расчеты анизотропии упругих свойств и параметров кристаллических элементов; алгоритмы визуализации объемного поля смещений в условиях возбуждения ультразвуковых колебаний, методику изготовления и тестирования рентгеноакустооптических резонаторов.

2. Фазовое управление рентгеновским пучком, основанное на зависимости условий дифракции от фазы колебаний рентгеноакустического кристалла.

3. Рентгеноакустическая дифрактометрия с разрешением по времени для измерения КДО на основе ультразвукового сканирования условий дифракции в трех различных режимах: ультразвукового образца, анализатора и монохроматора. Рентгеноакустический метод исследования дефектной структуры статически и динамически нагруженных кристаллов.

4. Рентгеноакустическая спектроскопия с разрешением по времени, перспективная для рентгеноспектрального анализа, резонансной дифрактометрии и модуляционной рентгеновской спектроскопии.

5. Методы изучения дефектной структуры с применением многоволновой дифракции, обладающие большей чувствительностью к дефектам по сравнению со стандартной двухволновой дифрактометрией. Перестройка условий многоволновой дифракции с помощью ультразвука.

6. Обнаружение и исследование эффекта образования доменов неферроэлектрического типа при воздействии на пьезоэлектрический кристалл  $\text{TeO}_2$  тетрагональной симметрии электрическим полем.

**Апробация.** Основные результаты работы изложены в 85 (в том числе 10 приглашенных) докладах на всероссийских и международных конференциях.

**Публикации.** Основные результаты исследований изложены в 105 публикациях (в том числе в 19-и статьях в рецензируемых журналах, входящих в перечень ВАК и индексируемых WoS).

**Личный вклад автора.** Все проведенные экспериментальные работы проводились лично автором или под руководством автора совместно с П.А. Просековым, А.В. Таргонским, Н.В. Марченковым. Постановка работ и результаты экспериментов обсуждались с М.В. Ковальчуком и Ю.В. Писаревским, в соавторстве с В.Г. Коном проведены расчеты многоволновых взаимодействий в кристалле парателлурита и рентгеноакустических взаимодействий в кристалле германия. В соавторстве с А.Н. Даринским проведены расчеты пространственного распределения упругих деформаций в колеблющихся элементах.

**Структура и объем диссертации.** Диссертация состоит из введения, шести глав, заключения и списка литературы, изложенных на 419 страницах, включает 232 рисунка, 15 таблиц и список литературы из 391 наименований. Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институте кристаллографии им. А.В. Шубникова Российской академии наук в соответствии с планом научных работ лаборатории Рентгеновских методов анализа и синхротронного излучения.

**Благодарности.** Автор благодарен своим учителям член-корр. РАН профессору М.В. Ковальчуку и д.ф.-м.н. Ю.В. Писаревскому. Д.ф.-м.н. В.Г. Кону и д.ф.-м.н. А.Н. Даринскому за ценные консультации и помощь в расчетах, к.ф.-м.н. П.А. Просекову, к.ф.-м.н. А.В. Таргонскому, к.ф.-м.н. Н.В. Марченкову, совместно с которыми проводились значительная часть экспериментов. Автор признателен н.с. О.Ю. Сильвестровой и н.с. Н.А.Моисеевой за полезные советы и помощь в расчетах анизотропии упругих свойств кристаллических материалов, а также д.ф.-м.н. Л.А. Фейгину, к.ф.-м.н. В.В. Лидеру, д.ф.-м.н. Ф.Н. Чуховскому и д.ф.-м.н. В.М. Каневскому за полезные советы при обсуждении экспериментальных результатов и их интерпретации.

**Во введении** дана общая характеристика работы. Определена область исследования и сформулированы основные положения диссертации: актуальность, научная новизна и практическая ценность полученных результатов.

**Первая глава** представляет обзор экспериментальных и теоретических работ в области методов рентгеновской дифракционной диагностики кристаллов в условиях динамических воздействий. Работы по изучению и использованию рентгеноакустических взаимодействий в целом представляют собой три больших группы. Публикации первой группы касаются исследования физики рентгеноакустических взаимодействий [1], вторая группа отражает наиболее массовую часть работ по использованию рентгеновского излучения для контроля акустических колебаний и волн. Третья группа исследований, к которой относится и настоящая работа, представляет результаты усилий по разработке методов управления параметрами рентгеновского излучения. Отмечается, что, в работах Д.В. Рошупкина и Э.В. Золотоябко [2,3] была успешно реализована модуляция интенсивности рентгеновского пучка с применением объемных и поверхностных акустических волн.

Представлен анализ физики взаимодействия в различных диапазонах спектра ультразвука. Показано, что физика взаимодействия существенно зависит от соотношения длины ультразвуковой волны и размера (по направлению смещения) области дифракции рентгеновского пучка. Выделены несколько характерных случаев рентгеноакустического взаимодействия. Отмечается, что область низких частот ультразвука, оказалась особо интересной для реализации управления параметрами рентгеновского излучения, т.к. с помощью длинноволнового ультразвука возможно воздействовать на рентгеновскую дифракцию аналогично повороту или изгибу статического рентгенооптического элемента.

Рассмотрены работы по изучению особенностей кристаллической и дефектной структуры кристаллов при воздействии электрического поля. Отмечается, что первые работы носили качественный характер, проводились в

схеме низкого разрешения и посвящены изучению изменений дифракционной картины образцов. Дальнейшие работы посвящены количественным оценкам и измерениям пьезоэлектрических констант в различных кристаллах, показавшие высокую точность рентгеновских методов.

Дан обзор методов многоволновой дифракции, применяемых в работе для изучения дефектной структуры кристаллов. Физика многоволновых взаимодействий активно развивалась в значительной степени работами М.В. Ковальчука, В.Г. Кона, Д. Чанга, Р. Колеллы и их учеников [4 - 7]. В работах показаны широкие возможности метода по получению структурных данных с использованием фазовой чувствительности многоволновой дифракции. Изначально многоволновая дифракция изучалась в схеме низкого разрешения (схема Реннингера [8]), впоследствии М.В. Ковальчуком и соавторами были реализованы уникальные экспериментальные схемы многоволновой дифракции с применением синхротронного излучения, позволившие наблюдать тонкие эффекты интерференционного взаимодействия. При этом следует отметить, что подавляющее большинство экспериментов по многоволновой дифракции проведено в условиях применения синхротронного излучения, вследствие возможности подстройки длины волны. В лабораторных условиях возможности реализации многоволновых взаимодействий в схеме высокого разрешения ограничены фиксированной длиной волны рентгеновского источника.

**Вторая глава** посвящена описанию аппаратурно-методических подходов, разработанных для исследования кристаллов в условиях статических и динамических воздействий методами рентгеновской дифрактометрии.

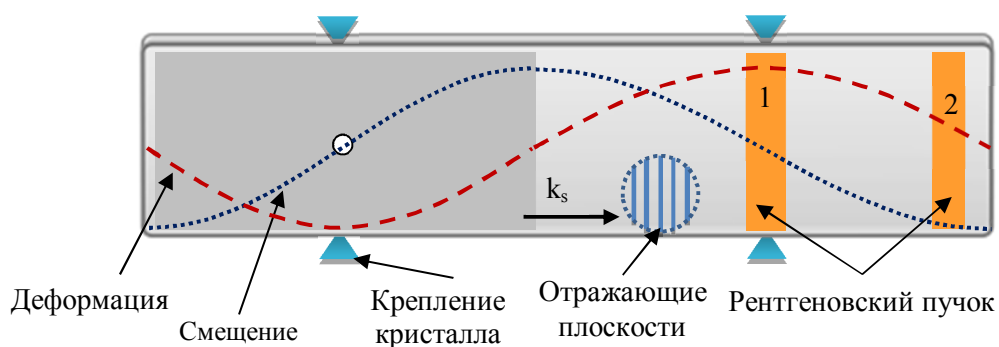
Измерительный комплекс, разработанный и применяемый в работе для исследования кристаллов в условиях воздействия ультразвука и электрических полей, был основан на рентгеноакустическом дифрактометре, системе возбуждения и контроля ультразвуковых колебаний в кристаллах и системе многоканального временного анализа рентгеновского пучка. Комплекс позволял проводить рентгеновские исследования колеблющихся кристаллов в

стробоскопическом одноканальном и многоканальном режимах, изучать на этой основе рентгеноакустические взаимодействия, особенности дифракции на ультразвуке и применять обнаруженные эффекты для управления рентгеновскими пучками и исследования кристаллов.

Для эффективного ультразвукового воздействия на кристаллическую решетку были разработаны методики создания рентгеноакустических резонаторов, включающие в себя расчет параметров кристаллических элементов, моделирование распределения ультразвуковой деформации в кристаллах и набор технических операций по их изготовлению: ориентация, распиловка, склейка, подготовка поверхности и нанесение проводящего слоя.

Выбор ориентации и геометрии кристаллических пластин для изготовления рентгеноакустических элементов проводился на основе изучения анизотропии упругих свойств кристаллов, расчета и анализа диаграмм распространения фазовых и групповых скоростей. На основании расчетов проводился выбор оптимальных срезов и размеров кристаллов, обеспечивающих преобладание основной продольной моды колебаний.

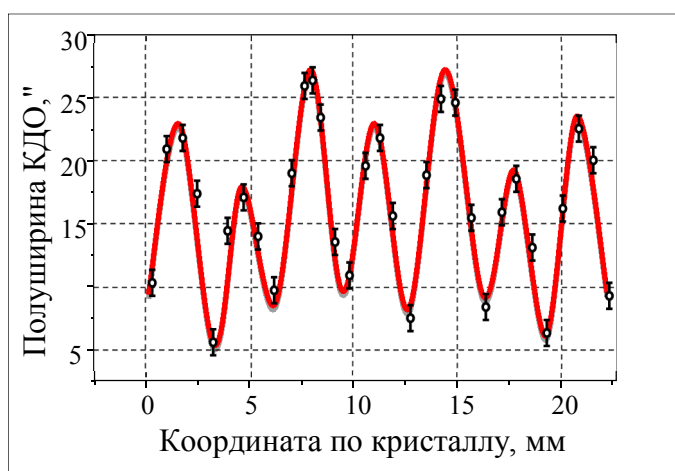
Для создания рентгеноакустических элементов, применялись кристаллы, обладающие совершенством кристаллической структуры и высокой яркостью отражений (Si или Ge, SiO<sub>2</sub>, TeO<sub>2</sub>, LGS, LGT). Для возбуждения ультразвука в пьезоэлектрических кристаллах половина кристаллической пластины покрывалась тонким слоем металла, а вторая половина использовалась для дифракции рентгеновского пучка (**рис. 1**). Для кристаллов, не обладающих



**Рис. 1)** схема монолитного резонатора Лауэ дифракции. Рентгеновский пучок в области (1) постоянной и градиентной (2) деформации кристаллической решетки.

пьезоэлектрическими свойствами, применялась схема составного резонатора: рентгенооптический и пьезоэлектрический кристалл, покрытый электродами, соединялись (склеивались) торцевыми гранями. Резонаторы позволяли при формировании стоячей ультразвуковой волны создавать условия медленно меняющейся деформации в области дифракции рентгеновского пучка.

Несмотря на проведенные расчеты чистой моды колебаний, рентгеновские исследования распределения ультразвуковой деформации часто выявляли наличие коротковолновой модуляции, накладывающейся на классическое полуволновое распределение чистой моды колебаний (рис. 2).

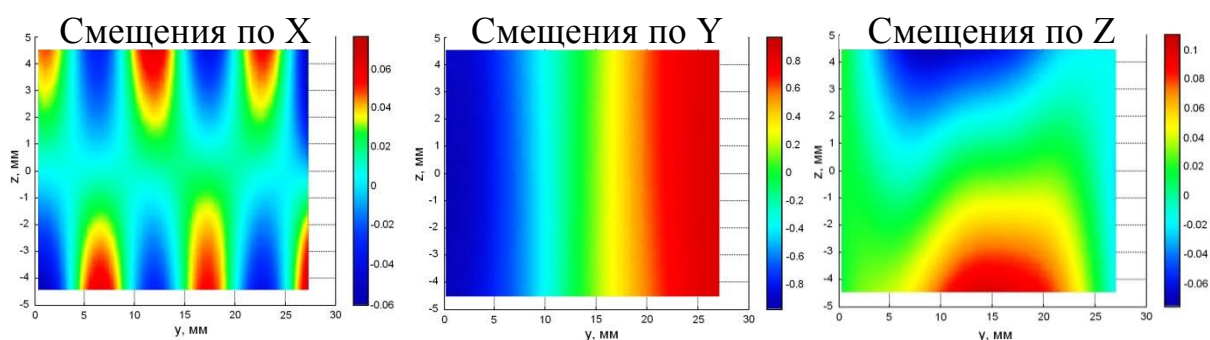


*Рис. 2. Распределение полуширины КДО при включенном ультразвуке, отражающее распределение амплитуды деформации для составных резонаторов  $SiO_2+Ge$ . На «полуволновую» огибающую, накладывается пространственная модуляция с коротким периодом.*

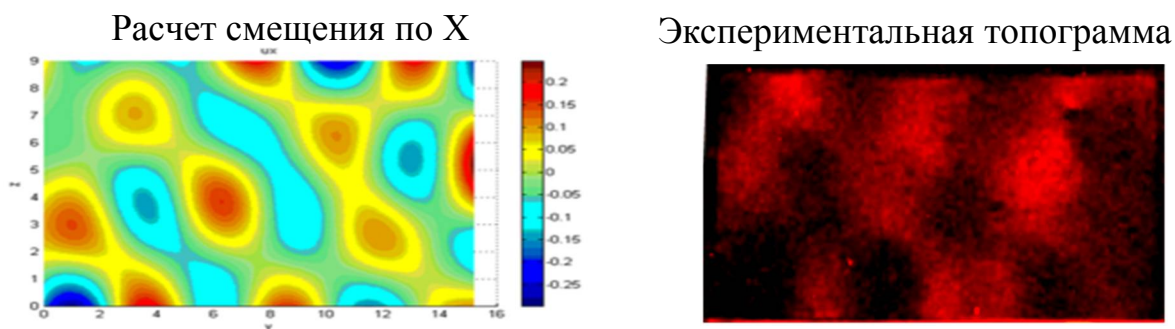
Разработанные алгоритмы численного моделирования распределения амплитуды смещений в резонаторах методом конечных элементов позволили объяснить физическую природу наблюдаемых явлений. В результате проведенных расчетов было показано возбуждение в используемых составных резонаторах смешанных колебаний со смещениями по всем трем направлениям. Как и следовало ожидать, продольные смещения обладают наибольшей амплитудой, причем зависимость от координаты  $Y$  продольных смещений достаточно точно описывается формулой  $\cos(\pi y/L)$ . Также в процессе колебаний пластины возникают смещения по осям  $X$  и  $Z$ , амплитуда которых достигает значений 10-15% от амплитуды продольных смещений. Распределение смещений по толщине и ширине пластины носит крайне неоднородный характер. Результатом чего является формирование сложной картины распределения смещений по всему объему пластины, которая

значительно отличается от «полуволнового» распределения, предсказанного простой одномерной моделью. Точность проведенных расчетов подтверждает соответствие эксперименту: для выбранных констант, полученные методом конечных элементов частоты собственных колебаний резонаторов, отличаются от экспериментальных частот менее чем на 1%.

На **рис. 3** представлены примеры расчета распределений амплитуд ультразвуковых смещений по трем координатам  $X$ ,  $Y$ ,  $Z$  на поверхности  $XY$  кристаллической пластины  $Si$  и результаты сравнения эксперимента и моделирования распределения деформации в кристаллической пластине  $Ge$ , имеющей сложное пространственное распределение.



**Рис. 3.** Распределение смещений на поверхности ( $XY$ ) кристаллической пластины  $Si$  при резонансе.

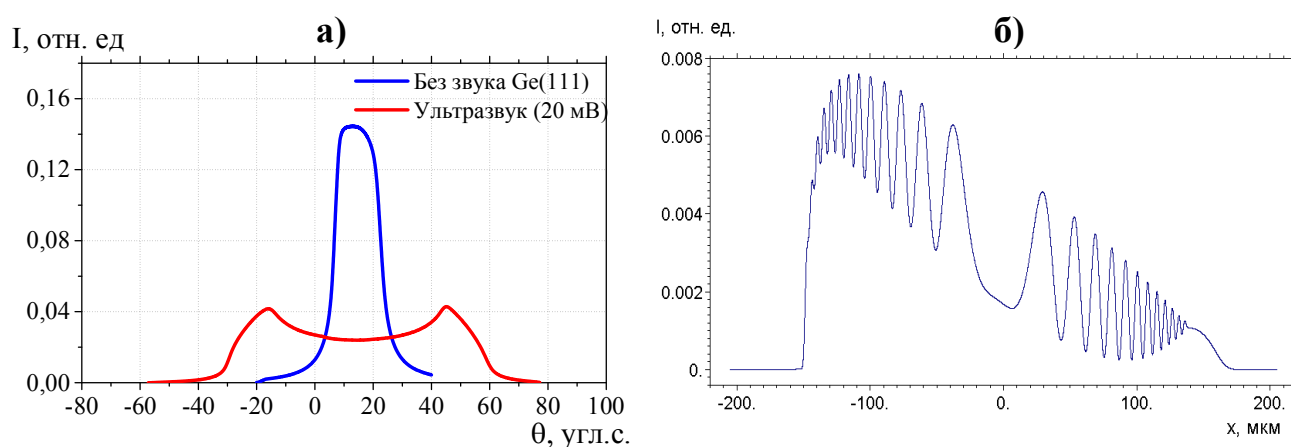


**Рис. 4.** Сравнение расчетного распределения смещений для пластины кристалла  $Ge$  и топограммы в геометрии Брэгга.

Для анализа и интерпретации данных рентгеновских экспериментов были разработаны методики расчета и моделирования КДО при ультразвуковых деформациях кристаллической решетки. С применением классических подходов, основанных на динамической теории дифракции, с учетом особенностей экспериментальной схемы, а также с применением метода «траекторий» [9], удобного подхода для решения уравнений Такаги для



деформированных кристаллических решеток, проводилось моделирование интегральных и стробоскопических кривых, с однородным и градиентным распределением ультразвуковой деформации в области дифракции **рис. 5**.



**Рис. 5.** Результаты моделирования: **а)** расчет интегральных кривых при воздействии ультразвука; **б)** моделирование рентгеновского пучка методом траекторий;

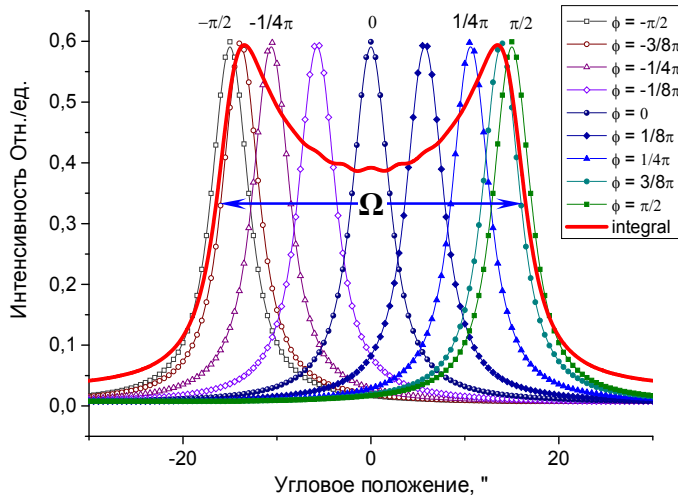
**Третья глава** посвящена разработке методов немеханического отклонения рентгеновского пучка, разработке рентгеноакустического дифрактометра для изучения динамики дефектной структуры кристаллических материалов и исследованию поведения различных кристаллов при высоких деформационных нагрузках.

На основе обнаруженных рентгеноакустических эффектов предложен и реализован метод немеханического отклонения рентгеновского пучка и методы быстрого измерения КДО на основе модуляции с помощью ультразвука параметра кристаллической решетки одного из элементов рентгенооптической схемы. Метод позволяет проводить прецизионные измерения с высоким разрешением по времени без использования сложных механических систем.

При дифракции рентгеновского пучка на кристалле, параметр решетки которого меняется пространственно-однородно, периодически во времени (по синусоидальному закону):  $d(t) = d_0 + \Delta d \cdot \sin(\omega t + \varphi)$ , изменение межплоскостного расстояния вызывает такое же периодическое изменение угла дифракции (угла Брэгга):

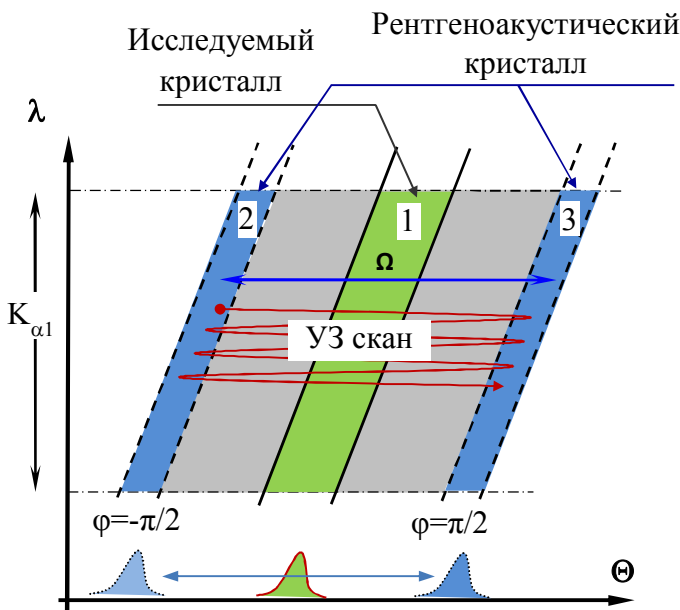
$$\theta(t) = \arcsin(\lambda / (2 * (d_0 + \Delta d * \sin(\omega t + \varphi))))).$$

На **рис. 6** представлен контур КДО, рассчитанный для интегрального по времени измерения режима (толстая кривая) и образующие его компоненты, в сумме дающие эту кривую, – стробоскопические КДО для нескольких значений фаз ультразвуковых колебаний.



**Рис. 6.** Двухкристальная интегральная КДО с включенным ультразвуком и стробоскопические кривые, соответствующие различным фазам.  $\Omega$  – Полуширина интегральной КДО (угловая область сканирования).

Кривые, рассчитанные для разных фаз, имеют разное брэгговское положение. Ультразвуковая деформация приводит к изменению угла дифракции – угловому смещению кривой. Возможность анализа дифракционного пика другого кристалла, с применением ультразвукового управления двухкристальной схемой иллюстрирует диаграмма Дю-Монда (**рис. 7**): при достаточной амплитуде деформации рентгеноакустический элемент позволяет просканировать всю область отражения второго кристалла.

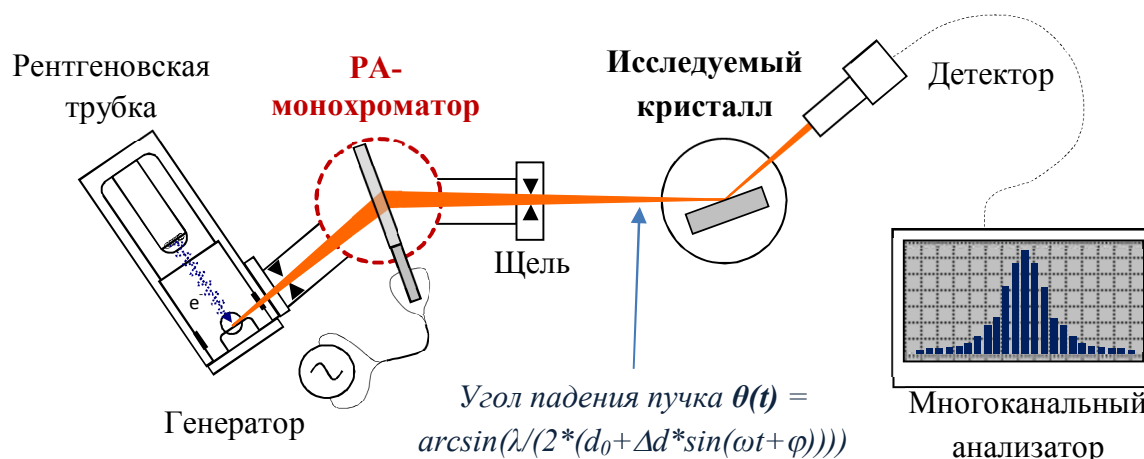


**Рис. 7.** Диаграмма Дю-Монда двухкристальной схемы с применением рентгеноакустического элемента. Зеленая область в центре 1 – область отражения исследуемого кристалла, области 2 и 3 – области отражения рентгеноакустического элемента в фазах  $-\pi/2$  и  $\pi/2$ . Область между 2 и 3 – область сканирования рентгеноакустического кристалла  $\Omega$  (полуширина интегральной КДО на рис. 5).

Таким образом, рентгеноакустический кристалл может быть применен в качестве перестраиваемый рентгенооптический элемент – монохроматор или анализатор. Запись КДО с использованием рентгеноакустического кристалла осуществляется при неподвижных элементах рентгеновской оптики за счет ультразвуковой модуляции угла падения пучка на исследуемый кристалл, который зависит от фазы колебаний.

На **рис. 8** представлены двухкристальная схема измерения КДО на основе перестраиваемого монохроматора. Рентгеноакустический монохроматор установлен в расходящийся рентгеновский пучок, перед образцом.

В схеме анализатора возможна 2х и 3х - кристальная компоновка, когда рентгеноакустический анализатор устанавливается после исследуемого кристалла.



**Рис. 8.** Рентгенооптическая схема на основе рентгеноакустического (РА) монохроматора для измерения КДО с временным разрешением.

При записи кривой проводится измерение зависимости интенсивности дифрагированного пучка от фазы ультразвуковых колебаний (т.е. от угла его падения на образец). Накопление рентгеновского сигнала осуществляется с применением многоканального временного анализатора. После измерений для получения традиционной КДО, на основе предварительной калибровки резонатора фазовые координаты переводятся в угловые.

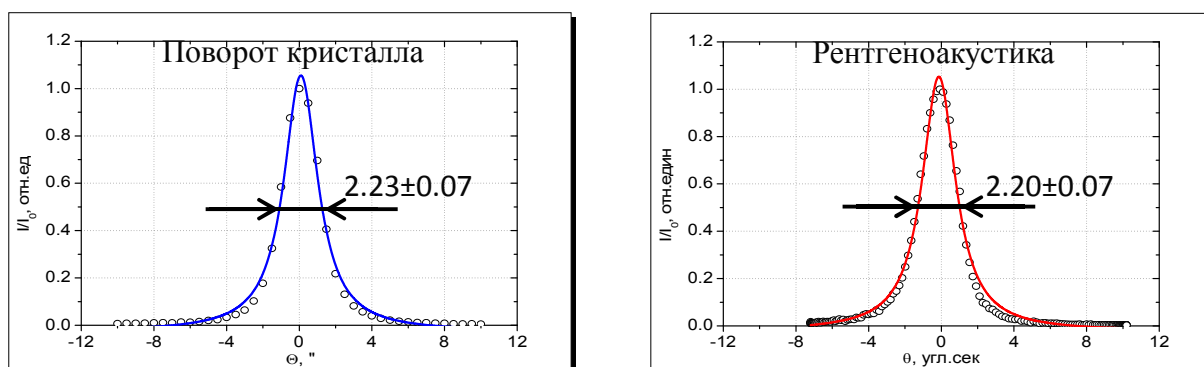
На основе предложенных схем, на базе рентгеновского дифрактометра ТРС был разработан рентгеновский прибор нового класса – рентгеноакустический

дифрактометр, позволяющий при неподвижных кристаллах измерять КДО посредством акустической развертки рентгеновского пучка.

На рис.9 приведены КДО, измеренные рентгеноакустическим методом, в сравнении с КДО, измеренными традиционным методом на основе механического поворота кристалла. Результаты измерения КДО рентгеноакустическим способом демонстрируют полное соответствие механическому методу.

Угловое разрешение метода определяется минимально возможным шагом изменения фазы при стробоскопической регистрации, т.е. количеством каналов временного многоканального анализатора и зависит от таких параметров как частота ультразвука и амплитуда. Проведенные оценки показывают, что угловое разрешение метода может достигать  $0,05''$ .

а) кремний Si (220)



б) фторид лития LiF (200)

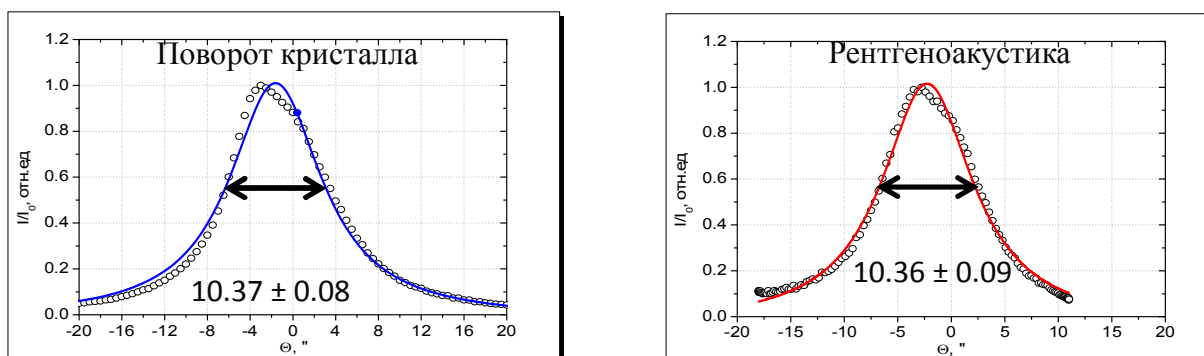
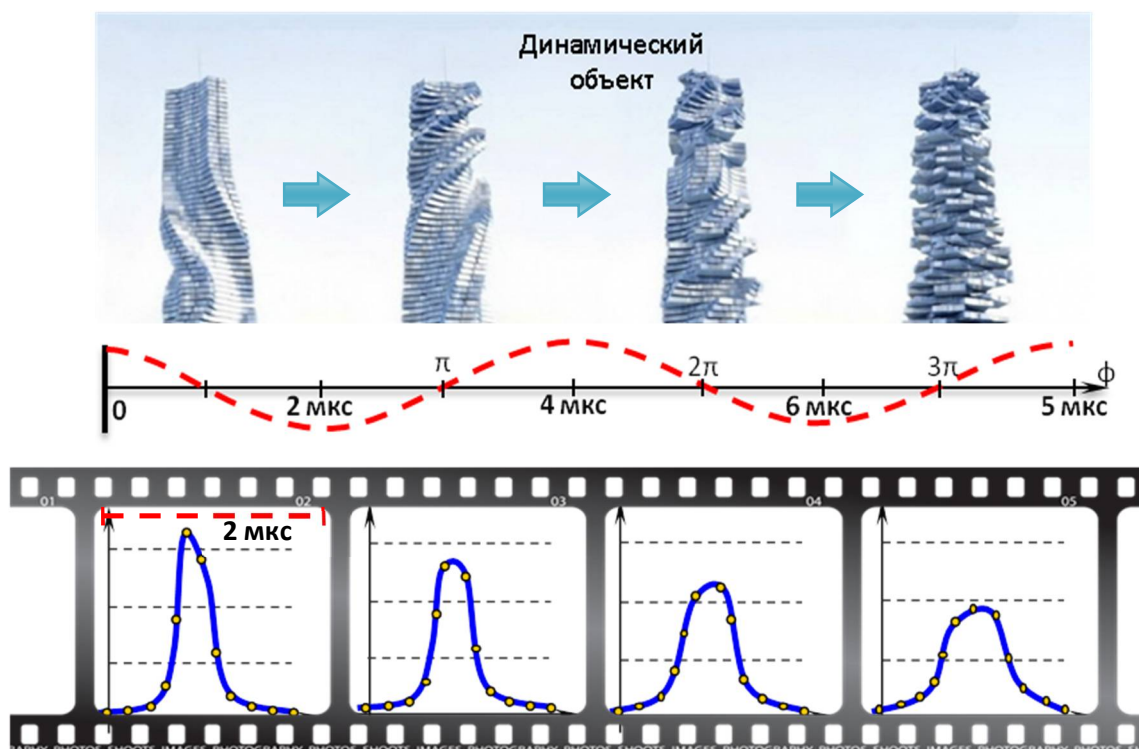


Рис. 9. Примеры КДО, измеренные рентгеноакустическим способом в сравнении с традиционным: а) кристалл кремния, КДО измерена с высоким угловым разрешением ( $\sim 0.1''$ ); б) КДО кристалла фторида лития имеет специфический участок.

При достаточной интенсивности рентгеновского источника представляется возможным измерение КДО за время равное половине периода колебаний рентгеноакустического анализатора. Время регистрации кривой может достигать  $2 \cdot 10^{-6}$  секунд. Таким образом, динамический процесс, связанный с изменением параметра кристаллической решетки, можно представить в виде набора кадров, представляющих собой КДО (рис. 10).



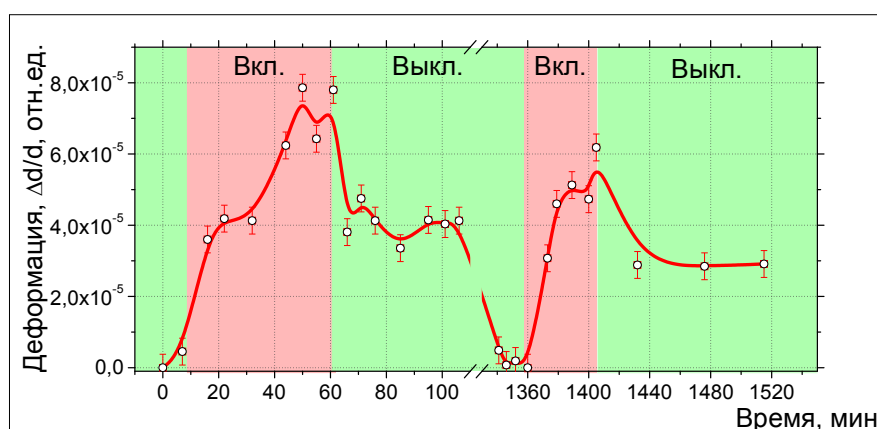
*Рис. 10. Схема эксперимента измерения эволюции КДО динамического*

Диапазон углового сканирования при измерении КДО с помощью рентгеноакустического резонатора определяется амплитудой деформации ультразвуковой волны и ограничен пределом прочности кристалла. При увеличении угла Брэгга – переходу на более высокие порядки отражения можно существенно увеличить диапазон углового сканирования. В таблице представлены диапазоны угловой перестройки рентгенооптической схемы при использовании дальних порядков отражения для рентгеновского резонатора Si. Также широкий диапазон углового сканирования можно получить для мягкого рентгеновского излучения.

Таблица 1. Диапазоны перестройки угла для различных рефлексов и длин волн.

Отражение	Длина волны, $\lambda$	Брэгговский угол, град	Деформация, отн. ед.	Диапазон углового сканирования, "
2 2 0	0,709	10	0,002	80
4 4 0	0,709	22	0,002	160
8 8 0	0,709	48	0,002	450
10 10 0	0,709	67	0,002	1000
2 2 0	3,83	88,7	0,002	9300

С применением разработанных методов и рентгеновской аппаратуры проведено изучение деформационных процессов в кристаллах Ge, Si, SiO<sub>2</sub>, TeO<sub>2</sub>, LiF при возбуждении ультразвука большой амплитуды. Продемонстрированы новые возможности исследования динамики структуры кристаллических объектов в условиях вибрационных деформационных нагрузок. В зависимости от времени и амплитуды ультразвукового воздействия исследовано динамическое поведение дефектной структуры кристаллов TeO<sub>2</sub> и LiF. На **рис. 11** представлен временной процесс деформационного поведения кристалла LiF при включении и выключении ультразвука. При включении ультразвука рост деформации параметра кристаллической решетки происходит не мгновенно, а за некоторое время и кривая роста имеет аномальные метастабильные области. При выключении ультразвука виден процесс релаксации, что напрямую связано с изменением дефектной структуры.



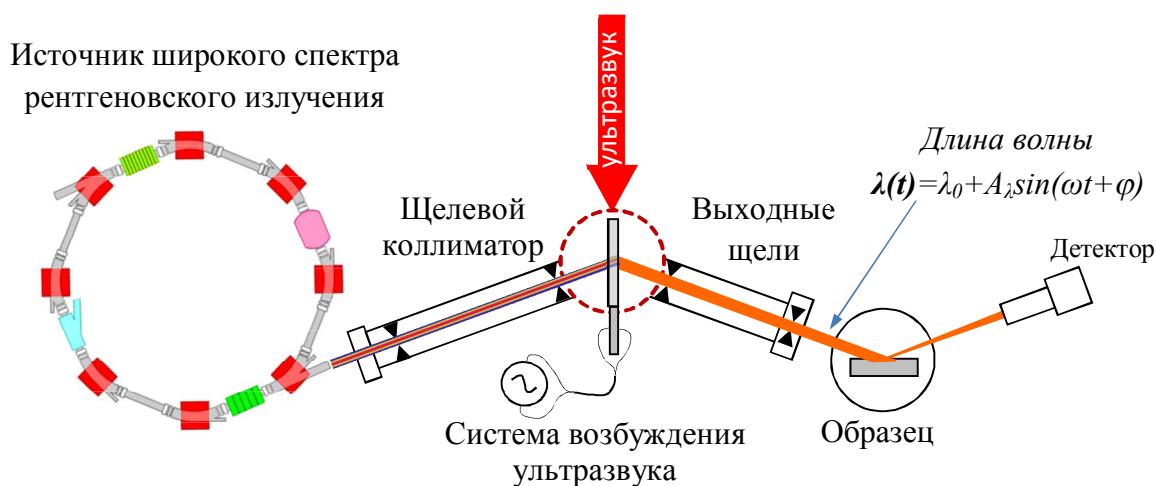
**Рис. 11.** Изменение амплитуды деформации  $\Delta d/d_0$  кристалла фторида лития LiF(200) в зависимости от длительности ультразвукового воздействия при постоянной амплитуде. Красные области – ультразвук включен, зеленые области – ультразвук выключен.

**Четвертая глава** посвящена разработке методов быстрого управления длиной волны рентгеновского пучка и управлению фокусировкой рентгеновского пучка с применением рентгеноакустических эффектов.

В первой части представлены результаты экспериментальной реализации метода быстрой перестройки (сканирования) длины волны рентгеновского пучка на основе ультразвуковой модуляции параметра кристаллической решетки. Осуществлены различные рентгенооптические схемы, позволяющие перестраивать энергию рентгеновского пучка и проводить исследования с применением методов рентгеновской спектроскопии (в том числе и модуляционной рентгеновской спектроскопии) с разрешением по времени.

При фиксированном угле падения параллельного немонахроматичного рентгеновского пучка на рентгеноакустический кристалл модуляция параметра кристаллической решетки приведет к модуляции длины волны дифрагированного пучка  $\lambda(t) = \lambda_0 + A_\lambda \sin(\omega t + \varphi)$ . С применением стробоскопической техники можно реализовать управление длиной волны рентгеновского излучения.

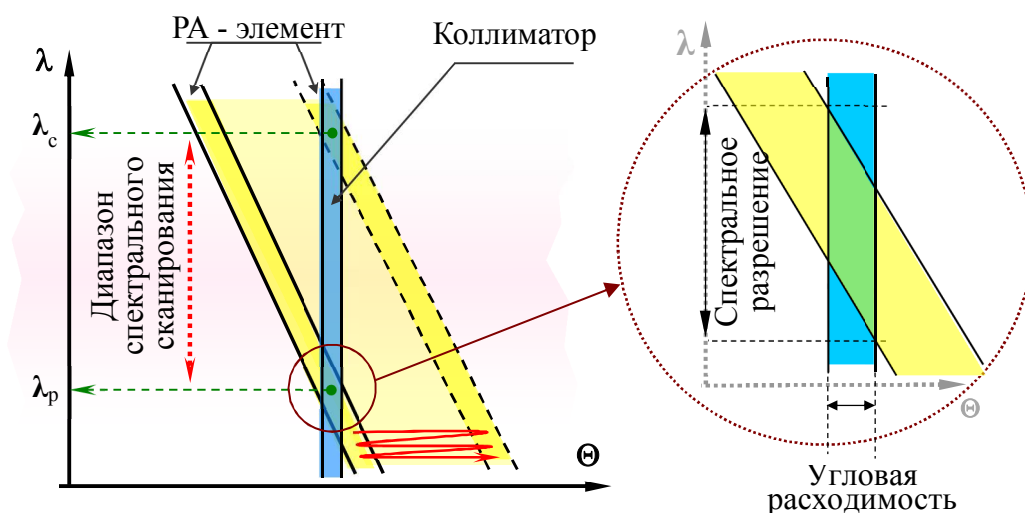
На **рис. 12** представлена рентгенооптическая схема перестройки длины волны рентгеновского пучка с применением щелевого коллиматора. Параллельный рентгеновский пучок, расходящийся по спектру, направляется



**Рис. 12.** Рентгенооптическая схема на основе щелевого коллиматора и рентгеноакустического монохроматора для реализации управления длиной волны рентгеновского пучка.

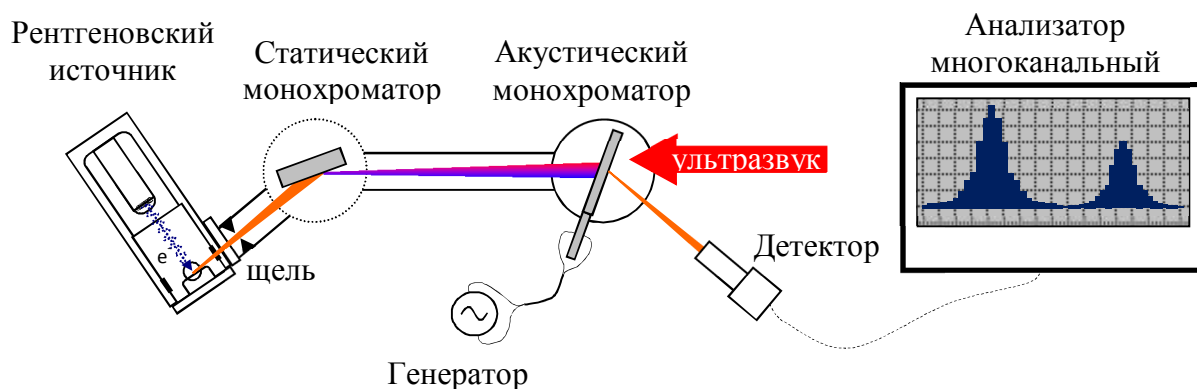
на область однородной ультразвуковой модуляции параметра решетки рентгеноакустического кристалла, где происходит его дифракция.

На диаграмме Дю-Монда показан принцип изменения длины волны (выделение части и перестройка спектрального диапазона) в однокристалльной схеме с применением щелевого коллиматора (**рис. 13**).



**Рис. 13.** Диаграмма Дю-Монда, иллюстрирующая принцип перестройки длины волны рентгеновского пучка с помощью рентгеноакустических (РА) оптических элементов.

На **рис. 14** представлена схема спектрального анализа с применением 2х кристаллов - монохроматоров: статического и рентгеноакустического. Она обладает более высоким спектральным разрешением по сравнению со схемой на основе коллиматора и не критична к параллельности пучка, но при перестройке длины волны в данной схеме меняется также и угол



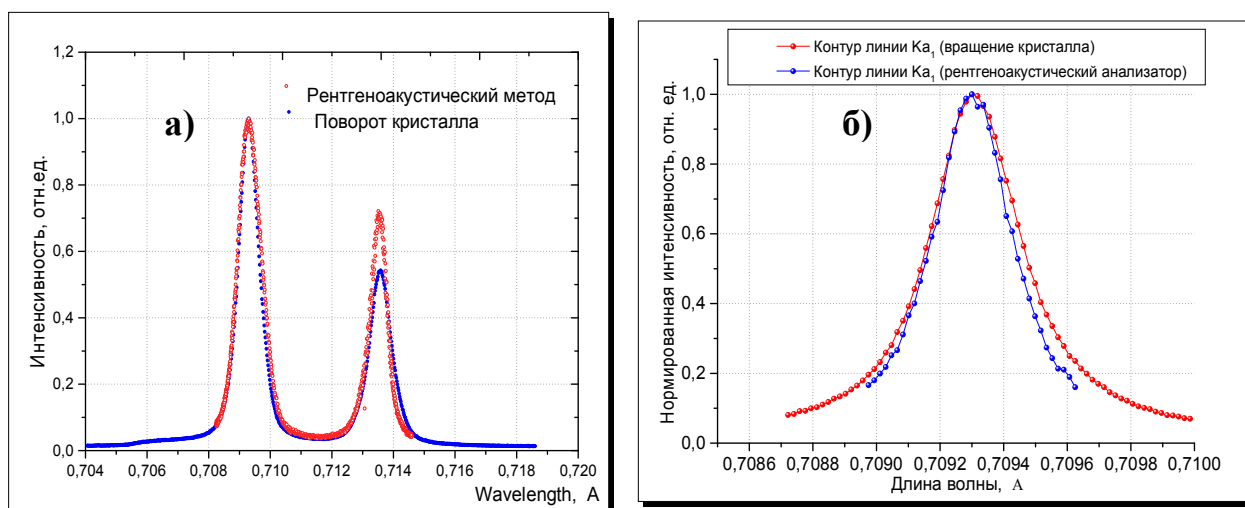
**Рис. 14.** Рентгенооптическая схема на основе 2х монохроматоров для управления длиной волны и анализа рентгеновского спектра.



рентгеновского пучка, дифрагированного вторым кристаллом. В связи с этим данная схема больше подходит для анализа спектра рентгеновского излучения.

Разработанные рентгенооптические схемы были протестированы в лабораторных условиях с применением рентгеновской трубки с молибденовым анодом. На рис. 15 представлен контур характеристической линии  $K_{\alpha 1}$  рентгеновского источника с молибденовым анодом, измеренный с помощью рентгеноакустического элемента в сравнении со спектром, записанным при механическом повороте кристалла. Перевод из фазовых координат в координаты длин волн осуществлялся на основе предварительной калибровки резонатора, описанной в главе 4 и дополненной калибровкой угловой шкалы гониометра по характеристическим линиям  $K_{\alpha 1}$  и  $K_{\alpha 2}$ .

Оценки диапазонов быстрой спектральной перестройки рентгеновского излучения, проведенные на основе полученных данных, составляют для рефлекса 220 кристалла кремния в геометрии Брэгга –  $0,006 \text{ \AA}$  ( $\Delta\lambda/\lambda - 0,009$ ) и  $0,0013 \text{ \AA}$  ( $\Delta\lambda/\lambda - 0,002$ ) в геометрии Лауэ.



**Рис. 15.** а) Дублет спектральной линии  $Mo K\alpha$ , измеренный в однокристалльной схеме с коллиматором и б) линия  $K_{\alpha 1}$ , измеренная по двухкристалльной схеме в сравнении со спектрами, измеренными с помощью механического поворота кристалла.

Спектральное разрешение схем зависит от угла Брэгга и полуширин монохроматоров в общем случае определяется по формуле:

$$\delta\lambda/\lambda = (\omega_{m1} + \omega_{m2}) / (tg\theta_{m2} + tg\theta_{m2})$$

В таблице представлены диапазоны перестройки, достигаемые с использованием различных длин волн и различных рефлексов рентгенооптического элемента Si.

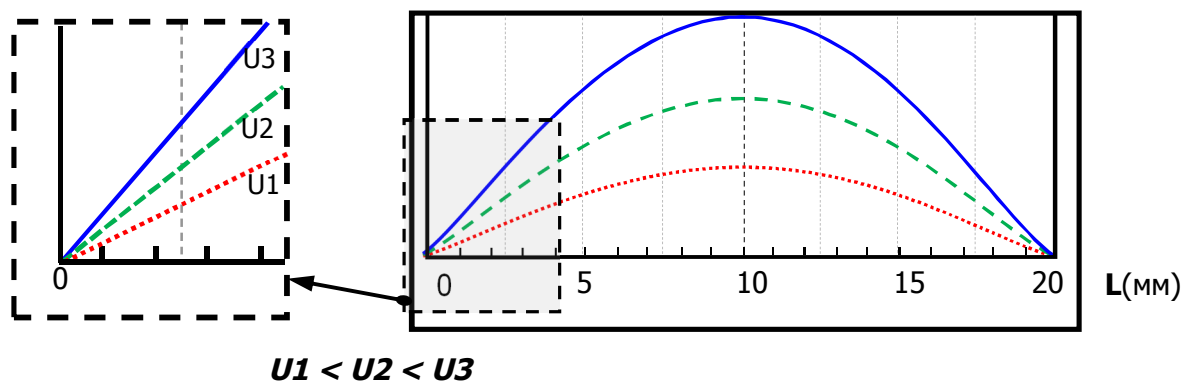
Таблица 2. Диапазоны перестройки длины волны.

Длина волны, А	Отражение	Брэгговский угол, град	Деформация, отн. ед.	Диапазон углового сканирования, "	Диапазон перестройки длин волн, А(эВ)
0,709	2 2 0	10	0,002	80	0,0015 (35)
1,54	2 2 0	24	0,002	180	0,003 (16)
0,3	4 4 0	9	0,002	65	0,0006 (81)
0,709	2 2 0	10	0,02 (изгиб)	570	0,015 (250)
3,83	2 2 0	88,7	0,002	9300	0,007 (120)

Во второй части четвертой главы представлены экспериментальные результаты по управлению расходимостью рентгеновского пучка на основе создания и управления градиентом деформации кристаллической решетки с помощью ультразвуковых колебаний. Было показано, что помощью длинноволнового ультразвука в области дифракции рентгеновского можно создавать линейно-неоднородные деформации кристаллической решетки. Условия дифракции, возникающие при этом, будут близки к тем, что создаются в градиентных статических оптических элементах, широко применяемых для управления сходимостью рентгеновского пучка, но с возможностью быстрой перестройки. С применением длинноволнового ультразвука созданы условия перестраиваемого градиента деформации и реализована фокусировка расходящегося пучка на основе амплитудного способа управления градиентом деформации.

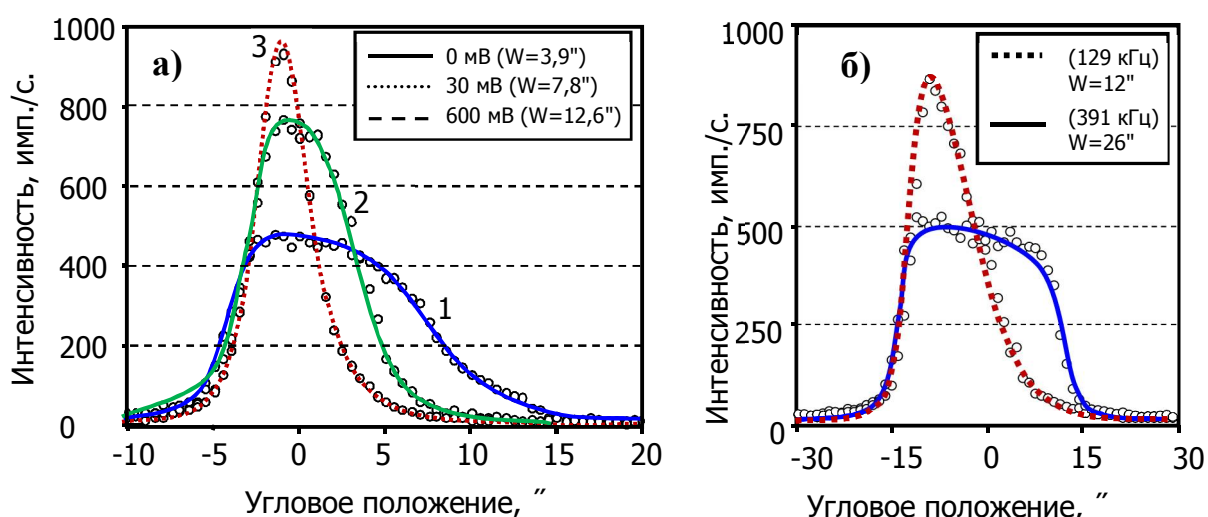
В проведенных экспериментах на основе изучения распределения ультразвуковых деформации рентгеновский пучок позиционировался на область кристалла с линейным градиентом деформации. Дифрагированный рентгеновский пучок регистрировался в стробоскопическом режиме в фазе максимального растяжения кристаллической решетки.

На **рис. 16** показана схема по управлению величиной градиента ультразвуковой деформации по ширине рентгеновского пучка с помощью варьирования амплитуды колебаний. Также было реализовано и частотное управление, когда градиент увеличивался при переходе на следующую гармонику.



**Рис. 16.** Возрастание градиента ультразвуковой деформации при увеличении амплитуды колебаний.

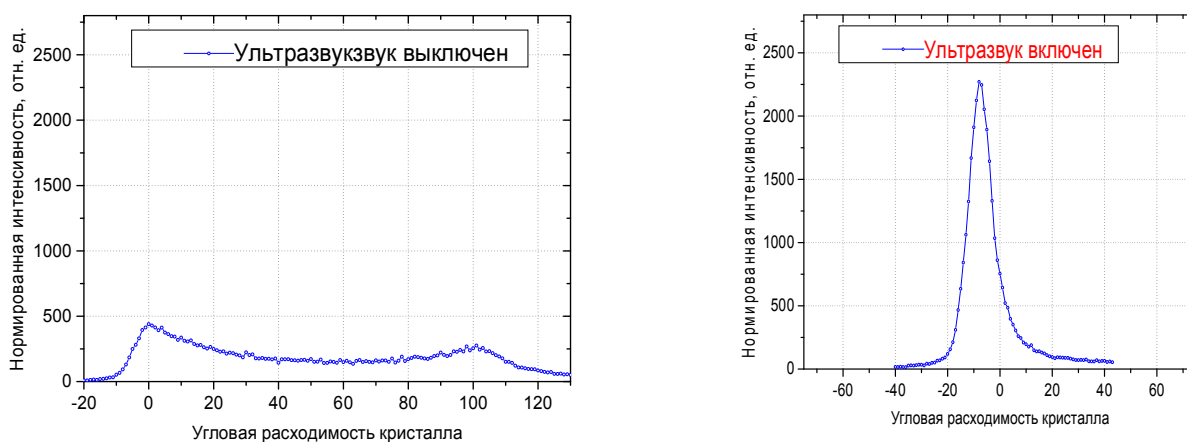
Экспериментально зарегистрированное изменение расходимости рентгеновского пучка для амплитудного и частотного управления представлено на **рис. 17**. Кривые измерены стробоскопическим образом для фазы максимальной деформации кристаллической решетки. Кривая 1 на **рис. 17а** измерена при выключенном ультразвуке, кривые 2 и 3 соответствуют



**Рис. 17.** КДО, измеренные для фазы максимального растяжения кристалла при различных амплитудах ультразвука для амплитудного управления (слева) и частотного (справа).

различной мощности ультразвука. На **рис. 17б** кривые измерены при возбуждении кристалла на первой и на третьей гармониках.

Были созданы градиенты величиной ( $\Delta d/dl$ ) до  $10^{-4}$  мм<sup>-1</sup> и показаны возможности управления градиентом деформации - величину угловой расходимости рентгеновского пучка удалось изменить в 3 раза (с 5 до 15 "). На **рис. 18** представлены результаты эксперимента по фокусировке расходящегося рентгеновского пучка с помощью градиентной ультразвуковой деформации. Угловая расходимость рентгеновского пучка уменьшена в 10 раз.



**Рис. 18.** Угловое распределение расходящегося рентгеновского пучка до и после включения ультразвука.

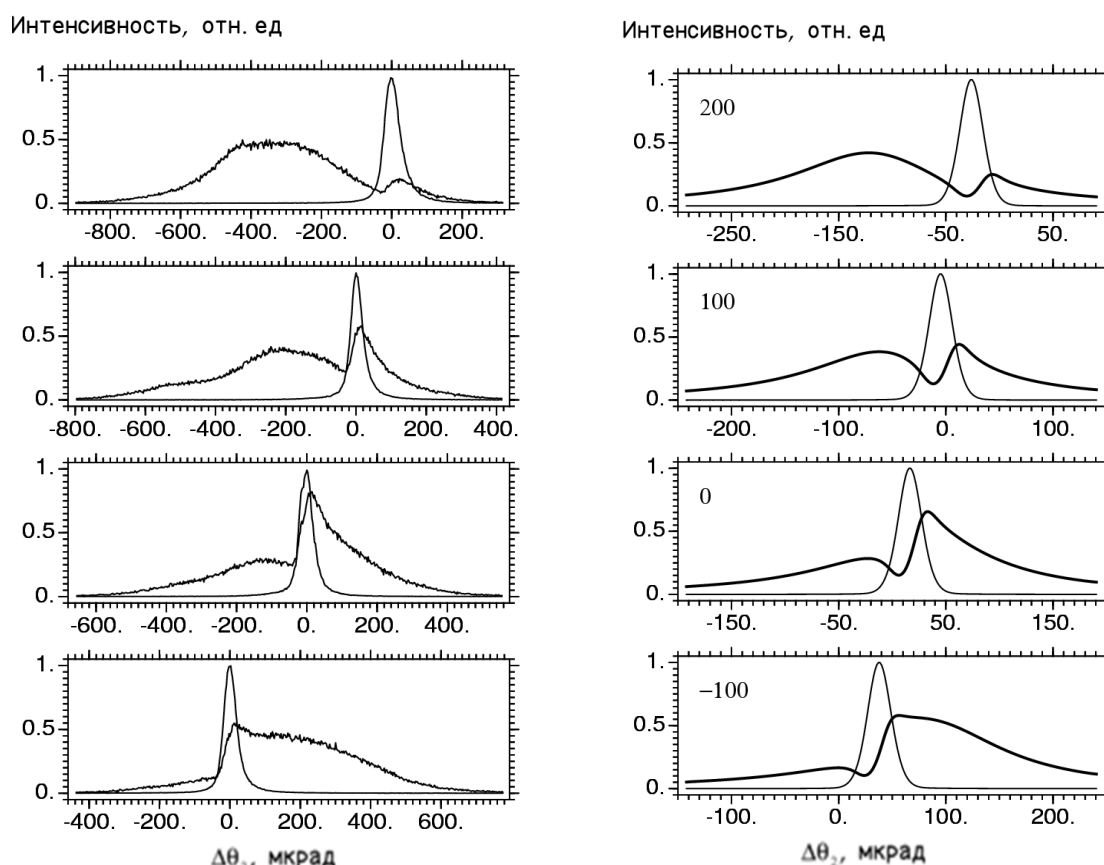
В пятой главе описаны методы исследования кристаллов с применением двух-трехкристальной двухлучевой дифрактометрии и фазочувствительных методик на основе многоволновой дифракции, в том числе в условиях возбуждения ультразвука. Решалась задача обеспечения эффективными и удобными методами исследования дефектной структуры применяемых в работе кристаллических материалов.

Многоволновая дифракция, при которой условия дифракции выполняются одновременно для нескольких систем кристаллических плоскостей, в отличие от двухволновой, чувствительна к искажениям кристаллической решетки сразу в нескольких кристаллографических направлениях и за счет внутренней интерференции дифрагированных волн в кристалле позволяет получать фазовую информацию непосредственно из эксперимента. Тем самым,

многоволновая дифракция интересна с точки зрения различных практических приложений по изучению дефектной структуры кристаллических объектов.

Традиционно эксперименты по многоволновой дифракции проводились с применением СИ в первую очередь из-за возможности подстройки длины волны и коллимации пучка СИ в двух направлениях. В лабораторных условиях фиксированная длина волны характеристической линии рентгеновской трубки и особенности рентгенооптических схем затрудняют реализацию многоволновой дифракции, особенно в схеме высокого разрешения.

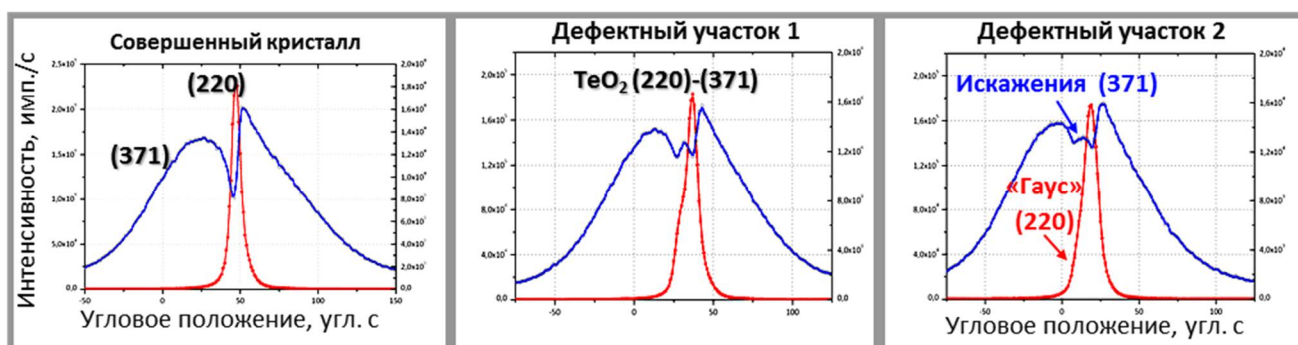
На примере кристалла  $\text{TeO}_2$  исследованы фундаментальные особенности многоволнового взаимодействия при трехволновой дифракции (рис. 19). Обнаружен практически не изученный случай суперпозиции амплитудного и виртуального типов рассеяния, характерный сильным изменением



**Рис. 19.** Результаты расчета (левый столбец) и экспериментальные результаты по измерению (правый столбец) кривых дифракционного отражения многоволновых рефлексов при изменении полярного угла при различных значениях азимутального угла (шаг - 10 угловых минут).

интенсивности слабого рефлекса, которое наблюдается далеко за пределами области трехволнового взаимодействия. При этом наблюдается асимметрия поведения интенсивности по разные стороны трехволновой области: рост с одной стороны и подавление с другой.

При сильном различии в амплитудах многоволновых отражений за счет фазового сложения в области точного многоволнового взаимодействия существенно повышается чувствительность слабого рефлекса к искажениям кристаллической решетки, вызванных неоднородностью кристаллической решетки. Это открывает широкие возможности для прецизионного исследования дефектной структуры кристаллов, даже в тех случаях, когда обнаружение дефектов находится на грани чувствительности методов двухкристалльной рентгеновской дифрактометрии.



*Рис. 20. Сравнение чувствительности двухволновой и многоволновой дифракции к дефектам кристаллической решетки.*

На **рис. 20** представлены результаты изучения многоволнового взаимодействия в кристалле  $\text{TeO}_2$  на совершенных и дефектных участках кристалла, демонстрирующие высокую чувствительность многоволновой КДО рефлекса (371) к дефектам кристаллической решетки в сравнении с двухволновой КДО рефлекса (220).

Показаны три характерных случая для кристалла  $\text{TeO}_2$ :

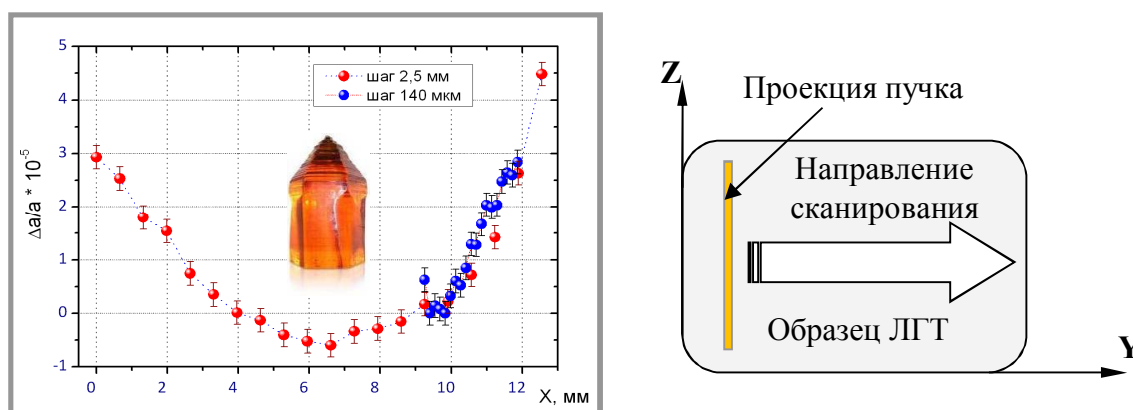
– участок с высоким совершенством кристаллической структуры (**рис. 20а**), на котором и двухволновая (220) и многоволновая (371) кривые имеют классический вид, характерный для бездефектного кристалла;

– дефектный участок 1 (рис. 20б) на котором обе кривые имеют существенные искажения;

– дефектный участок 2 (рис. 20в) на котором двухволновая кривая имеет классическую «гауссову» форму, а многоволновая кривая по-прежнему сильно искажена в области многоволнового (фазового) взаимодействия.

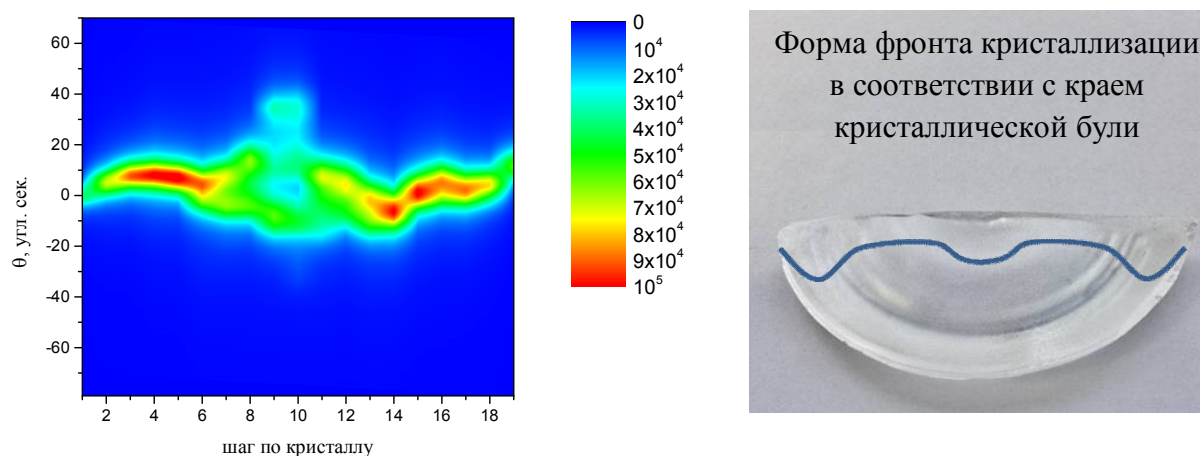
Расстояние между максимумами рефлексов, участвующих в многоволновом взаимодействии, также крайне чувствительно к искажениям кристаллической решетки и позволяет получать количественную информацию об изменении параметра кристаллической решетки в образце с пространственным разрешением несколько десятков микрон и относительной чувствительностью, не превышающей  $10^{-5}$ . Относительная простота реализации и малый диапазон углового сканирования ставит этот метод в ряд с такими широко применяемыми методами измерения параметра кристаллической решетки как метод Бонда и трехкристальный метод [10,11].

Были разработаны методические подходы использования многоволновой и квазимноговолновой дифракции для локального исследования дефектной структуры кристаллов, изучения вариации параметра кристаллической решетки, изучения изменения дефектной структуры в различных направлениях. На рис. 21 представлено локальное изменение параметра кристаллической решетки для кристалла лантан-галлиевого танталата ( $\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$ , ЛГТ).



*Рис. 21. Вариация параметра кристаллической решетки вдоль направления Y кристаллической пластины ЛГТ, полученная с использованием многоволновой дифрактометрии*

Взаимодополняющее использование двухволновой и многоволновой дифракции с точки зрения изучения дефектной структуры и напряжений в кристаллах представляется особенно перспективным: многоволновая дифракция позволяет изучать вариацию параметра кристаллической решетки по образцу, а двухволновая дифракция позволяет изучать локальные напряжения по области дифракции рентгеновского пучка. На **рис. 22** представлена картина напряжений ростового фронта кристалла  $\text{TeO}_2$  в сравнении с фотографией края кристаллической булы, выращенной по методу Чохральского. Эксперимент демонстрирует соответствие профиля деформации на фронте кристаллизации форме края кристаллической булы.



**Рис. 22.** Результат серии угловых сканирований парателлурита: зависимость углового положения дифракции от пространственной координаты образца. Цветом представлена интенсивность.

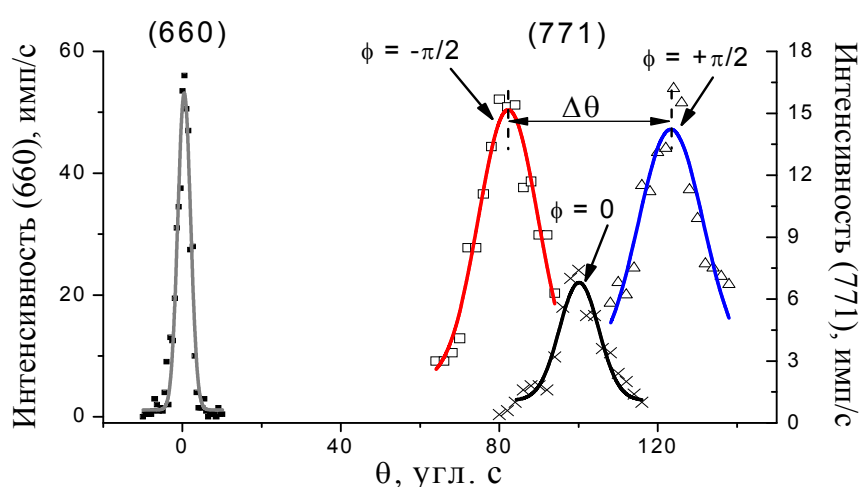
При выполнении лабораторных экспериментов по многоволновой дифрактометрии в схеме высокого разрешения из-за отсутствия возможности корректировки углового расстояния между дифракционными максимумами посредством изменения длины волны, реализация точного многоволнового взаимодействия достигается путем азимутальной отстройки экспериментальной схемы, что сказывается на угловом разрешении и чувствительности.

Экспериментально продемонстрирована возможность ультразвуковой подстройки лабораторной рентгенооптической схемы высокого разрешения (перестройки взаимного положения пары рефлексов) для реализации



многоволнового взаимодействия на основе управления угловым положением брэгговских многоволновых пиков с помощью ультразвукового воздействия на кристаллическую решетку.

На **рис. 23** показаны результаты эксперимента по сканированию условий квазимноговолновой дифракции для отражений (660, 771) в кристалле кремния с использованием излучения характеристической линии  $\text{MoK}_\beta$ . При амплитуде ультразвуковой деформации, составляющей  $\Delta d/d_0 = 1.4 \times 10^{-3}$ , был достигнут диапазон перестройки углового расстояния  $\Delta \Psi_0 = (41 \pm 1)^\circ$ .



**Рис. 23.** Результаты экспериментов по изменению углового расстояния  $\Psi_0$  квазимноговолновых рефлексов кремния  $\text{Si}(660, 771)$  с помощью ультразвукового воздействия.

**В шестой главе** исследовано влияние электрического поля на кристаллическую и дефектную структуру.

Деформацию кристаллической решетки, позволяющую, как показано в предыдущих главах, эффективно управлять рентгеновскими пучками, можно вызывать как непосредственно при помощи ультразвуковых колебаний, так и посредством приложения электрического поля, используя пьезоэлектрические свойства кристалла. С другой стороны, возбуждение ультразвука в кристаллах также напрямую связано с приложением электрического поля.

На примере кристаллов парателлурита и лангатата (ЛГТ) на основе подходов, предложенных в пятой главе, исследовано поведение

кристаллической решетки и дефектной структуры, при воздействии на пьезоэлектрические кристаллы электрического поля.

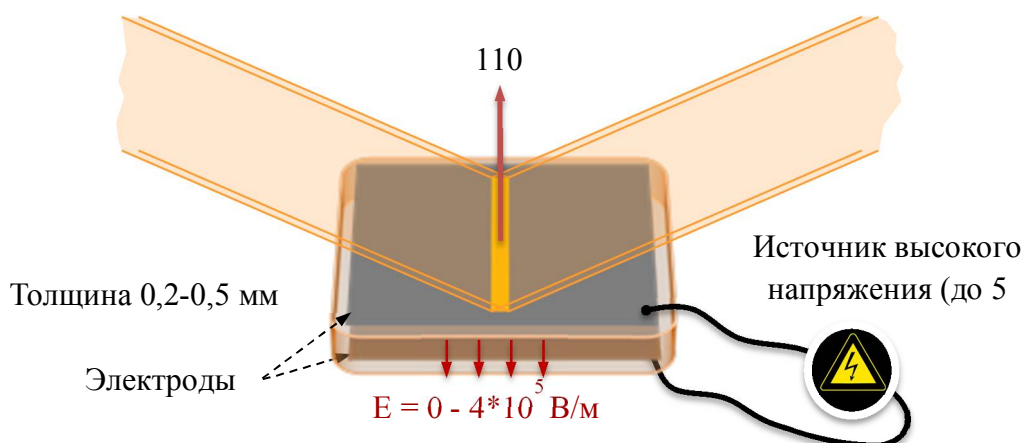
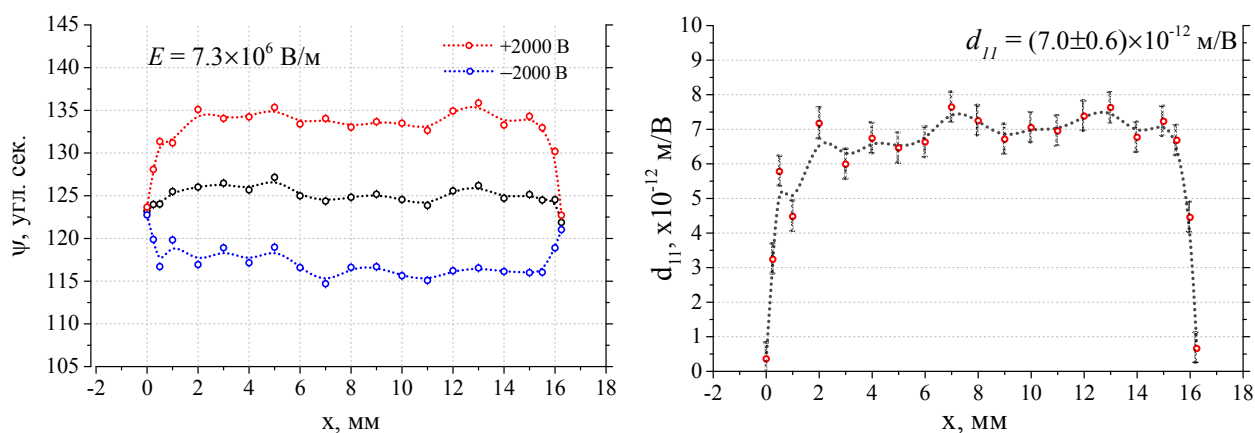


Схема приложения электрического поля показана на **рис. 24**. Измерения параметра кристаллической решетки до и после включения электрического поля проводились двумя независимыми методами с применением многоволновой дифракции и трехкристальной дифракции с использованием кристалла анализатора.

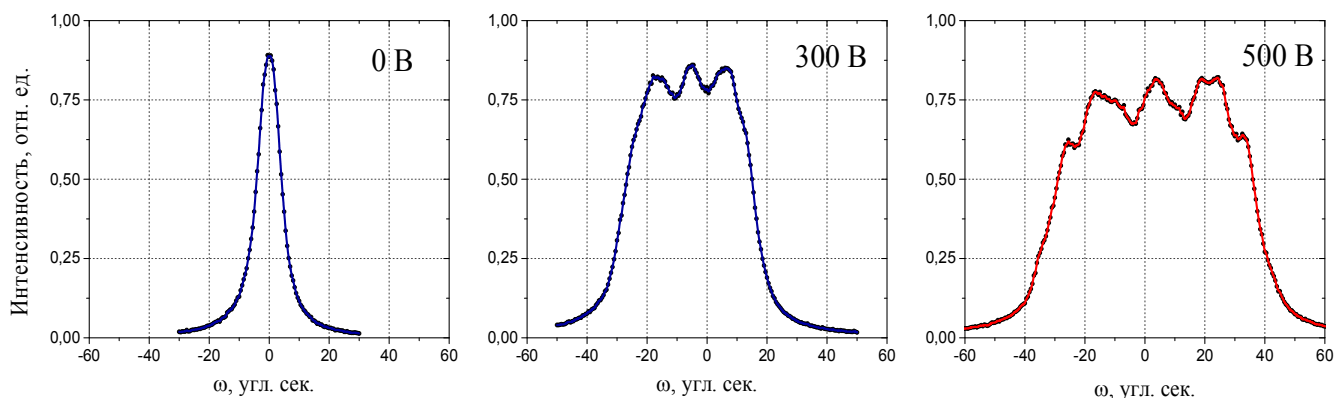
На **рис. 25** представлены результаты исследования – угловые положения максимумов многоволновых КДО в зависимости от позиции рентгеновского пучка на кристалле и результаты расчета компоненты пьезоэлектрического тензора, основанные на экспериментальных результатах.



**Рис. 25.** Угловые положения максимумов экспериментальных КДО и рассчитанные на основе экспериментальных данных компоненты тензора пьезоэлектрической деформации.

Разработанные методы позволяют исследовать пьезоэлектрические свойства, изучать связь с реальной структурой (например, вариацией состава по кристаллу), изучать влияние дефектов структуры на физические свойства кристаллических материалов и измерять такие важные физические характеристики как компоненты пьезоэлектрического тензора или коэффициенты электромеханической связи, получая данные на уровне чувствительности к изменению элементарной ячейки кристалла.

На **рис. 26** приведены экспериментальные КДО, измеренные при воздействии электрического поля на кристаллическую решетку парателлурита. В результате проведенных исследований обнаружено необычное поведение кристаллической структуры парателлурита, которое отражалось в уширении и расщеплении двухкристальной КДО. Полуширина кривой и количество расщепленных пиков на кривой увеличивались с ростом напряженности электрического поля.

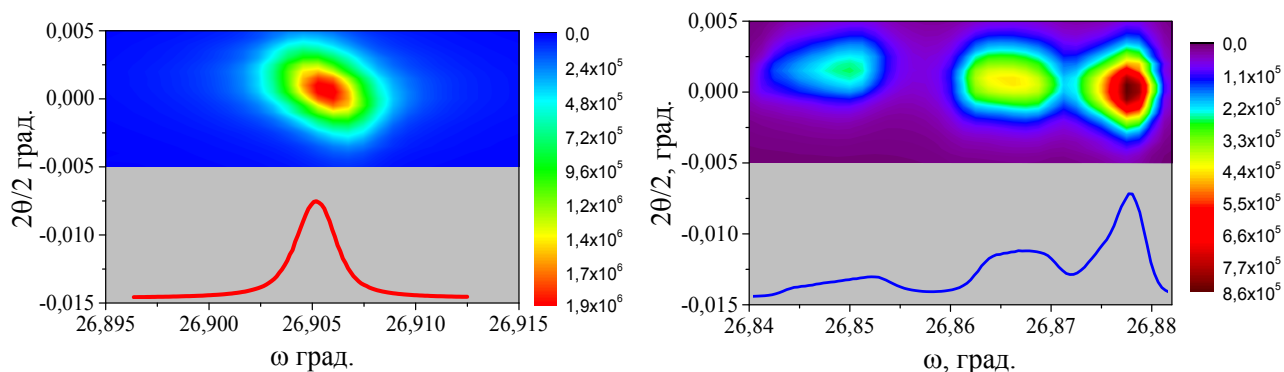


**Рис. 24.** Схема эксперимента по изучению влияния электрического поля на кристаллическую и дефектную структуру

Эксперимент демонстрирует перестройку кристаллической микроструктуры с образованием множества отдельных областей (доменов), условия дифракции которых, незначительно отличаются друг от друга.

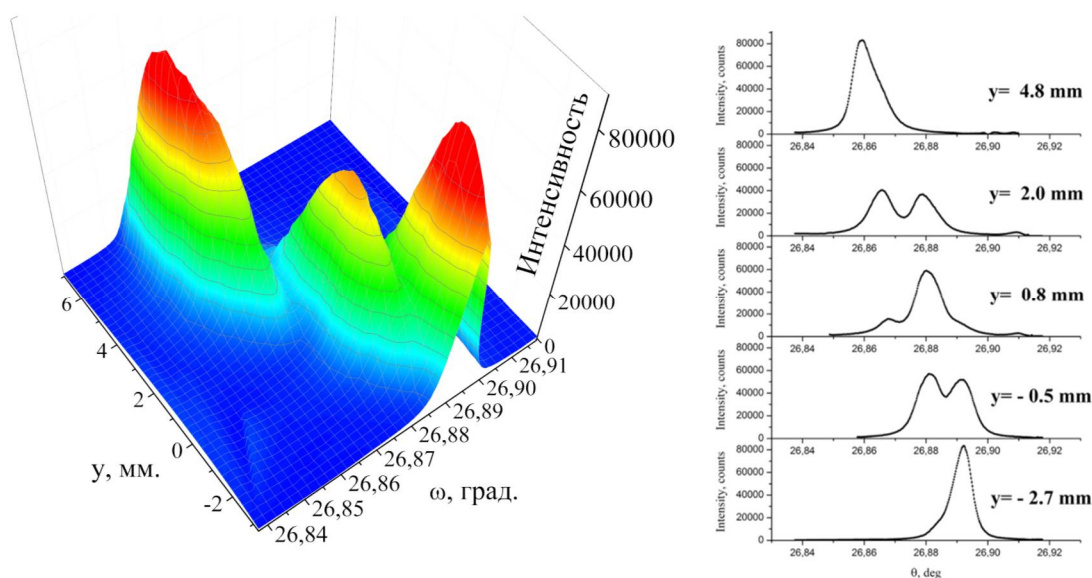
Исследования характера разориентации и размеров обнаруженных доменов были выполнены на основе построения карт обратного пространства с применением трехкристальной дифракционной схемы высокого разрешения.

Из эксперимента однозначно следует: расщепление КДО обусловлено угловой разориентацией доменов (рис. 26).



**Рис. 27.** Карты обратного пространства в координатах  $(\theta-2\theta, \omega)$  в области отражения 440 кристалла парателлурифта до и после образования доменной структуры под действием электрического поля.

Результаты исследования пространственных размеров доменов показаны на рис. 28. В экспериментах проводилось угловое  $\omega$ - и пространственное у-сканирование кристалла с образовавшимися доменами в трехкристальной схеме с применением кристалла анализатора для повышения углового разрешения метода.



**Рис. 28.** Результаты исследования пространственных размеров доменов.

Проведенные исследования показали, что перестройка микроструктуры парателлурифта под действием электрического поля характеризуется появлением доменов неферроэлектрического типа (у которых отсутствует определенная

ориентация, задаваемая кристаллографическими направлениями). Домены имеют размеры от долей миллиметра до нескольких миллиметров, разориентированы по углу и имеют одинаковый параметр решетки. Размеры и угол разориентации, составляющие от десятков до сотен угловых секунд, зависят от величины приложенного поля. Образование доменов начинается с некоторого значения электрического поля и происходит в течение нескольких часов.

### **Основные результаты и выводы:**

Всесторонне изучена область рентгеноакустических взаимодействий, связанная с возбуждением длинноволнового ультразвука: изучены акустические аспекты создания упругих деформаций в кристаллах, а также особенности рентгеновской дифракции в условиях медленно меняющейся по пространственной координате, быстро и периодически во времени деформации кристаллической решетки. Обнаруженные эффекты нашли свое практическое применение для создания методов и устройств изучения кристаллов в условиях внешних воздействий, позволяющие наблюдать за динамикой кристаллической структуры в процессе её перестройки.

Проведено изучение поведения кристаллических материалов Ge, Si, SiO<sub>2</sub>, TeO<sub>2</sub>, LiF в условиях слабых и сильных ультразвуковых полей, приводящих к разрушению кристаллов (деформации  $\Delta d/d > 10^{-3}$ ) и при воздействии электрических полей напряженностью до 40 кВ/см на кристаллы La<sub>3</sub>Ga<sub>5.5</sub>Ta<sub>0.5</sub>O<sub>14</sub> и TeO<sub>2</sub>.

По результатам проведенных исследований можно сделать следующие основные выводы:

1. Показано, что взаимодействие рентгеновского излучения с длинноволновым ультразвуком (с длиной волны от нескольких миллиметров до десятков сантиметров) можно рассматривать как отдельную область рентгеновской физики с широкими возможностями для управления спектральными и пространственно-временными характеристиками рентгеновского излучения.

2. Разработан комплексный подход по созданию элементов и схем рентгеноакустической оптики, подходящий для любого типа кристаллов, включающий: расчеты анизотропии упругих свойств и параметров кристаллических элементов; теоретические и экспериментальные алгоритмы и методы визуализации объемного поля смещений в условиях возбуждения ультразвуковых колебаний, методы изготовления и тестирования рентгеноакустооптических резонаторов.

3. Реализовано фазовое акустическое управление рентгеновской дифракцией, позволяющее достичь высокого быстродействия при измерении кривых дифракционного отражения и рентгеновских спектров (до 10 микросекунд на измерение всей кривой), с шагом перестройки углового положения  $\theta < 0,1''$  и длины волны рентгеновского пучка  $\lambda < 3 \cdot 10^{-5} \text{ \AA}$ .

4. Разработаны методы рентгеноакустической спектроскопии с разрешением по времени (до 10 микросекунд на измерение всего спектра), перспективные для рентгеноспектрального анализа с высоким быстродействием. Предложены методы модуляционной рентгеноакустической спектроскопии и резонансной дифрактометрии, основанные на модуляции длины волны в области резонансного поглощения атомов исследуемого вещества.

5. Разработан рентгеноакустический метод исследования дефектной структуры статически и динамически нагруженных кристаллов, позволяющий (с чувствительностью к изменениям параметра решетки  $\Delta d/d$  до  $5 \cdot 10^{-5}$ ) изучать ранние стадии зарождения дефектов при вибрационных нагрузках и других внешних воздействиях на основе измерения кривой дифракционного отражения с разрешением по времени до 10 микросекунд.

6. Разработаны методические подходы по изучению дефектной структуры кристаллов низших и средних сингоний с применением многоволновой и трехкристальной дифракции, в том числе, в условиях внешнего воздействия ультразвуком и электрическим полем, позволяющие с точностью,

превышающей  $10^{-5}$ , исследовать относительные изменения кристаллической решетки. Показано, что кристаллы  $\text{TeO}_2$  и  $\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$  обладают высокой степенью однородности кристаллической структуры, и вариация параметра кристаллической решетки  $\Delta d/d$  не превышает  $10^{-4}$ . В кристаллах кремния реализована перестройка многоволновой дифракции в диапазоне  $40^\circ$  с помощью ультразвука с сохранением точной настройки лабораторной схемы.

7. Обнаружен и исследован эффект образования доменов неферроэлектрического типа при воздействии на пьезоэлектрический кристалл  $\text{TeO}_2$  тетрагональной сингонии электрическим полем. Установлено, что домены представляют собой области с размерами от долей миллиметра до нескольких миллиметров и разориентированы по углу при постоянном параметре решетки. Размеры доменов и угол разориентации, составляющий от десятков до сотен угловых секунд, зависят от величины приложенного поля.

#### **Список основных публикаций автора по теме диссертации**

1. А.Е. Благов, М.В. Ковальчук, Ю.В. Писаревский, П.А. Просеков /Управление созданным низкочастотным ультразвуком градиентом деформации кристаллической решетки // Кристаллография.- 2008.- Т.53.- №3.- С. 411.
2. Благов А.Е., Просеков П.А., Грищенко Ю.В., Занавескин М.Л., Рощин Б.С., Буташин А.В., Федоров В.А., Каневский В.М., Асадчиков В.Е. /Особенности рентгеновской дифракции на монокристаллах сапфира с наноструктурированной поверхностью// Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования.- 2009.- №6.- С. 33.
3. А.Е. Благов, М.В. Ковальчук, В.Г. Кон, Ю.В. Писаревский, П.А. Просеков /Наблюдение сильного виртуального рассеяния в условиях трехволновой (220, 371) дифракции рентгеновских лучей в монокристалле  $\text{TeO}_2$  // Кристаллография.- 2010, Т. 55.- № 1.- С. 1159.
4. А.Е. Благов, М.В. Ковальчук, В.В. Лидер, Ю.В. Писаревский, П.А. Просеков, М.В. Декапольцев /Измерение локальных значений параметров решетки кристаллов средних сингоний с использованием нескольких компланарных рефлексов// Кристаллография.- 2010, Т. 55.- №6.- С. 1133.

5. А.Е. Благов, М.В. Ковальчук, В.Г. Кон, и др. /Исследование трехволновой компланарной дифракции рентгеновских лучей в монокристалле  $\text{TeO}_2$  с использованием синхротронного излучения// Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования.- 2011.- № 9.- С. 1.
6. М.В. Ковальчук, А.В. Таргонский, А.Е. Благов, И.С. Занавескина, Ю.В. Писаревский. /Новый метод измерения КДО в рентгеновской дифрактометрии с помощью ультразвуковой модуляции параметра решетки // Кристаллография.- 2011.- Т. 55.- № 5.- С. 778.
7. В.Б. Молодкин, М.В. Ковальчук, Э.Х. Мухамеджанов, А.Е. Благов и др. /Основы количественной рентгено-акустической диагностики микродефектов в монокристаллах// Металлофизика.- 2012.- Т. 34.- С. 1163.
8. А. Е. Благов, Н. В. Марченков, Ю. В. Писаревский, П. А. Просеков, М. В. Ковальчук /Измерение пьезоэлектрических констант кристалла Лантан-галлиевого танталата рентгенодифракционными методами // Кристаллография.- 2013.- Т. 58.- № 1.- С. 28.
9. Н.В. Марченков, А.Е. Благов, В.А. Ломонов, Ю.В. Писаревский, М.В. Ковальчук /Изучение дефектной структуры кристалла парателлурита с помощью многоволновой дифракции и стандартной двухволновой дифрактометрии» // Кристаллография.- 2013.- Т. 58.- № 2.- С. 181.
10. А. Е. Благов, А. Н. Даринский, М. В. Ковальчук, Ю. В. Писаревский, П. А. Просеков, А. В. Таргонский /Рентгеноакустические резонаторы для управления пространственными характеристиками рентгеновского излучения» // Акустический журнал.- 2013.- Т. 59.- № 5.- С. 561.
11. А.Е. Благов, А.Л. Васильев, А.С. Голубева, И.А. Иванов, О.А. Кондратьев, Ю.В. Писаревский, М.Ю. Пресняков, П.А. Просеков, А.Ю. Серегин /Исследование структурного совершенства гетероэпитаксиальных структур "кремний на сапфире" методами высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии, рентгеновской рефлектометрии и электронной микроскопии» // Кристаллография.- 2014.- Т.59.- № 3.- С. 356.
12. М.В. Ковальчук, П.А. Просеков, М.А. Марченкова, А.Е. Благов, Ю.А. Дьякова, Е.Ю. Терещенко, Ю.В. Писаревский, О.А. Кондратьев /Исследование *in situ* процессов роста и деградации кристаллов тетрагонального лизоцима на



подложке кремния методом высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии» // Кристаллография.- 2014.- Т.59.- № 5.- С. 749.

13. М.В. Ковальчук, А.Е. Благов, А.Г. Куликов, Н.В. Марченков, Ю.В. Писаревский / Возникновение необычных неферроидных доменов в кристаллах  $\text{TeO}_2$  под действием внешнего электрического поля // Кристаллография.- 2014.- Т. 59.- № 6.- С. 950.

14. А.Е. Благов, П.А. Просеков, А.В. Таргонский, Я.А. Элиович / Измерение КДО кристаллов с помощью акустически перестраиваемого монохроматора // Кристаллография.- 2015.- Т. 60.- №2.- С. 189.

15. Н.В. Марченков, Ф.Н. Чуховский, А.Е. Благов / Экспериментальное и теоретическое исследование КДО  $\text{MoK}\alpha$ -линий рентгеновского излучения в двухкристальной бездисперсионной схеме // Кристаллография.- 2015.- Т. 60.- № 2.- С. 194.

16. А.В. Буташин, В.М. Каневский, А.Э. Муслимов, А.Е. Благов, А.Л. Васильев и др. /Рост кристаллических пленок  $\text{ZnO}$  на нитридизованной поверхности (0001) сапфира // Кристаллография.- 2015.- Т.60.- №4.- С.620.

17. А.Е. Благов, Ю.В. Писаревский, М.В. Ковальчук /Быстрая ультразвуковая перестройка длины волны в рентгеновском эксперименте// Кристаллография.- 2016, Т. 61.- № 2.- С.191.

18. А.Е. Благов, Ю.А. Дьякова, М.В. Ковальчук, В.Г. Кон, М.А. Марченкова, Ю.В. Писаревский, П.А. Просеков / Исследование структуры пленки стеарата свинца методами рентгеновской дифракции и рентгеновских волн // Кристаллография.- 2016.- Т. 61.- №3.- С. 366.

### Список цитированной литературы

---

[1] И.Р. Энтин / Эффект резонансного подавления ультразвуком аномального прохождения рентгеновских лучей // Письма в ЖЭТФ.-1977.- 26.- вып.- 5.- С. 392.

[2] D.V. Roshchupkin, R. Tucoulou, M. Brunel, et al / Space-time modulation of an X-ray beam by ultrasonic superlattice //IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control.- 1995.- Т. 42.- № 1.- P. 127.

- 
- [3] E. Zolotoyabko, J. P. Quintana / Control of synchrotron x-ray diffraction by means of standing acoustic waves// Review of scientific instruments.- 2004.- V.75.- P.699.
- [4] L.D. Chapmann, D.R. Yoder, R. Colella/Virtual Bragg scattering: A practical solution to the phase problem in diffraction// Phys. Rev. Lett.-1981.- V. 46.- P. 1578.
- [5] R. Hoier, K. Martinsen / Effective structure factors in many-beam X-ray diffraction - use of the second Bethe approximation// Acta Crystallography.- A.- 1983.- V. 39.- P. 854.
- [6] Kovalchuk M.V., et al /Phasesensitive multiple-diffraction studies of single crystals// Physica B: Cond. Matter.- 1996.- V. 221.- P. 445.
- [7] M.V. Kovalchuk, A.Yu. Kazimirov, L.V. Samoilova et al /New possibilities of the X-ray standing wave method in multiple diffraction of synchrotron radiation // Review Sci. Instrument.- 1992.- V.63.- P.1019.
- [8] M. Renninger /"Umweganregung", eine bisher unbeachtete Wechselwirkungserscheinung bei Raumgitterinterferenzen// Z. Phys.- 1937.- V. 106.- P. 141.
- [9] В. Г. Кон /Метод траекторий в теории Лауэ дифракции рентгеновских лучей в кристалле. I. Общие формулы и оценка точности// Кристаллография.- 2007.- Т. 52.- № 4.- С. 625.
- [10] W.L. Bond/Precision lattice constant determination // Acta Crystallography.- 1960.- V.13.- P. 814.
- [11] P.F. Fewster, N.L. Andrew /Absolute Lattice-Parameter Measurement// J. Appl. Cryst.- 1995.- № 28.- P. 451.