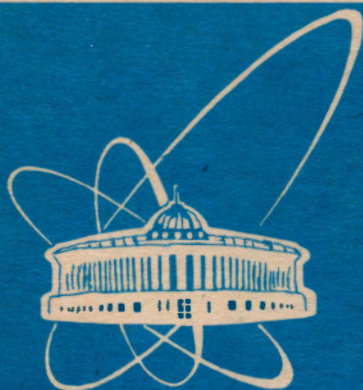


86-96



СООБЩЕНИЯ
ОБЪЕДИНЕННОГО
ИНСТИТУТА
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

96-86

P14-96-86

В.Л.Аксёнов, И.Н.Иванов, М.Н.Коваленко*, В.Е.Миронов,
Н.Скинтее, С.И.Тютюнников, В.Н.Шаляпин

О СОЗДАНИИ
СПЕКТРОСКОПИЧЕСКИХ СТАНЦИЙ ОИЯИ
НА ПУЧКАХ КУРЧАТОВСКОГО ИСТОЧНИКА
СИНХРОТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

*Национальный центр по ядерной физике, Минск, Белоруссия

1996

Широкий спектр исследований конденсированных сред ядерными методами в ОИЯИ можно разделить на три направления:

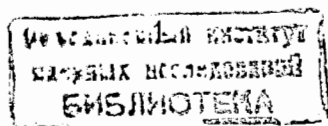
- Нейтронная спектроскопия на реакторе ИБР-2 [1].
- Мюонная спектроскопия на синхротроне [2].
- Инфракрасная длинноволновая спектроскопия на импульсном накопителе электронов [3].

Развитие исследований на пучках синхротронного излучения (СИ) в России привело к созданию в Курчатовском институте специализированного источника СИ с энергией электронов $E=2.5$ ГэВ. Технический прогресс в этом направлении дает возможность расширить спектр проводимых ранее исследований в области физики твердого тела.

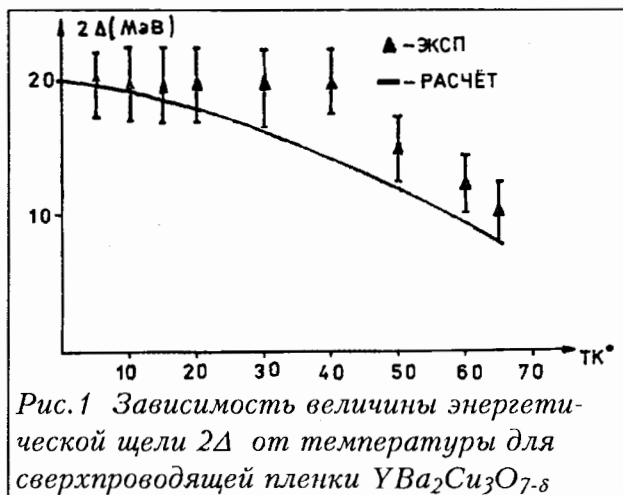
С учетом открывающихся возможностей исследования на специализированном источнике СИ, а также исходя из нашего опыта и возможностей, мы ставим перед собой следующие задачи:

1. Создание станции инфракрасной спектроскопии на основе специализированного излучателя - ондулятора.
2. Создание станции для EXAFS-спектроскопии.

1. Одно из традиционных научных направлений ОИЯИ связано с исследованием механизмов сверхпроводимости в оксидных высокотемпературных сверхпроводниках. Были проведены измерения на импульсном источнике СИ величины энергетической щели и ее зависимости от температуры для ВТСП-пленок типа $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ (Рис.1). В связи с импульсным характером источника СИ проведенные измерения были выполнены в режиме эволюции спектра СИ во времени [4]. В этих исследованиях спектральное разрешение составляло $\Delta\lambda/\lambda \approx 10^{-1}$. Для измерений фононных спектров решетки оксидных сверхпроводников и определения влияния на них различных факторов разрешение спектрометрического комплекса должно быть значительно выше. С этой целью и предполагается создать на базе специализированного источника СИ станцию для инфракрасной спектроскопии.



Подобные станции созданы в Японии (UVSOR) [5], США (NSLS) [6], Франции (LURE) [7]. Отличительной особенностью их является использование длинноволновой части спектра СИ из поворотных магнитов. В этом случае ([5]) для диапазона длин волн ≥ 100 мкм выигрыш в яркости СИ по сравнению с источником излучения типа "абсолютно черное тело" составляет величину порядка 10^1 .



Для длинноволновой части спектра СИ существенным фактором является его большая расходимость в вертикальном направлении: $\Psi_{СИ} \text{ (мрад)} = 0.7 \cdot [\lambda/R]^{1/3}$, где λ - длина волны излучения в Å, R - радиус кривизны в метрах. Для накопителя с $R=1$ м при $\lambda=100$ мкм $\Psi_{СИ}=70$ мрад.

Таким образом, вследствие большой расходимости СИ в вертикальном направлении требуется выводной канал с акцептансом $\Psi_{кан}$ больше $\Psi_{СИ} \approx 70$ мрад. Подобные устройства созданы на накопителях в США [6] и Японии [5]. На этих установках уже были проведены исследования спектров пропускания кристаллов KI в зависимости от давления [5], а также спектров пропускания ВТСП-пленки $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ [8]. Типичное разрешение для длинноволновой области, которое достигается с помощью фурье-спектрометров - $\Delta\nu=2-3 \text{ см}^{-1}$ при $\nu=100 \text{ см}^{-1}$.

Более перспективным направлением для длинноволновой инфракрасной спектроскопии является использование специальных излучателей, устанавливаемых в прямолинейном промежутке накопителя. Подобным образом организована станция инфракрасной спектроскопии на накопителе SUPER ACO в лаборатории LURE (Франция) [9].

Ондуляторное излучение (ОИ) обладает рядом преимуществ по сравнению с СИ [10]:

- Полная мощность ОИ в инфракрасном диапазоне $P_{ОИ} \text{ [кВт]} = 0.633 \cdot E^2 \text{ [ГэВ]} \cdot V_0^2 \text{ [Т]} \cdot L \text{ [м]} \cdot I \text{ [А]}$, приходящаяся на одну гармонику $\lambda_{max} = 0.5 \cdot L_0 \cdot \gamma^2 \cdot (1 + k^2 / 2 + \gamma^2 \theta^2)$, существенно больше мощности СИ, λ_{max} - длина волны максимума мощности ОИ, γ - релятивистский фактор, k - параметр жесткости ондулятора: $k = eB_0L_0(2\pi mc) = 0.934 L_0 \text{ [см]} B_0 \text{ [Т]}$, L_0 - длина периода ондулятора, B_0 - индукция магнитного поля ондулятора.

- Угловая расходимость ОИ в вертикальной плоскости существенно меньше расходимости СИ.

$$\Psi_{ОИ} \approx 0.6 / \gamma \approx 10^{-3} \text{ рад}$$

- Спектральное распределение мощности ОИ в горизонтальной плоскости для углов $\theta > \theta^*$, где $\theta^* = 1/\gamma$ для длин волн $\lambda > \lambda_{max}$, $\lambda_{max} = 1.9$ мкм.

$$dP_{ОИ}/d\lambda = P_{ОИ} (\lambda_{max}/\lambda)^2 (1/\lambda) \{1 - 2\lambda_{max}/\lambda + 2(\lambda_{max}/\lambda)^2\}.$$

Оценки мощности ондуляторного излучения для параметров возможного ондулятора на накопителе КИСИ:

$$L_{онд} = 1.5 \text{ м} - \text{длина ондулятора,}$$

$$L_0 = 15 \text{ см} - \text{период ондулятора,}$$

$$N = 10 - \text{число периодов,}$$

$$I = 200 \text{ мА} - \text{ток кольца,}$$

$$B_0 = 0.6 \text{ Тл} - \text{индукция магнитного поля ондулятора,}$$

$E_e = 450$ МэВ - энергия электронов,

$\lambda = 100$ мкм - длина волны наблюдения,

$P_{он} = 0.014$ кВт,

$dP_{он}/d\lambda = 5.2 \cdot 10^{-5}$ [Вт/мкм] = $2.5 \cdot 10^{16}$ [фотон/(сек·мкм)].

Для параметров $E_e = 450$ МэВ, $I = 0.2$ А мощность СИ:

$N = 4 \cdot 10^{14}$ [фотон/(сек·мкм)] при $\lambda = 100$ мкм.

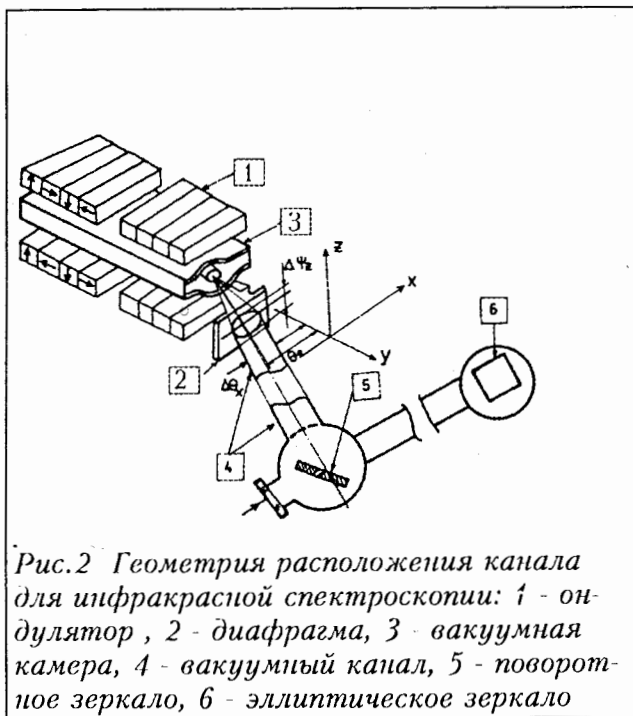


Рис.2 Геометрия расположения канала для инфракрасной спектроскопии: 1 - ондулятор, 2 - диафрагма, 3 - вакуумная камера, 4 - вакуумный канал, 5 - поворотное зеркало, 6 - эллиптическое зеркало

Как видно, мощность ондуляторного излучения на два порядка превышает мощность СИ поворотного магнита. На Рис.2 показана схема канала ОИ. Ондулятор устанавливается на одном из прямолинейных промежутков большого кольца накопителя. Ондуляторное излучение попадает затем на поворотное зеркало, разделяющее жесткое и ИК-излучение, после поворотного зеркала излучение эллиптическими зеркалами с заданной фокусировкой передается на фурье-спектрометр.

Переход к использованию ОИ в инфракрасном диапазоне позволяет значительно улучшить спектральное разрешение спектрометра. Так в лаборатории LURE [9] на ИК-станции получено спектральное разрешение $\Delta\nu = 3 \cdot 10^{-3}$ см⁻¹ с детектором болометрического типа с рабочей температурой $T = 1.7$ К.

Планируемая станция для ИК-спектроскопии позволит вести исследования в следующем спектральном диапазоне:

Тип детектора	Спектральный ин-тервал, см ⁻¹	Разрешение, см ⁻¹
Болометрич. T=1.7К	100 - 5	0.004
Болометрич. T=4.2 К°	600 - 50	0.004
Примесный приемник T=77 К	800 - 5000	0.004

2. Второе направление экспериментальных исследований связано с созданием на специализированном накопителе станции для EXAFS-, XANES-спектроскопии (EXAFS - Extended X-Ray Absorption Fine Structure [11], XANES - X-Ray Absorption Near Edge Structure [11]). Эти методы основаны на прецизионном измерении тонкой структуры поглощения рентгеновских лучей, проходящих сквозь исследуемые пленочные структуры. Если энергия рентгеновских квантов E больше, чем энергия связи электронов на К-оболочке E_K , то электрон в процессе ионизации вылетает из атома с некоторой кинетической энергией T и рассеивается в обратном направлении атомами ближайшего окружения. В результате процессов рассеяния происходит интерференция волн, соответствующих рассеянным и выходящим из ионизированного атома электронам. Разность хода между интерферирующими волнами определяется расстоянием от ионизованного i -го атома до соседнего j -го атома R_{ij} . Интерференция в эксперименте проявляется в модуляции коэффициента поглощения $\mu(E)$; период модуляции

зависит от расстояния до ближайшего окружения $\Delta E^{-1}/R_{ij}$. Отличительной особенностью XANES является то обстоятельство, что поглощение происходит при энергии E рентгеновского излучения вблизи порога отрыва электрона, при этом возбужденный электрон принадлежит этому атому. Но, находясь в возбужденном состоянии, он "чувствует" электронное окружение атома. То есть в области энергий, соответствующей XANES-процессу, сечение возбуждения зависит от плотности электронных уровней конечного состояния соседних атомов. На Рис.3 показаны экспериментальные кривые XANES-спектров меди вблизи К-края, находящейся в разных валентных состояниях: Cu(0), Cu(I), Cu(II).

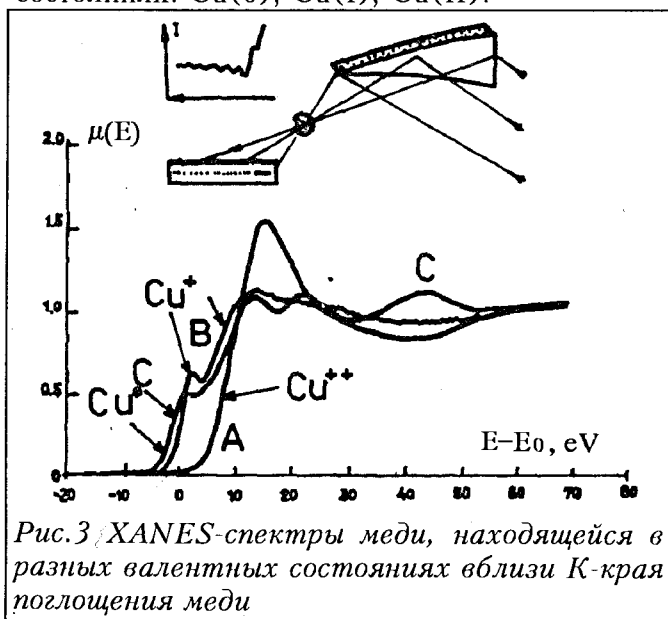


Рис.3 XANES-спектры меди, находящейся в разных валентных состояниях вблизи К-края поглощения меди

В процессе измерения кривой поглощения рентгеновских лучей вблизи края поглощения определяется EXAFS-функция $\chi(k) = (\mu - \mu_0) / (\mu_1 - \mu_0)$, где μ_0 соответствует поглощению за районом EXAFS-модуляции, k - значение волнового вектора, $|k| = (2m/h^2(E - E_b))^{1/2}$

Исходя из механизма EXAFS-процесса, как интерференции падающей волны и волны, рассеянной атомами ближайшего ок-

ружения N_j , находящихся на расстоянии R_{ij} от "пробного атома", выводится формула для EXAFS-функции:

$$\chi(k) = \sum_i N_j / (R_{ij}^2 k) \sin(2kR_{ij} + \delta(k)) \exp(-2R_{ij}/\lambda) \exp(-2k^2\sigma_{ij}^2) f(k).$$

В этой формуле учтены тепловые колебания решетки - фактор Дебая-Уоллера $\exp(-2k^2\sigma_{ij}^2)$, где σ_{ij} - среднеквадратичное отклонение R_{ij} , а также λ и длина свободного пробега электронов - фактор $\exp(-2R_{ij}/\lambda)$.

В результате измерения EXAFS-спектров по данной формуле удается восстановить все параметры ближайшего окружения в координатной сфере $N_j R_{ij} \sigma_{ij}$. Добавляя к этому информацию о электронном окружении вблизи исследуемого атома, определяемую из XANES-спектров, мы получаем полный набор данных о локальной структуре физического объекта.

Спектр СИ основного кольца с энергией электронов 2.5 ГэВ с поворотных магнитов $I_0 = 1.5$ кЭ имеет критическую энергию $E_{\text{крит}} = 17$ кэВ. Выводной канал транспортирует излучение на длину 14 метров. Полуширина пучка излучения вблизи монохроматора может регулироваться в горизонтальном направлении от 5 до 40 мм соответствующей диафрагмой. Отличительной особенностью создаваемой EXAFS-станции будет то, что она выполняется по энергодисперсионной схеме, когда в качестве монохроматора используется изогнутый кристалл Si, Ge, который имеет полихроматическую фокусировку в некоторой точке, где устанавливается образец. После этой точки прошедшие рентгеновские лучи расходятся под разными углами, определяемыми энергией фотонов [12] (Рис.4, Рис.5). Изменяя пространственное распределение прошедшего излучения $T(\lambda)$, восстанавливают коэффициент пропускания в зависимости от энергии. Данная схема позволяет измерить "мгновенные" снимки EXAFS-спектров в определенной энергетической области, определяемой размером кристалла, что важно при исследовании многих процессов в режиме "in situ", когда исследуются динамические характеристики конденсированных сред под влиянием температуры, магнитного поля, электрического поля и т.д.

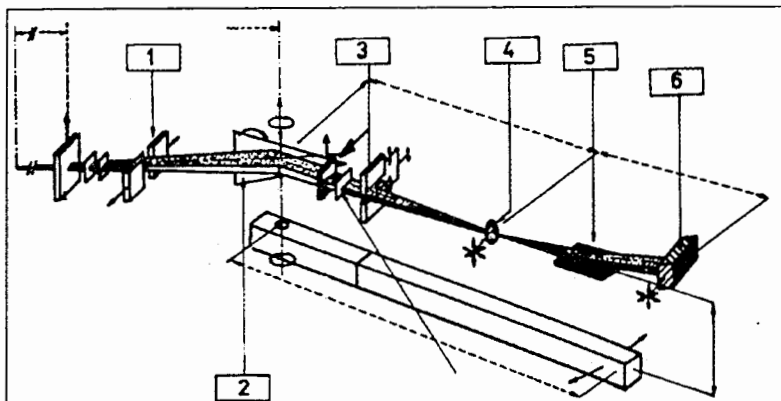


Рис.4 Схема энергодисперсионного EXAFS-спектрометра:

1 - входная щель, 2 - изогнутый кристалл Ge, Si, 3 - выходная щель, 4 - образец для исследований, 5 - плоское зеркало из кварца, 6 - детектор

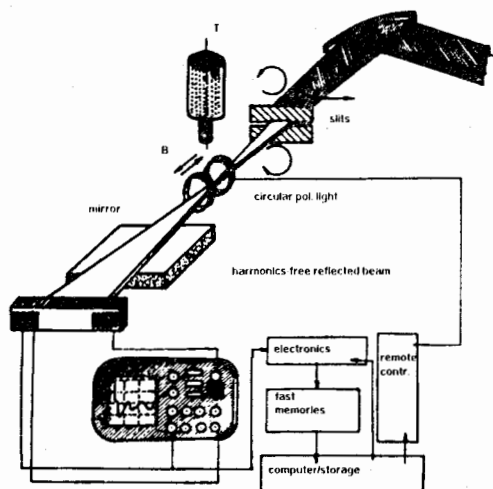


Рис.5 Детектирующая часть EXAFS-спектрометра на основе фотодиодной линейки

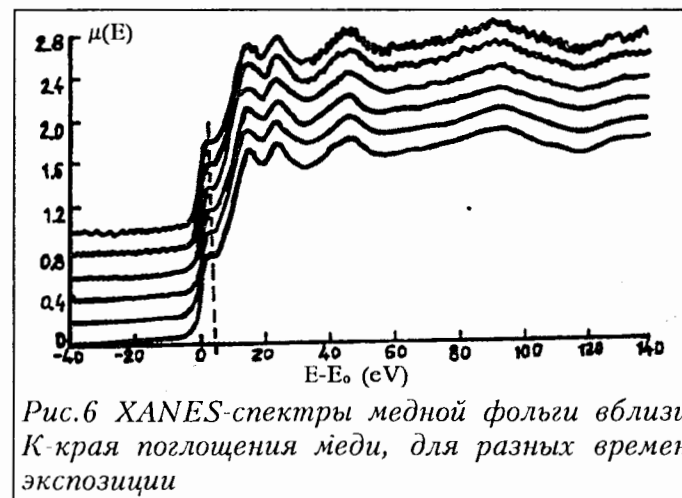


Рис.6 XANES-спектры медной фольги вблизи K края поглощения меди, для разных времен экспозиции

На Рис.6 показаны XANES-спектры тонкой медной фольги в энергодисперсионной схеме при разных временах измерения. Минимальное время экспозиции может быть доведено до нескольких мсек [12].

Как уже было сказано, изогнутый кристалл монохроматора формирует полиэнергетический фокус. Величина интервала энергии ΔE , фокусируемой кристаллом, определяется его длиной L , радиусом кривизны R , углом падения излучения для центрального луча θ_0 :

$$\Delta E = E \cdot \text{ctg} \theta_0 \cdot L \cdot (1/R - \sin \theta_0 / p_0).$$

Соотношение между расстояниями от точки излучения до кристалла p_0 и от кристалла до точки фокусировки q_0 определяется выражением:

$$1/q_0 + 1/p_0 = 2 / (R \sin \theta_0).$$

Расстояние от полихроматического фокуса до места установки детектора d :

$$d = q_0 \cdot \omega / (L \sin \theta_0), \text{ где } \omega - \text{линейная апертура детектора.}$$

Энергетическое разрешение энергодисперсионного EXAFS-спектрометра определяется факторами:

- 1) Собственной шириной кривой качения для соответствующего рефлекса кристалла. Например, для Si(111) $\delta \theta = 7 \cdot 10^{-5}$ рад для $E = 5.4$ кэВ.
- 2) Размером источника излучения.

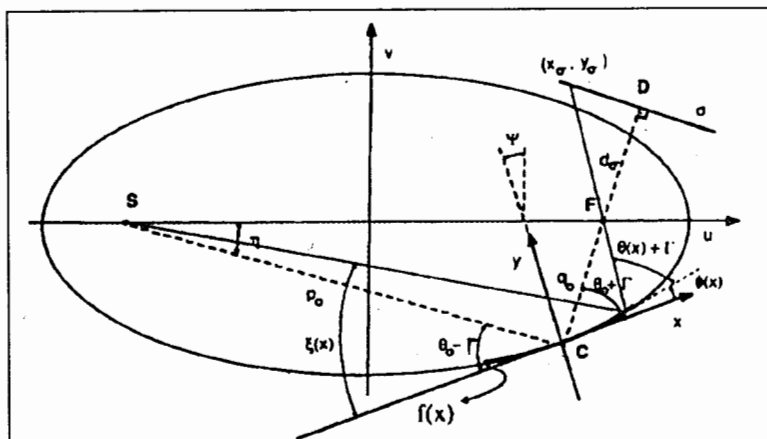


Рис.7 Геометрия фокусировки синхротронного излучения изогнутым кристаллом: S - источник излучения, F - полихроматический фокус, D - плоскость детектора

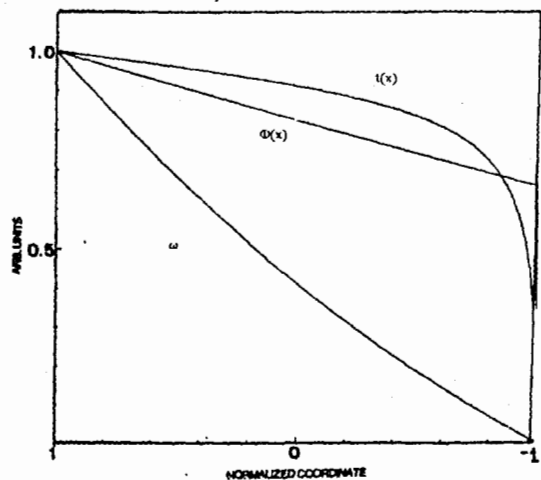


Рис.8 Зависимость расчетного профиля, обеспечивающего оптимальную фокусировку: $t(x)$ - толщина пластины при постоянной ширине, $\omega(x)$ - ширина пластины при $t = \text{const}$ по длине, $\Phi(x)$ - фактор коррекции, где x - относительная координата длины кристалла.

3) Угловой шириной детектора для регистрации рентгеновского излучения $d\theta = \Delta x / d$, где Δx - пространственное разрешение детектора, $\Delta x = 25$ мкм.

Оценки и эксперимент [12] показывают, что для края полосы CuK оно составляет порядка 2 эВ.

На Рис.7 показана геометрия фокусировки излучения изогнутым кристаллом. Необходимо измерять радиус кривизны R для каждого значения угла θ_0 : $R(\theta_0) = 2q_0 / \sin \theta_0$.

В связи с тем, что требуется обеспечить фокусировку с минимальными сферическими абберациями, необходимо, чтобы форма кристалла обеспечивала формирование эллиптической отражающей поверхности. Как показывают расчеты и экспериментальные результаты работы [13], требуется профилирование пластины отражающего кристалла по длине L. На Рис.8 показано на графике расчетное измерение ширины пластины по ее длине, для обеспечения минимальных искажений и функции коррекции $\Phi(x)$: $\omega(x) = w_0(1 - 2x/L)\Phi(x)$; x - нормализованная координата длины кристалла, w_0 - максимальная ширина у закрепленного конца кристалла.

Изменение радиуса кривизны осуществляется деформацией незакрепленного конца приложением силы F.

$R_{\text{max}} = Ew_0T^3 / (12LF)$, где E - модуль Юнга, T - толщина пластины.

Подобное профилирование отражающего кристалла по ширине и наложение деформации на свободный конец позволяет реализовать изменение радиуса кривизны по длине зеркала. Проведенные в работе [13] расчеты $R(x) = R_{\text{max}}\Phi(x)$ показывают, что в этом случае около 90% длины кристалла фокусирует падающее излучение.

На Рис.9 показаны результаты расчетов. Величина размера изображения определяется уменьшением оптической системы $k = q/p \approx 10^{-1}$ и собственным размером источника. В результате получаем размер изображения на уровне 0.3-0.5 мм. Объект исследования устанавливается в криостат при измерениях с изменением температур $T_{\text{раб}}$ от 4.2 К до 300 К.

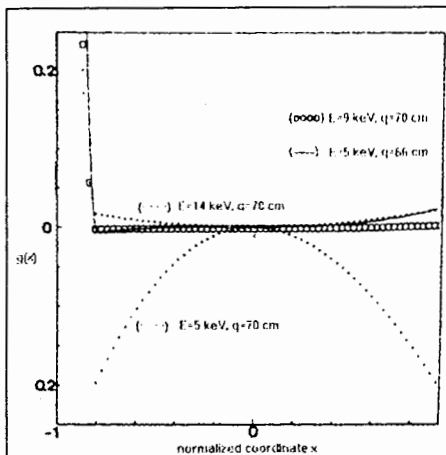


Рис.9 Расчеты фокусирующей способности изогнутого кристалла в зависимости от его относительной длины для разных значений энергий E и расстояний от кристалла до фокуса. Функция $d(x)$ характеризует величину aberrаций кристалла.

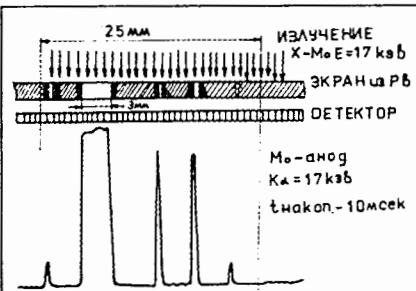


Рис.10 Пространственное распределение рентгеновского излучения, падающего через профильную маску на фотодиодную линейку, состоящую из 1024 элементов. Энергия γ -квантов $E = 17$ кэВ, время измерения 100 мс

Для регистрации рентгеновского излучения изготовлен рентгеновский детектор на основе полупроводниковой фотодиодной линейки на 1024 элемента с разрешением 25 мкм. Детектор крепится на охлаждаемом жидким азотом хладопроводе.

На Рис.10 показано распределение сигналов с фотодиодной линейки в режиме облучения потоком рентгеновских квантов характеристического спектра излучения Mo ($E_\gamma = 17$ кэВ) через свинцовую маску с разными размерами отверстий. Время накопления изменялось от 10 мс до 100 мс. Измеренный динамический диапазон порядка 10^1 . Минимальная детектирующая способность порядка 10 квантов/элемент. Диапазон энергии регистрируемых γ -квантов определяется параметрами используемых кристаллов (Si(111), Si(311), Ge(111)) и углом поворота; оно составляет 5-25 кэВ.

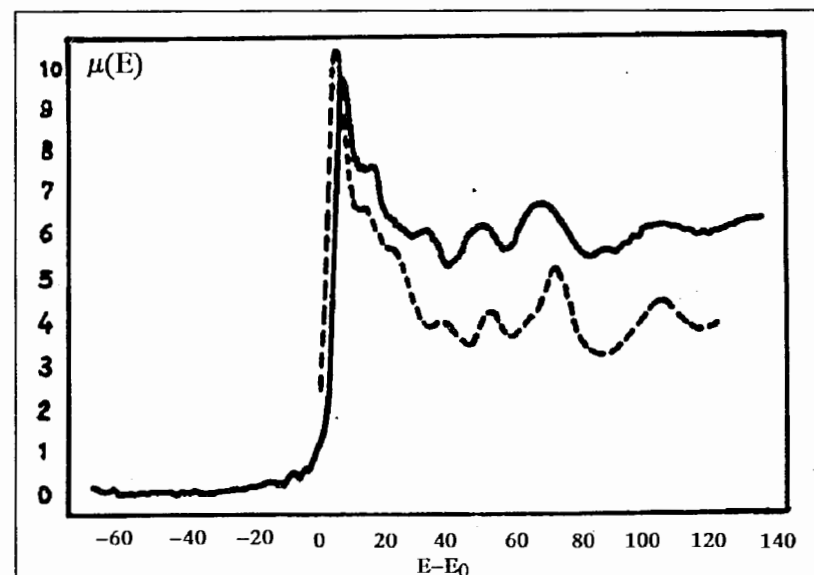


Рис.11 XANES-спектр края поглощения As в допированном кристалле Si (сплошная линия - эксперимент, пунктир - теория)

Одно из направлений исследований на энергодисперсионной EXAFS-станции будет высокоэнергетическая ионная имплантация кремния и алмазных пленок [14]. Как показывают эксперименты, представленные в работе [15], в результате этих процессов происходит глубокая структурная перестройка облученных образцов. На Рис.11 показан XANES-спектр края K-поглощения As в допированном кристалле Si (эксперимент - сплошная линия, теория - пунктир).

ЛИТЕРАТУРА

- [1] V.L.Aksenov et al. - *Physica Scripta*, 1993, VT49, p. 650
- [2] A.Schenck - *Muon Spin Rotation Spectroscopy*, Adam Hilger Ltd, Bristol, 1985
- [3] S.I.Tyutynnikov, V.N.Shaliapyn - *Nucl.Instr. and Meth.*, A359 (1995), 263-265
- [4] P.H.Скинтей, С.И.Тютюнников и др. - *ЖТФ*, т.64, в.8, 1994, стр.184-186

- [5] Takao Nanba - *Rev.Sci. Instrum.*, 60(7), 1989, p.1680-1685
- [6] P.Williams, P.Takacs et al. - *Nucl.Instr. and Meth.*, A246 (1986), p.165-167
- [7] J.Mortega - *Nucl.Instr. and Meth.*, A341 (1994), p.138-141
- [8] G.P.Williams, R.C.Budhani et al. - *Phys.Rev.B*, vol.41, 4752-4755
- [9] A.M. Flank, A. Fontaine et al. - *Nucl.Instr. and Meth.*, 208 (1983), 651-654
- [10] A.Hofmann - *Nucl.Instr. and Meth.*, 152 (1978), 17-21
- [11] *Synchrotron Radiation Research - Edited by H.Winick, Plenum press, New York and London, 1980*
- [12] E.Darty, C.Depautex et al. - *Nucl.Instr. and Meth.*, A246 (1986), 452-459
- [13] H.Tolentino, F.Baudelet et al. - *Nucl.Instr. and Meth.*, A289, (1990), 307-316
- [14] D.P.Erchak, V.G.Efimov et al. - *Nucl.Instr. and Meth.*, B69, (1992), 443-451

Рукопись поступила в издательский отдел
11 марта 1996 года.