

Streszczenie

Niniejsza rozprawa doktorska zawiera podsumowanie badań przeprowadzonych w toku moich studiów doktoranckich na Wydziale Fizyki, Astronomii i Informatyki Stosowanej Uniwersytetu Jagiellońskiego. Praca skupia się na rozwoju fluorescencyjnej holografii rentgenowskiej (X-ray fluorescence holography-XFH) w warunkach laboratoryjnych. Głównym celem pracy było wykazanie możliwości rejestracji rentgenowskich hologramów fluorescencyjnych przy użyciu lampy rentgenowskiej oraz wykazanie możliwości otrzymania na podstawie zmierzonych hologramów wysokiej jakości i rozdzielczości trójwymiarowych obrazów struktury atomowej. Oscylacje holograficzne mają małą amplitudę (rzędu 0.1% tła) i zwykle do ich rejestracji używa się promieniowania synchrotronowego.

Układ eksperymentalny pozwalający na rejestrację hologramów w warunkach laboratoryjnych został w całości zaprojektowany i zbudowany na WFAIS na potrzeby pracy doktorskiej. Układ ten wykorzystywał lampę rentgenowską z anodą molibdenową o mocy 50 W i wielkości ogniska 50 μm . Promieniowanie kolimowano z użyciem optyki polikapilarnej, która pozwoliła na uzyskanie wiązki rentgenowskiej o średnicy 7 mm i dywergencji 0.15°. Monochromatyzacji dokonywano przy użyciu kryształu HOPG (highly oriented pyrolytic graphite). Kątowe mapy wydajności emisji fluorescencji rentgenowskiej, z których uzyskiwano hologramy, rejestrowano przy użyciu detektora SDD (silicon drift detector) pozwalającego na równoczesną akwizycję hologramów dla kilku pierwiastków. Detektor zliczał ok. 10^5 fotonów/s przy intensywności wiązki wzbudzającej rzędu 10^8 fotonów/s.

Skonstruowany układ pozwolił zaobserwować po raz pierwszy tzw. efekty matrycowe we fluorescencyjnej holografii rentgenowskiej. Efekty te związane są z atenuacją wiązki rentgenowskiej w próbce oraz z występowaniem wzburzeń drugorzędowych. Pokazano, że efekty matrycowe powodują „mieszanie się” hologramów od różnych pierwiastków, w wyniku czego rentgenowska holografia fluorescencyjna traci czułość chemiczną – swoją podstawową cechę. Zweryfikowano również działanie korekty na efekty matrycowe, która została rozwinięta w celu przywrócenia czułości chemicznej.

Pomiary holograficzne zostały wykonane dla kryształów Cu_3Au , ZnSe oraz $\text{Zn}_{0.74}\text{Mn}_{0.2}\text{Be}_{0.06}\text{Se}$. Hologramy dla kryształu Cu_3Au zostały zmierzone przed i po jego obróbce termicznej. Przed obróbką termiczną kryształ posiadał częściowe uporządkowa-

nie dalekozasięgowe, natomiast po obróbce był w fazie rozporządkowanej. Przy pomocy pomiarów dyfrakcyjnych dokonano charakteryzacji faz jak również wykazano obecność polikrystalicznej warstwy Cu_2O na powierzchni próbki. Wykorzystując spektroskopię jonową SIMS oraz profilometrię optyczną wyznaczono grubość powstałej warstwy. Holograficzna rekonstrukcja struktury atomowej pozwoliła zobrazować, na podstawie wyznaczonych czynników struktury, periodyczną składową gęstości elektronowej w trzech wymiarach wokół atomów Au i Cu. Otrzymane rekonstrukcje bezpośrednio ukazały różnice pomiędzy sieciami krystalicznymi w poszczególnych fazach, pozwoliły na ilościowe scharakteryzowanie wpływu korekty macierzowej oraz wyznaczenie parametru porządku w kryształach. Korektę na efekty matrycowe uzupełniono o wpływ warstwy powierzchniowej. Wykazano, że korekta matrycowa, w przypadku kryształów posiadających strukturę o symetrii inwersyjnej, jest dokładna i wydajna.

Pomiary holograficzne wykonane dla kryształów niecentrosymetrycznych ZnSe oraz $\text{Zn}_{0.74}\text{Mn}_{0.2}\text{Be}_{0.06}\text{Se}$ miały na celu sprawdzenie możliwości bezpośredniego wyznaczenia zarówno rzeczywistych jak i urojonych składowych czynników struktury. W tym celu zarejestrowano hologramy dla atomów Zn i Se oraz, w przypadku kryształu mieszanego, dla Mn. Pokazano, że korekta na efekty matrycowe jest dokładna w przypadku rzeczywistych składowych czynników struktury. Równocześnie przeprowadzona analiza obrazów struktur atomowych wykazała, że korekta nie jest doskonała w przypadku korekty wartości urojonych części czynników struktur. Pokazano, że niezbędne jest rozszerzenie korekty na wpływ ekstynkcji lub wpływ efektów związanych z powstaniem rentgenowskich fal stojących w pobliżu kątów opowiadających warunkowi Bragga. Pomimo tego, analiza hologramów pozwoliła na zgrubne wyznaczenie położenia atomów manganu w komórce elementarnej $\text{Zn}_{0.74}\text{Mn}_{0.2}\text{Be}_{0.06}\text{Se}$.

W pracy wykonano również pilotażowe pomiary tzw. „białych” hologramów rentgenowskich z użyciem polichromatycznej wiązki rentgenowskiej. Do rejestracji „białych” hologramów dla kryształu Cu_3Au zastosowano lampę rentgenowską z anodą wolframową. Układ nie zawierał żadnych elementów optycznych. Zastosowano jedynie filtr aluminiowy, który posłużył do wyeliminowania niskoenergetycznego promieniowania. Może to sugerować, że rejestracja „białych” hologramów rentgenowskich może być niezwykle wydajna w warunkach laboratoryjnych przy użyciu lamp rentgenowskich z rotującą anodą.