01;02

Энергодисперсионный аналог метода Цернике–Принса определения функции радиального распределения атомов

© П.Н. Жукова, Н.Н. Насонов

Белгородский государственный университет
E-mail: nnn@bsu.edu.ru

Поступило в Редакцию 25 июня 2009 г.

Предложена модификация метода Цернике–Принса определения функции радиального распределения атомов в веществе, основанная на замене угловых измерений рассеянного изучаемым образцом квазимонохроматического рентгеновского излучения спектральными измерениями рассеянного широкополосного излучения. Показано, что в рамках предлагаемого метода удается избежать принципиального затруднения метода Цернике–Принса, заключающегося в ограниченности области изменения аргумента измеряемой функции углового распределения рассеянного излучения.

PACS: 78.70.-g, 79.90.+t

Метод Цернике–Принса (ЦП) основан на восстановлении функции радиального распределения атомов в среде с помощью интегрального уравнения, связывающего искомую функцию с угловым распределением рассеянного мишенью квазимонохроматического рентгеновского излучения, измеряемым в эксперименте [1]. Решение уравнения находится обращением интегрального преобразования Фурье. При этом возникает затруднение, обусловленное ограничением сверху на величину переданного в процессе рассеяния кванта импульса. Данное затруднение является принципиальным и не может быть преодолено в рамках метода ЦП. Для уменьшения ложных осцилляций в функции радиального распределения применяются специальные сглаживающие процедуры [2].

В настоящей работе предлагается использовать энергодисперсионный подход, основанный на спектральных измерениях рассеяннного образцом широкополосного излучения. Показывается, что в рамках данного подхода аргументы входящих в интегральное уравнение функций определены на всей числовой оси. При этом удается избежать искажений функции радиального распределения, присущих методу ЦП.

Рассмотрим процесс рассеяния рентгеновской волны в среде атомов. Исходим из уравнений Максвелла для Фурье-образа поля в среде

$$(k^2-\omega^2)\mathbf{E}_{\omega\mathbf{k}}-\mathbf{k}(\mathbf{k}\mathbf{E}_{\omega\mathbf{k}})=4\pi i\omega\mathbf{J}_{\omega\mathbf{k}}=-\omega^2\int d^3kG(\mathbf{k}',\mathbf{k})\mathbf{E}_{\omega\mathbf{k}}, \qquad (1)$$

$$G(\mathbf{k}',\mathbf{k})=\frac{1}{2\pi^2}\,\alpha(\mathbf{k}'-\mathbf{k},\omega)\sum_l e^{i(\mathbf{k}'-\mathbf{k})\mathbf{r}_l},$$

$$\alpha=\alpha_0(\omega)F(|\mathbf{k}'-\mathbf{k}|)/Z, \qquad \alpha_0=\frac{e^2}{m}\sum_{n\geqslant 1}\frac{f_{n0}}{\omega_{n0}^2-\omega^2},$$

где $\mathbf{J}_{\omega\mathbf{k}}$ — Фурье-образ плотности индуцированного электронного тока всех атомов среды, функция отклика $G(\mathbf{k}',\mathbf{k})$ вычислена в дипольном приближении [3,4], $\alpha_0(\omega)$ — дипольная атомная поляризуемость, f_{n0} — сила осциллятора для перехода $|0\rangle\to|n\rangle$, $\omega_{n0}=E_n-E_0$ — разность энергий уровней атома, $F(\mathbf{k}'-\mathbf{k})$ — атомный формфактор, Z — число электронов в атоме, $\mathbf{r}_l$ — координата ядра l-го атома. Разделяя функцию $G(\mathbf{k}',\mathbf{k})$ на сумму усредненной и флуктуационной составляющих

$$G(\mathbf{k}',\mathbf{k})=G(\mathbf{k}',\mathbf{k})+\tilde{G}(\mathbf{k}',\mathbf{k}),$$

$$\bar{G}(\mathbf{k}',\mathbf{k})=\langle G(\mathbf{k}',\mathbf{k})\rangle=4\pi n_0\alpha_0(\omega)\delta(\mathbf{k}'-\mathbf{k}), \qquad (2)$$

где n_0 — атомная плотность мишени, сводим (1) к уравнению

$$(k^2-\omega^2\varepsilon(\omega))\mathbf{E}_{\omega\mathbf{k}}=-\omega^2\int d^3k'\tilde{G}(\mathbf{k}',\mathbf{k})\left(\mathbf{E}_{\omega\mathbf{k}'}-\mathbf{k}\frac{\mathbf{k}\mathbf{E}_{\omega\mathbf{k}'}}{\omega^2\varepsilon(\omega)}\right), \qquad (3)$$

в котором преломляющие свойства среды описываются следующей из (2) диэлектрической проницаемостью $\varepsilon(\omega)=1+4\pi n_0\alpha_0(\omega)=$ $=1+\chi(\omega)$ ($\chi(\omega)$ — диэлектрическая восприимчивость среды).

Решение (3) следует искать итерациями. Полагая $\mathbf{E}_{\omega\mathbf{k}}=\mathbf{E}^{(i)}_{\omega\mathbf{k}}+\mathbf{E}^{(S)}_{\omega\mathbf{k}}$, где первое слагаемое описывает падающую волну, удовлетворяющую уравнению (3) в нулевом приближении по $\tilde{G}(\mathbf{k}',\mathbf{k})$, а второе слагаемое соответствует рассеянной волне, удовлетворяющей уравнению (3) в первом порядке по $\tilde{G}(\mathbf{k}', \mathbf{k})$. Обсуждаемые слагаемые имеют вид

$$\mathbf{E}^{(i)}_{\omega,\mathbf{k}} = \mathbf{e}_i E_\omega \delta(\mathbf{k} - \omega\sqrt{\varepsilon(\omega)}\mathbf{n}_i), \qquad \mathbf{e}_i\mathbf{n}_i = 0,$$
$$\mathbf{E}^{(S)}_{\omega\mathbf{k}} = -\frac{\omega^2}{k^2 - \omega^2\varepsilon(\omega)} E_\omega \left(\mathbf{e}_i - \mathbf{k}\frac{\mathbf{k}\mathbf{e}_i}{\omega^2\varepsilon(\omega)}\right) \tilde{G}(\omega\sqrt{\varepsilon(\omega)}\mathbf{n}_i, \mathbf{k}), \tag{4}$$

где $\mathbf{e}_i$ — вектор поляризации падающей немонохроматической волны, спектр которой описывается амплитудой E_ω, $\mathbf{n}_i$ — единичный вектор в направлении распространения падающей волны.

Следующее из (4) выражение для спектрально-углового распределения рассеянного излучения имеет вид

$$\omega\frac{dN^{(S)}}{d\omega d\Omega} = 4\pi^4\omega^4|E_\omega|^2(1 - (\mathbf{n}_S\mathbf{e}_i)^2)\langle\tilde{G}(\omega\sqrt{\varepsilon(\omega)}\mathbf{n}_i, \quad \omega\sqrt{\varepsilon(\omega)}\mathbf{n}_S)^2\rangle, \tag{5}$$

где $\mathbf{n}_S$ — единичный вектор в направлении распространения рассеянной волны, скобки означают усреднение по положениям атомов в среде. При усреднении следует использовать формулу

$$\left\langle \sum_l \sum_m \exp\left(i\omega\sqrt{\varepsilon(\omega)}(\mathbf{n}_i - \mathbf{n}_S)(\mathbf{r}_l - \mathbf{r}_m)\right)\right\rangle$$
$$= N + \sum_l \sum_{m\neq l} \int d^3r_l d^3r_m f_2(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}_m) \exp(i\omega\sqrt{\varepsilon(\omega)}(\mathbf{n}_i - \mathbf{n}_S)(\mathbf{r}_l - \mathbf{r}_m)), \tag{6}$$

где N — число атомов в мишени, $f_2(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}_m)$ — двухчастичная функция распределения атомов, которую можно представить в виде суммы произведения одночастичных функций $f_l(\mathbf{r}_l) = 1/V$ (V — объем мишени, мишень предполагается однородной) и парной корреляционной функции $g(|\mathbf{r}_l - \mathbf{r}_m|)$, убывающей с ростом аргумента [5]. Подстановка (6) в (5) приводит к окончательному виду выражения для плотности рассеянного излучения

$$\frac{dN^{(S)}}{d\omega d\Omega} = \frac{N}{Z^2}\left(1 - (\mathbf{n}_S\mathbf{e}_i)^2\right)\omega^3|E_\omega|^2 F^2(2\omega\sqrt{\varepsilon(\omega)}\sin(\vartheta/2))|\alpha_0(\omega)|^2$$
$$\times\left[1 - \frac{2\pi}{\omega\sqrt{\varepsilon}\sin(\vartheta/2)}\int_0^\infty dr r(n_0 - n(r))\sin(2\omega\sqrt{\varepsilon}r\sin(\vartheta/2))\right], \tag{7}$$

где введены угол рассеяния ϑ по формуле $|\mathbf{n}_i - \mathbf{n}_S| = 2\sin(\vartheta/2)$ и функция радиального распределения атомов $n(r)$ по формуле $n_0 g(r) = (n(r) - n_0)/V^2$ [6], стремящаяся с увеличением радиуса к средней плотности атомов мишени $n_0 = N/V$. Следует иметь в виду, что в рентгеновском диапазоне частот отличие диэлектрической проницаемости от единицы весьма мало, поэтому в правой части (7) можно положить $\varepsilon(\omega) \approx 1$.

Формула (7), рассматриваемая как интегральное уравнение для определения функции радиального распределения $n(r)$, аналогична уравнению ЦП [1]. Как уже отмечалось, для восстановления $n(r)$ в методе ЦП используется угловая зависимость величины $dN^{(S)}/d\omega d\Omega$, измеряемая в эксперименте при фиксированном значении ω. При этом аргумент измеряемой функции $x = 2\omega\sin(\vartheta/2)$ изменяется в конечных пределах $0 < x < 2\omega$, что приводит к искажениям искомой функции $n(r)$, определяемой формулой обращения преобразования Фурье, в которой интегрирование ведется в бесконечных пределах.

Обратим внимание на следующую из (7) возможность определения $n(r)$ по спектральным измерениям рассеянного широкополосного излучения с заданным начальным спектром $|E_\omega|^2$ и фиксированным значением угла рассеяния ϑ. В самом деле, поскольку все входящие в (7) величины определены как функции ω (в настоящее время доступны измеренные в широком диапазоне частот восприимчивости $\chi(\omega)$ для многих веществе [7]), то искомая функция $n(r)$ может быть определена в соответствии со следующей из (7) формулой

$$n(r) - n_0 = \frac{1}{2\pi^2 r}\int_0^\infty dx x J(x)\sin(xr), \quad J(x) = \frac{dN^{(S)}/d\omega d\Omega}{dN_0/d\omega d\Omega} - 1, \quad (8)$$

где аргумент x связан с частотой ω приведенным выше соотношением $x = 2\omega\sin(\vartheta/2)$, величина $dN_0/d\omega d\Omega$ совпадает с коэффициентом перед квадратной скобкой в правой части (7), описывающим спектрально-угловое распределение излучения, рассеянного атомами среды независимо (ясно, что с ростом частоты ω коллективные эффекты в рассеянии уменьшаются и измеряемая величина $dN^{(S)}/d\omega d\Omega$ стремится к $dN_0/d\omega d\Omega$). В отличие от результата ЦП подынтегральная функция $J(x)$ в (8) определена на всей числовой оси, что позволяет избежать искажений искомой функции $n(r)$, возникающих в методе ЦП.

Следует отметить, что схема спектральных измерений при фиксированном положении рентгеновского детектора является более простой по сравнению со схемой угловых измерений в методе ЦП. С другой стороны, в рамках предлагаемого подхода возникает необходимость знания восприимчивости мишени и спектрального распределения зондирующего излучения. С учетом последнего требования одним из наиболее подходящих источников зондирующих фотонов является синхротрон, обеспечивающий высокую интенсивность излучения и возможность точного расчета его характеристик.

Авторы благодарны за обсуждения вопроса о соотношении метода ЦП и предлагаемого метода Д.М. Левину, А.Г. Ревенко, В.А. Федорову и М.Н. Филиппову.

Работа поддержана РФФИ (грант № 09-02-97528).

Список литературы

[1] *Zernicke F., Prins J.A.* // Z. Phys. 1927. V. 41. P. 184–195.
[2] *Гуливец Н.И., Бобыль А.Л., Дедоборец В.И., Пелешенко Б.И.* // Письма в ЖТФ. 1997. Т. 23. В. 5. С. 21–26.
[3] *Король А.В., Лялин А.Г., Соловьев А.В.* Поляризационное тормозное излучение. СПб.: Изд. СПбГПУ, 2004. 300 с.
[4] *Астапенко В.А.* Поляризационные и интерференционные эффекты в излучательных процессах. М.: УРСС, 2003. 176 с.
[5] *Ахиезер А.И., Пелетминский С.В.* Методы статистической физики. М.: Наука, 1977. 368 с.
[6] *Джеймс Р.* Оптические принципы дифракции рентгеновских лучей. М.: ИЛ, 1950. 572 с.
[7] *Henke B.L., Gullikson E.M., Davis J.C.* // Atomic Data and Nuclear Data Tables 1993. V. 54. N 2. P. 181–342.