УДК: 539.2

МОДИФИКАЦИЯ МЕТОДА ЦЕРНИКЕ-ПРИНСА ОПРЕДЕЛЕНИЯ ФУНКЦИИ РАДИАЛЬНОГО РАСПРЕДЕЛЕНИЯ АТОМОВ В КОНДЕНСИРОВАННОЙ СРЕДЕ

П.Н. Жукова, Н.Н. Насонов

Лаборатория радиационной физики, Белгородский государственный университет,
Студенческая 14, Белгород, 308007, Россия. (nnn@bsu.edu.ru)

Предложена модификация метода Цернике – Принса определения функции 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.

Ключевые слова: Рентгеновские лучи, радиальная функция распределения, метод Цернике-Принса, энергодисперсионный метод.

1. 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 определением аргумента измеряемого углового распределения только на конечном интервале. Данное затруднение является принципиальным и не может быть преодолено в рамках метода ЦП.

В настоящей работе предлагается использовать энергодисперсионный подход, основанный на спектральных измерениях рассеянного 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.

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

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

$$G(\vec{k}',\vec{k})=\frac{1}{2\pi^2}\alpha(\vec{k}'-\vec{k},\omega)\sum_l e^{i(\vec{k}'-\vec{k})\vec{r}_l},\;\; \alpha=\alpha_0(\omega)F(|\vec{k}'-\vec{k}|)/Z,\;\; \alpha_0=\frac{e^2}{m}\sum_{n\geq 1}\frac{f_{n0}}{\omega_{n0}^2-\omega^2}\;\;,(1)$$

$\vec{\mathrm{J}}_{\omega\vec{k}}$ – фурье-образ плотности индуцированного электронного тока всех атомов среды, функция отклика $G(\vec{k}',\vec{k})$ вычислена в дипольном приближении [2], $\alpha_0(\omega)$ – дипольная атомная поляризуемость, f_{n0} – сила осциллятора для перехода $|0>\to|n>$, $\omega_{n0}=E_n-E_0$ – разность энергий уровней атома, $F(|\vec{k}'-\vec{k}|)$ - атомный формфактор, Z – число электронов в атоме, $\vec{r}_l$ – координата ядра l -ого атома. Разделяя функцию $G(\vec{k}',\vec{k})$ на сумму усредненной и флуктуационной составляющих

$$G(\vec{k}',\vec{k})=\overline{G}(\vec{k}',\vec{k})+\tilde{G}(\vec{k}',\vec{k}),\;\; \overline{\mathrm{G}}(\vec{\mathrm{k}}',\vec{\mathrm{k}})=<G(\vec{k}',\vec{k})>=4\pi\,\mathrm{n}_0\alpha_0(\omega)\delta(\vec{k}'-\vec{k}), \qquad (2)$$

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

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

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

$$\begin{aligned}&\vec{E}^{(i)}_{\omega\vec{k}}=\vec{e}_iE_\omega\delta(\vec{k}-\omega\sqrt{\varepsilon(\omega)}\vec{n}_i),\quad \vec{e}_i\vec{n}_i=0,\\ &\vec{E}^{(S)}_{\omega\vec{k}}=-\frac{\omega^2}{k^2-\omega^2\varepsilon(\omega)}E_\omega(\vec{e}_i-\vec{k}\frac{\vec{k}\vec{e}_i}{\omega^2\varepsilon(\omega)})\tilde{G}(\omega\sqrt{\varepsilon(\omega)}\vec{n}_i,\vec{k}),\end{aligned} \qquad (4)$$

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

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

$$\omega\frac{dN^{(S)}}{d\omega\, d\Omega}=4\pi^4\omega^4\left|E_\omega\right|^2(1-(\vec{n}_S\vec{e}_i)^2)<\left|\tilde{G}(\omega\sqrt{\varepsilon(\omega)}\vec{n}_i,\omega\sqrt{\varepsilon(\omega)}\vec{n}_S)\right|^2>, \qquad (5)$$

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

$$\begin{aligned}&<\sum_l\sum_m\exp(i\omega\sqrt{\varepsilon(\omega)}(\vec{n}_i-\vec{n}_S)(\vec{r}_l-\vec{r}_m))>=N+\\ &\sum_l\sum_{m\neq l}\int d^3r_ld^3r_mf_2(\vec{r}_l,\vec{r}_m)\exp(i\omega\sqrt{\varepsilon(\omega)}(\vec{n}_i-\vec{n}_S)(\vec{r}_l-\vec{r}_m)),\end{aligned} \qquad (6)$$

где N – число атомов в мишени, $f_2(\vec{r}_l,\vec{r}_m)$ – двухчастичная функция распределения атомов, которую можно представить в виде суммы произведения одночастичных функций $f_1(\vec{r}_l)=1/V$ (V – объем мишени, мишень предполагается однородной) и парной корреляционной функции $g(|\vec{r}_l-\vec{r}_m|)$, убывающей с ростом аргумента [3]. Подстановка (6) в (5) приводит к окончательному виду выражения для плотности рассеянного излучения

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

где введены угол рассеяния ϑ по формуле $|\vec{n}_i-\vec{n}_S|=2\sin(\vartheta/2)$ и функция радиального распределения атомов $n(r)$ по формуле $n_0g(r)=(n(r)-n_0)/V^2$ [4], 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 $\varepsilon(\omega) \approx 1$.

3. 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 $\left|E_\omega\right|^2$ 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 веществ [5]), то искомая функция $n(r)$ может быть определена в соответствии со следующей из (7) формулы

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

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, подинтегральная 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.

Литература

1. Zernicke, F. and Prins, J.A., Die Beugung von Röntgenstrahlen in Flüssigkeiten als Effekt der Molekülanordnung. Z. Phys. (1927) 41, pp. 184–195.
2. Король А.В., Лялин А.Г., Соловьев А.В. Поляризационное тормозное излучение. СПб.: Изд. СПбГПУ, 2004. 300 с.
3. Ахиезер А.И., Пелетминский С.В. Методы статистической физики. М.: Наука, 1977. 368 с.
4. Джеймс Р. Оптические принципы дифракции рентгеновских лучей. М.: ИЛ, 1950, 572 с.
5. Henke B.L., Gullikson E.M., Davis J.C. Atomic Data and Nuclear Data Tables (1993) V. 54, № 2, pp.181-342.

MODIFICATION OF ZERNICKE-PRINC APPROACH TO DETERMINE THE RADIAL DISTRIBUTION FUNCTION OF ATOMS IN A DENSE MEDIUM

P.N. Zhukova, N.N. Nasonov

Laboratory of Radiation Physics, Belgorod State University,
14, Studencheskaja str., Belgorod, 308007, Russia.
e-mail: nnn@bsu.edu.ru

The modification of Zernicke-Prins approach to determine the distribution function of atoms in a medium is presented. New approach is based on the replacement of angular measurements of quasi-monochromatic X-rays scattered by a sample on spectral measurements of scattered wideband radiation. The possibility to solve the fundamental problem of Zernicke-Prins approach consisting in a bounded region of argument variations of a measured angular distribution of scattered X-rays is shown in the work.

Key words: X-rays, radial distribution function, Zernicke-Prins approach, energy dispersive X-ray diffraction.