А. В. Колпаков, Р. Н. Кузьмин, Фазовая проблема и корреляционные свойства пучков рентгеновского излучения, *Докл. АН СССР*, 1968, том 180, номер 1, 63–65

Доклады Академии наук СССР
1968. Том 180, № 1

УДК 537.531 : 535.4

ФИЗИКА

А. В. КОЛПАКОВ, Р. Н. КУЗЬМИН

ФАЗОВАЯ ПРОБЛЕМА И КОРРЕЛЯЦИОННЫЕ СВОЙСТВА ПУЧКОВ РЕНТГЕНОВСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

(Представлено академиком Н. В. Беловым 4 VIII 1967)

При когерентном рассеянии рентгеновских лучей на электронной плотности кристалла $\rho(\mathbf{r})$ интенсивности отражений I_{hkl} от плоскостей hkl, удовлетворяющих углам Брэгга, пропорциональны квадратам структурных амплитуд $I_{hkl} \sim |F_{hkl}|^2$. Коэффициенты F_{hkl} в случае нецентросимметричных кристаллов — комплексные величины $F_{hkl} = |F_{hkl}|e^{i\alpha_{hkl}}$, а так как в эксперименте получают данные только о квадратах модулей структурных амплитуд, то возникает проблема определения фаз α_{hkl}. Использование особенностей взаимодействия электромагнитного излучения с объектом иногда позволяет решить фазовую проблему, например, методом мессбауэровского атома [6]. Ниже будет приведено обоснование применения двухлучевой интерференции электромагнитного излучения рентгеновского диапазона длин волн к определению фаз в кристаллах.

Пусть на регистрирующий прибор падают два луча, которые, согласно принципу суперпозиции, создают поле в точке падения, равное линейной комбинации полей

$$E = \xi_1^0 E_1 + \xi_2^0 E_2, \tag{1}$$

где $\xi_{1,2}^0$ —комплексные числа, характеризующие поля; $E_{1,2}$ — напряженность поля в классической интерпретации или оператор уничтожения фотонов в квантовом смысле $E_{1,2} \simeq CE_{1,2}^{(-)}$.

Так как в эксперименте регистрируется усредненная по времени интенсивность, то из (1) получаем

$$\langle |E|^2 \rangle = |\xi_1|^2 G^{(1)}(x_1x_1) + |\xi_2|^2 G^{(1)}(x_2x_2) + 2\mathrm{Re}[\xi_1\xi_2^* G^{(1)}(x_1x_2)], \tag{2}$$

где $\langle\ldots\rangle$ означает усреднение по времени; $G^{(1)}(x_ix_j) = \langle | E_i^{(+)}E_j^{(-)} | \rangle$.

Функция $G^{(1)}(x_ix_j)$ называется корреляционной функцией первого порядка [1]. Физический смысл $G^{(1)}(x_1x_2)$ заключается в том, что она описывает корреляцию между положениями фотонов в двух пространственно-временных точках x_1 и x_2.

Учитывая далее, что пучки излучения обладают некоторой толщиной и спектральным распределением, задаваемым функцией $g(\omega)$, получим основное выражение для интегральной интенсивности

$$I = \int\limits_{\omega}\int\limits_{\sigma} \{|\xi_1|^2 G^{(1)}(x_1x_1) + |\xi_2|^2 G^{(1)}(x_2x_2) + 2\mathrm{Re}\,[\xi_1\xi_2^* G^{(1)}(x_1x_2)]\}\, g(\omega)\, d\omega\, d\sigma, \tag{3}$$

σ — площадь сечения пучка; a — ширина пучка, b — толщина.

Рассмотрим конкретную схему эксперимента: на кристалл-синтезатор падают два луча так, что дифракционные лучи выходят в одном направлении.

Тогда величины, входящие в (3), имеют следующий смысл: ξ_j описывает взаимодействие излучения с синтезирующим кристаллом и равно [2]

$$\xi_j = P^{1/2}F_j(hkl),$$
$$P = HpL\exp(-2M)\exp(-2\mu l/\cos\theta);$$
$$\mathbf{F}_j = \sum_i f_i \exp 2\pi i\left(\frac{\mathbf{s}_j - \mathbf{s}}{\lambda}\,\mathbf{r}_i\right) = A_j + iB_j,$$

$j = 1{,}2$; H — фактор повторяемости; p — фактор поляризации; L — функция Лауэ; $\exp(-2M)$ — фактор Дебая — Уоллера; $\exp(-2\mu l/\cos\theta)$ — множитель поглощения; F_j — структурная амплитуда отражения от j-плоскости; $g(\omega)$ — функция распределения частот, наиболее часто имеющая лоренцевую форму: $g(\omega) = [(\omega - \omega_0)^2 + \gamma^2/4]^{-1}$; $|G^{(1)}(x_i x_i)|$ — скорость счета регистрирующего прибора или просто интенсивность синтезированного луча, описывающая взаимодействие когерентных лучей.

В общем случае $G^{(1)}(x_i x_j) = |G^{(1)}(x_i x_j)|\exp(i\varphi)$. Появление фазового множителя $\exp(i\varphi)$ связано с тем, что интерферирующие волны проходят оптически разные пути и приобретают сдвиг фаз

$$\varphi = 2\pi\frac{\omega}{c}\,\frac{2l}{\cos\theta}\,\Delta,$$

где

$$\Delta = \frac{\lambda^2 e^2}{mc^2}\sum_k 2\pi N_k f_k(0);$$

Δ — разница в показателях преломления окружающей среды и кристалла [2]; $f_k(0)$ — рассеивающий фактор k-го атома при рассеянии вперед; N_k — число атомов k-го сорта в единице объема.

Если $|G^{(1)}(x_1 x_2)| \neq 0$, то лучи когерентны, имеют одинаковую или подобную пространственно-временную структуру и создают устойчивую интерференционную картину.

Проводя интегрирование в (3), получим

$$I_{1,2} - (I_1 + I_2) = 2bP|G^{(1)}(x_1 x_2)|\,\zeta\int_0^a\{(A_1A_2 + B_1B_2)\cos k\omega_0 l + (A_1B_2 - A_2B_1)\sin k\omega_0 l\}\,dl, \tag{4}$$

где $I_{1,2}$ — суммарная интенсивность при одновременном действии обоих лучей; I_1, I_2 — интенсивности каждого в отдельности;

$$\zeta = -\frac{2\pi}{\gamma}\exp\left(-\frac{\gamma}{2}kl\right);\quad k = \frac{4\pi\Delta}{c\cos\theta}.$$

Анализ выражения (4) показывает, что заметная интерференция имеет место тогда, когда $\frac{1}{2}\gamma kl \ll 1$. Это условие означает, что ширина спектральной линии должна быть на много меньше обратного времени пробега лучами оптической разности хода. Предельная разность хода, при которой все еще наблюдается интерференция, называется интервалом когерентности $l_к$. Для характеристического рентгеновского излучения $l_к \sim 10^{-5} \div 10^{-6}$ см. Отражением от абсолютно идеальных кристаллов интервал когерентности можно, по-видимому, увеличить до 10^{-4} см. Монохроматическое гамма-излучение мессбауэровских переходов в ядрах обладает $l_к \sim 10^{-1} \div 10^{4}$ см.

Бонзе и Харт экспериментально показали [3], что, используя монохроматическое излучение и расщепляя первичный пучок кристаллом, можно наблюдать устойчивую интерференционную картину, состоящую из системы параллельных полос. Интерференционная картина, согласно выражению (4), будет содержать лишь один максимум (минимум) при $a = \lambda\cos\theta/4\Delta$.

Таким образом, для того чтобы выделить величину вклада интерференционного члена в (4), следует использовать кристаллы-синтезаторы такого размера по a, чтобы внутри дифракционного максимума содержался лишь один интерференционный экстремум. Отсюда $a \sim 10^{-3} \div 10^{-1}$ см. При $a\Delta \gg \lambda$ интерференционный член в (4) обращается в 0. При ненулевом интерференционном члене в (4) можно непосредственно определять координаты атомов в элементарной ячейке.

Пусть структура кристалла-синтезатора неизвестна. Интегрируя в (4) по l и выделяя фазовые члены, получим

$$\sum_{i,j} f_i f_j \cos 2\pi\,[(\delta_i - \delta_j) + \psi] = Q^{-1}[I_{1,2} - (I_1 + I_2)], \tag{5а}$$

где

$$\delta_{i,j} = 2\pi\left(\frac{\mathbf{s} - \mathbf{s}_{1,2}}{\lambda}\,\mathbf{r}_{i,j}\right);$$

$$\sin\psi = (\cos k\omega_0 a - 1)\,[(\cos k\omega_0 a - 1)^2 + \sin^2 k\omega_0 a]^{-1/2};$$

$$\cos\psi = \sin k\omega_0 a[(\cos k\omega_0 a - 1)^2 + \sin^2 k\omega_0 a]^{-1/2};$$

$$Q = 2bP|G^{(1)}(x_1 x_2)|\,\zeta\,[(\cos k\omega_0 a - 1)^2 + \sin^2 k\omega_0 a]^{1/2}(k\omega_0)^{-1}.$$

После упрощений найдем

$$\psi = -\frac{k\omega_0 a}{2}, \quad Q = 4bP\,|\,G^{(1)}(x_1 x_2)\,|\,\zeta \sin\frac{k\omega_0 a}{2}(k\omega_0)^{-1}.$$

Если теперь ввести постоянный сдвиг по фазе на $\pi/2$ для одного луча (ставя на его пути, например, пластину подходящей толщины), то можно получить выражение для антисимметричной части структурной амплитуды

$$\sum_{i,j} f_i f_j \sin 2\pi\,[(\delta_i - \delta_j) + \psi] = Q^{-1}\,[I_{1,2} - (I_1 + I_2)]. \tag{5б}$$

Формально (5а) напоминает функцию квадратизованного кристалла (или соответственно функцию Паттерсона) ([4, 5]). По существу же это совершенно особая функция со своими специфическими свойствами.

Функция (5а) определяется совместно с функцией (5б), что позволяет **единственным** образом идентифицировать ее максимумы. Функция (5а) не имеет начальных максимумов. Все ее максимумы разрешены, что позволяет непосредственно определить **координаты** атомов в элементарной ячейке.

Московский государственный университет
им. М. В. Ломоносова

Поступило
7 VI 1967

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

[1] R. J. Glauber, Phys. Rev., 130, 2529 (1963). [2] P. Джеймс, Оптические принципы дифракции рентгеновских лучей, М., 1950. [3] U. Bonse, M. Hart, Zs. Phys., 194, № 1, 1 (1966). [4] A. L. Patterson, Phys. Rev., 46, 372 (1934). [5] A. L. Patterson, Zs. Kristallogr., 90A, 517 (1935). [6] P. H. Кузьмин, А. В. Колпаков, Г. С. Жданов, Кристаллография, 11, 4, 511 (1966).