УДК 539.1.01

Р. С. ВАРДАНЯН

ОБ ОДНОМ МЕТОДЕ В ТЕОРИИ ДИФРАКЦИИ РЕНТГЕНОВСКИХ ЛУЧЕЙ

Процесс переноса излучения в феноменологической теории описывается системой дифференциальных уравнений (относительно интенсивностей излучения) с граничными условиями. В основе динамической теории дифракции рентгеновских лучей в геометрии Брэгга лежит система разностных уравнений также с граничными условиями.

Вводится некий параметр – оператор отражения: отношение интенсивностей излучения или отношение амплитуд волн, идущих соответственно по направлению отражения и падения. Тогда удается свести решение перечисленных задач с граничными условиями к решению задач Коши. Этот метод особенно эффективен в случае переноса излучения в неоднородных средах, когда требуется численное интегрирование уравнений переноса.

Для иллюстрации предложенного метода рассматриваются задачи динамической теории дифракции рентгеновских лучей в полубесконечном кристалле и в кристалле конечной толщины. Найдены амплитуды волн и интенсивности на любой глубине кристалла, а также коэффициенты отражения и пропускания кристалла.

Ключевые слова: перенос излучения; дифракция рентгеновских лучей; оператор отражения.

The process of radiation transfer in the phenomenological theory is described by a system of differential equations (relative intensity) with boundary conditions. In the basis of the dynamic theory of X-Rays diffraction for the Bragg geometry is a system of finite – differential equations, again with boundary conditions.

A parameter – operator of reflection is introduced: the ratio of the intensities of the radiation or the ratio of amplitudes of waves traveling in the direction of reflection fall, respectively. Then it is possible to reduce the solution of these tasks with the boundary conditions for the solution of the Cauchy problems. This method is particularly effective in the case of radiation transfer in heterogeneous environments that require numerical integration of the transfer equations.

To illustrate the proposed method, we consider the problem of the dynamic theory of X-Rays diffraction in a semi-infinite crystal and in a finite thickness crystal. It are found wave amplitudes and intensitys at any depth in the crystal, as well as the reflection and transmission coefficients of the crystal are found.

Key words: radiative transfer; X-Ray diffraction; reflection operator.

Ряд задач диффузии излучения в среде описывается системой уравнений типа

$$\frac{dT(x)}{dx} = A(x)T + B(x)S; \quad -\frac{dS(x)}{dx} = B(x)T + A(x)S \tag{1}$$

с граничными условиями:

$$T(0) = T_0; \quad S(x_0) = 0. \tag{2}$$

Здесь $T(x)$ и $S(x)$ либо интенсивности излучения, либо амплитуды волн, идущих соответственно вдоль направления падения и отражения. Система уравнений типа (1), (2) лежит в основе феноменологической теории переноса излучения [1], обобщенной теории дифракции рентгеновских лучей Такаги [2], теории дифракции Дарвина в геометрии Брэгга [3, 4, 5]. В работе [3] Дарвин заложил основу динамической теории дифракции рентгеновских лучей. В основе этой теории лежит система разностных уравнений:

$$T_{k+1} = \sigma e^{-i\varphi} T_k + re^{-2i\varphi} S_{k+1}; \quad S_k = rT_k + \sigma e^{-i\varphi} S_{k+1}. \tag{3}$$

Здесь T_k и S_k – амплитуды волн непосредственно над атомной плоскостью под номером k, φ – относительное изменение фазы волны при прохождении межплоскостного расстояния под углом скольжения θ: $\varphi = \frac{2d}{\lambda}\sin\theta$, λ – длина волны, d – расстояние между плоскостями. Пусть θ_0 – угол Брэгга, т. е. $2d\sin\theta_0 = n\lambda$, тогда если обозначить $\alpha = \theta - \theta_0$, то для φ при малых α получим

$$\varphi = \pi n + \text{v}; \quad \text{v} = \alpha \frac{2d}{\lambda}\cos\theta_0. \tag{4}$$

Коэффициенты r и σ в (3) – соответственно амплитудные коэффициенты отражения и пропускания одной атомной плоскости, представляются в виде

$$r = -iq; \quad \sigma = 1 - iq_0. \tag{5}$$

Обычно считается, что v, q и q_0– малые величины одинакового порядка.

Системой уравнений (3) описываются следующие задачи:

Задача А. Дифракция на полубесконечном кристалле. В этом случае к системе (3) следует присоединить граничные условия:

$$T_0 = A = 1; \quad S_\infty = 0. \tag{6}$$

(Не нарушая общности задачи, можно положить $T_0 = 1$.)

Эта задача впервые была решена Дарвином [3] в предположении малости q, q_0, v, а также того, что отношение $\frac{T_{k+1}}{T_k} = x$ слабо зависит от k, т. е. можно считать, что $x \approx \text{const}$. В этом приближении относительно x получится квадратное уравнение (к этому вернемся ниже).

Задача Б. Дифракция на кристалле, содержащем конечное число N атомных плоскостей. В этом случае к (3) следует присоединить граничные условия:

$$T_0 = 1; \quad S_N = 0\left(k = 0, 1, 2, ..., N-1\right). \tag{7}$$

Довольно сложный метод решения этой задачи с применением полиномов Эрмита был предложен в работах Борие (см., например, [6]). В работе [7] был предложен еще один метод решения системы (3) – метод сведения к системе дифференциальных уравнений. В работах [8, 9] был применен простой, наглядный способ нахождения коэффициента отражения (задача А) (3), (6), а также коэффициента пропускания (задача Б) (3), (7). В основе этого метода лежит модифицированный принцип инвариантности В. А. Амбарцумяна [10]. Суть этого метода в том, что отражательная способность полубесконечного кристалла не изменится, если отбросить конечное число (одну или N) атомных плоскостей. Тогда, минуя систему (3), можно получить точное уравнение относительно амплитудного коэффициента отражения от полубесконечного кристалла:

$$re^{-2i\varphi}\rho^2 - \left[1 + \left(r^2 - \sigma^2\right)e^{-2i\varphi}\right]\rho + \varepsilon = 0; \qquad \varepsilon = q_0 + \text{v}. \tag{8}$$

Далее, используя решение ρ уравнения (8), алгебраическим путем можно получить замкнутые выражения для амплитудных коэффициентов: R_N отражения и Q_N пропускания кристалла с N атомными плоскостями (см. [8, 9]):

$$R_N = \frac{1 - \exp\{i2\Phi_N\}}{1 - \rho^2 \exp\{i2\Phi_N\}}; \quad Q_N = \frac{\left(1-\rho^2\right)\exp\{i\Phi_N\}}{1 - \rho^2 \exp\{i2\Phi_N\}};$$

$$\Phi_N = N\left(\varepsilon + \frac{q}{\rho}\right).$$

В приближении Дарвина (4) с учетом (5) из (8) получается квадратное уравнение относительно ρ:

$$\rho^2 + 2\frac{\varepsilon}{q}\rho + 1 = 0. \tag{9}$$

Отметим, что в работе Дарвина [3] было получено точно такое же уравнение относительно x, хотя казалось бы, что и x имеют разные смыслы. Уравнение (9) имеет два решения:

$$\rho\pm = \frac{\varepsilon \pm \sqrt{\varepsilon^2 - q^2}}{-q}. \tag{10}$$

Естественно, по физическому смыслу берется решение $\left|\rho\right| \le 1$. В области $\varepsilon^2 < q^2$ выбор неоднозначен, так как $\left|\rho_+\right| = \left|\rho_-\right| = 1$ – это область полного отражения. По видимости, эта неоднозначность и не позволила найти амплитуды полей T_k, S_k внутри кристалла.

В работе [11] был предложен критерий выбора правильного знака $\rho_\pm$ в области полного отражения.

В последние годы появился ряд работ, в том числе и отечественных авторов, где представлены новые методы и получены новые результаты в динамической теории дифракции. Перечислим лишь некоторые из них. В [12] разработана обобщенная динамическая теория с применением матричного метода, что применимо в случае асимметричной дифракции Брэгга – Лауэ. В работе [13] предлагается аналитическое решение рекуррентных уравнений для амплитуды электромагнитного поля с использованием собственных блоховских функций, что применительно для многослойных периодических сред.

Метод оператора отражения

В работе [14] был предложен метод сведения краевых задач типа (1) к задаче Коши. Этот метод заимствован из теории переноса излучения (см., например, [15]). Ищем решение (1) в виде

$$S\left(x\right) = \rho\left(x\right)T\left(x\right). \tag{11}$$

Относительно $\rho(x)$ нетрудно получить дифференциальное уравнение типа Риккати:

$$\frac{d\rho}{dx} + B\rho^2 + 2A\rho + B = 0; \quad \rho\left(x\right) = 0. \tag{12}$$

Из теории дифференциальных уравнений известно, каким огромным преимуществом обладает задача с начальными условиями по сравнению с задачей с граничными условиями, особенно при необходимости проведения численного интегрирования.

В наиболее общем случае учета перераспределения излучения по частотам, при учете индикатрисы рассеяния коэффициенты A и B в (1) являются интегральными операторами, следовательно, и ρ будет оператором. Условно назовем ρ оператором отражения. Отметим, что $\rho\left(0\right) \equiv \rho$ – полный коэффициент отражения от среды.

Зная решение $\rho(x)$ уравнения (12), из (1), (11) легко можно найти $T(x)$ и $S(x)$:

$$T(x) = T_0 \exp\left\{\int_0^x P(x')dx'\right\}; \quad P(x) = A(x) + \rho(x)B(x),$$

$$S(x) = \rho(x)T(x).$$

Отметим еще одно важное обстоятельство. Если коэффициенты $A(x)$ и $B(x)$ в (1) являются периодичными функциями, то решение (12) достаточно построить для одного периода, а полное решение задачи можно построить по методу работ [8, 9].

Применение предложенного метода

Применим предложенный метод к полному решению задач А и Б для однородных кристаллов. В случае А подстановка $S_k = \rho T_k$ в систему (3) приводит к уже известному уравнению (8) относительно ρ, решение которого в приближении Дарвина, т. е. решение (9), представлено формулой (10). Следует отметить, что соотношение $\frac{S_k}{T_k} = \rho = \text{const}$ не приближение, как в теории Дарвина, система (3) допускает такое решение для полубесконечного кристалла. Подставляя $S_k = \rho T_k$ в (3), теперь можем найти амплитуды волн T_k и S_k, а также соответствующие интенсивности $I_k^+ = |T_k|^2$, $I_k^- = |S_k|^2$ на любой глубине. Из (3) после несложных преобразований получим

$$T_k = \left(\frac{\rho - r}{\rho\sigma}\right)^{k-1} e^{i\varphi(k-1)}; \ S_k = \rho T_k,$$

а в приближении Дарвина с учетом (10):

$$T_k = e^{-i\varphi(k-1)\left(\varepsilon + \frac{q}{\rho}\right)}; \ \rho = \frac{\varepsilon - \sqrt{\varepsilon^2 - q^2}}{-q}.$$

1) В области полного отражения $\varepsilon^2 \le q^2$ получим

$$T_k = e^{-(k-1)qx}; \ x = \sqrt{1 - \frac{\varepsilon^2}{q^2}};$$

$$I_k^+ = I_k^- = e^{-2(k-1)qx}; \ |\rho| = 1.$$

Итак, в области полного отражения интенсивности излучений, идущих по направлению падения и отражения, равны между собой на любой глубине и экспоненциально падают с глубиной.

2) В области $\varepsilon^2 \ge q^2$:

$$T_k = e^{-i(k-1)qy}; \ S_k = \rho\, e^{-i(k-1)qy}; \ y = \sqrt{\frac{\varepsilon^2}{q^2} - 1},$$

$$I_k^+ = 1; \ I_k^- = \left(\frac{q}{\varepsilon + \sqrt{\varepsilon^2 - q^2}}\right)^2.$$

Решение задачи Б. В этом случае даже для однородного кристалла решение системы (3) следует искать в виде $S_k = \rho_k \cdot T_k$. Относительно ρ_k получим рекуррентное уравнение:

$$e^{-i2\varphi}\rho_{k+1}\rho_k + \left(\sigma^2 - r^2\right)e^{-i2\varphi}\rho_{k+1} - \rho_k + r = 0; \ \rho_N = 0.$$

Следуя работам [7, 12], сгруппируем атомные плоскости в слои Δk, тогда следует заменить $r \to r\Delta k$, $\sigma \to \sigma^{\Delta k}$, $T_{k+1} \to T_{(k+\Delta k)}$. Далее, совершив предельный переход, получим следующее дифференциальное уравнение типа Риккати:

$$\frac{d\rho(k)}{dk} = iq\left(\rho_{(k)}^2 + 2\frac{\varepsilon}{q}\rho(k) + 1\right); \ \rho(N) = 0. \tag{13}$$

Приведем решение (13):

а) в области $\varepsilon^2 \ge q^2$:

$$\rho_{(k)} = \frac{1 - e^{i2(k-N)qy}}{\rho^2 - e^{i2(k-N)qy}}\rho; \ \rho = \frac{\varepsilon + qy}{-q}. \tag{14}$$

Отметим, что из (14) получим вышеприведенное выражение $R_N \equiv \rho(0)$ для коэффициента отражения от всего кристалла (при $T_0 = A = 1$).

Подставляя (14) в (3), после перегруппировки получим простое дифференциальное уравнение относительно T_k, решение которого

$$T(k) = \frac{1-\rho^2 e^{i2(k-N)qy}}{1-\rho^2 e^{i2Nqy}} e^{-i\left(\varepsilon+\frac{q}{\rho}\right)k}; \; T_0 = 1,$$

$$S(k) = \frac{1-e^{2i(k-N)qy}}{\rho^2 - e^{2iNqy}} \rho e^{-i\left(\varepsilon+\frac{q}{\rho}\right)k}.$$

Соответственно для интенсивностей получим

$$I_k^+ = \frac{\sin^2 qy(k-N) + y^2}{\sin^2 qyN + y^2}; \; I_k^- = \frac{\sin^2 qy(k-N)}{\sin^{2qyN} + y^2};$$

б) область $\varepsilon^2 \le q^2$:

$$\rho(k) = i\frac{q}{\varepsilon} \cdot \frac{th\left[qx(k-N)\right]}{i\frac{q}{\varepsilon}x + th\left[qx(k-N)\right]}; \; x = \sqrt{1-\frac{\varepsilon^2}{q^2}},$$

$$T(k) = \frac{e^{2qx(k-N)} - e^{i2\alpha_0}}{e^{-2qxN} - e^{i2\alpha_0}} e^{-2\delta q\varepsilon}; \; S(k) = ie^{-2iq\varepsilon} \frac{e^{2qx(k-N)} - 1}{e^{-2qzN} - e^{i2\alpha_0}} e^{i\alpha_0},$$

$$e^{i\alpha_0} = \frac{\varepsilon - i\sqrt{q^2-\varepsilon^2}}{-q} = \frac{\varepsilon - iqx}{-q};$$

$$I_k^+ = \frac{sh^2 qx(k-N) + x^2}{sh^2 qxN + x^2}; \; I_k^- = \frac{sh^2 qx(k-N)}{sh^2 qxN + x^2} e^{2qxk}.$$

В работе [14] вышепредложенный метод был применен впервые к задаче дифракции в неоднородном кристалле, когда межплоскостное расстояние является функцией от k. И наконец, зная $T(k)$, находим амплитудный коэффициент пропускания кристалла $Q_N = T_N$.

* * *

Изложенный в данной работе метод оператора отражения позволяет свести решение системы уравнений переноса с граничными условиями к решению двух задач Коши. Этот метод очень эффективен для неоднородных кристаллов, особенно при необходимости проведения численного интегрирования, а также при нахождении волновых полей внутри кристалла. Конечно, при необходимости нахождения лишь коэффициентов отражения и пропускания кристалла рекомендуется применить метод работ [8, 9].

Предложенный в статье метод в сочетании с методами работ [8, 9] можно применить и в других областях математики, физики: в задаче о случайных блужданиях частицы в одномерной решетке, в задаче движения электрона в поле одномерного периодического потенциала и др.

Следует отметить, что рассмотренные в статье конкретные задачи имеют и методическую ценность: предложенный метод можно применить в учебном процессе при рассмотрении динамической теории дифракции рентгеновских лучей.

БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. Соболев В. В. Перенос лучистой энергии в атмосферах звезд и планет. М., 1956.
2. Takagi S. Dynamical theory of diffraction applicable to crystals with any kind of small distortion // Acta. Crystall. 1962. Vol. 15. P. 1311.
3. Darwin C. G. The theory of X-Ray Reflaxion // Phil. Mag. 1914. P. 315, 675.
4. Джеймс Р. Оптические принципы дифракции рентгеновских лучей. М., 1950.
5. Иверонова В. И., Ревкевич Г. П. Теория рассеяния рентгеновских лучей. М., 1972.
6. Borie B. The theory of the Borrmann effect in terms of difference equations //Acta. Crystall. 1966. Vol. 21. P. 470–472.
7. Феофанов А. В., Кузнецов А. Д. Дарвиновская теория рассеяния идеальными кристаллами в асимметричном положении // Изв. вузов. физики. 1970. № 10. С. 12–18.
8. Варданян Р. С. О применении принципа инвариантности в теории дифракции рентгеновских лучей // Докл. АН Арм. ССР. 1983. Т. 77. № 3. С. 127–131.
9. Vardanian R. S., Khachatrian A. Kh. Application of the Invariance Principle in the Dynamic Theory of X-Ray Scattering // Phys. Stat. Sol. 1985. A. Vol. 86. P. 73–78.
10. Амбарцумян В. А. К вопросу о диффузном отражении света мутной средой // Докл. АН СССР. 1943. Т. 38. С. 257–261.

11. V a r d a n i a n R. S. On the Sign Choice in the Darvin Solution for X-Ray Diffraction in a Semi-Infinite Crystal // Phys. Stat. Sol. A. Short Notes. 1984. Vol. 84. K. 7.

12. S t e p a n o v S. A., K o n d r a s h k i n a E. A., K ö h l e r R. Dinamical X-Ray diffraction of multilayers and superlattices: Recursion matrix extension to grazing angles // Phis. Rev. B. 1998. Vol. 57. P. 4829–4841.

13. F e r a n c h u k I. D., F e r a n c h u k S. I., M i n k e v i c h A. A., U l y a r e n k o v A. Description of X-Ray reflection and diffraction from periodical multilayers and superlattices by the eigenwave method // Phys. Rev. B. 2003. Vol. 68. P. 235307–235317.

14. В а р д а н я н Р. С. Об одном методе решения задачи дифракции рентгеновских лучей в неоднородном кристалле // Весн. Брэсцкага дзяржаўнага ўнiверсiтэта. 2002. № 2. С. 62–67.

15. Е н г и б а р я н Н. Б., М н а ц а к а н я н М. А. О линейных задачах переноса // Докл. АН СССР. 1974. Т. 217. № 3. С. 533–535.

Поступила в редакцию 21.05.13.

Роланд Серобович Варданян – доктор физико-математических наук, профессор кафедры информатики, статистики и высшей математики Бобруйского филиала Белорусского государственного экономического университета.

УДК 536.424

И. О. ТРОЯНЧУК, М. В. БУШИНСКИЙ, В. М. ДОБРЯНСКИЙ, А. В. НИКИТИН

МАГНИТОРЕЗИСТИВНЫЙ ЭФФЕКТ В КОБАЛЬТИТАХ $La_{1-x}Ba_xCoO_{3-\delta}$

Проведено исследование магнитных и магнитотранспортных свойств анион-дефицитных перовскитов $La_{1-x}Ba_xCoO_{3-\delta}$. Показано, что при $x > 0{,}5$ происходит постепенный переход от металлической к полупроводниковой проводимости и от ферромагнетизма к антиферромагнетизму. Антиферромагнитное упорядочение сопровождается резким возрастанием сопротивления. Установлено, что магнитосопротивление максимально вблизи концентрационной границы магнитного фазового превращения и его очень большая величина обусловлена инициированием магнитным полем спинового перехода из антиферромагнитного в ферромагнитное состояние. Предполагается, что ионы кобальта в ферромагнитной фазе находятся в промежуточном спиновом состоянии, тогда как в антиферромагнитной фазе – в высокоспиновом состоянии.

Ключевые слова: кобальтиты; фазовые переходы; намагниченность; магнитосопротивление.

Magnetic and magnetotransport properties of $La_{1-x}Ba_xCoO_{3-\delta}$ anion-deficient perovskites have been studied. It is shown that the increase of barium content above $x > 0{,}5$ lead to gradual transitions from metallic to semiconductor-like conductivity and from ferromagnetic to antiferromagnetic state. Antiferromagnetic ordering is accompanied by strong increase in resistivity. It is found that magnetoresistance is maximal near the concentration border of ferromagnet-antiferromagnet phase transition. The very large magnitude of magnetoresistance is result of spin state transition from antiferromagnetic phase into ferromagnetic one induced by external magnetic field. It is suggested that the cobalt ions in the ferromagnetic phase adopt intermediate spin state whereas the antiferromagnetic phase is characterized by high spin state of cobalt ions.

Key words: cobaltites; phase transitions; magnetization; magnetoresistance.

Кобальтиты с перовскитоподобной структурой представляют значительный интерес как перспективные материалы для всевозможных технологических применений, обладающие большим разнообразием фазовых превращений при реализации различных спиновых состояний ионов кобальта и ярко выраженной связью между магнитными и транспортными свойствами [1]. Например, в $LaCoO_3$ при повышении температуры осуществляется переход ионов кобальта из низкоспинового в промежуточное спиновое состояние. В системе твердых растворов $La_{1-x}Sr_xCoO_{3-\delta}$ вблизи $x \approx 0{,}18$ происходит формирование металлического ферромагнитного состояния, тогда как при меньших концентрациях стронция реализуется состояние типа спинового стекла [2]. Однако в $La_{1-x}Ba_xCoO_{3-\delta}$, незначительно допированном ионами бария ($x \sim 0{,}2$), обнаружены диэлектрическая антиферромагнитная и полупроводниковая ферромагнитная фазы [3].

Близкие к стехиометрии по кислороду $La_{0,5}Sr_{0,5}CoO_3$ и $La_{0,5}Ba_{0,5}CoO_3$, несмотря на схожесть магнитных свойств, проявляют различные магнитотранспортные свойства. Эти соединения являются ферромагнетиками с температурой Кюри, равной 250 К и 180 К соответственно. $La_{0,5}Sr_{0,5}CoO_{3-\delta}$ проявляет металлический характер поведения в парамагнитной и магнитоупорядоченной фазах, однако $La_{0,5}Ba_{0,5}CoO_3$ ниже точки Кюри при $T \sim 140$ К переходит из металлического в слабо выраженное полупроводниковое состояние [4, 5]. Вблизи перехода обнаружено тетрагональное структурное искажение [4, 5]. В $La_{0,5}Ba_{0,5}CoO_3$ при низких температурах наблюдается большой магниторезистивный эффект, тогда как в $La_{0,5}Sr_{0,5}CoO_3$ в этих условиях он был очень мал [6]. Необходимо отметить, что дефицит кислорода в $La_{0,5}Ba_{0,5}CoO_{3-\delta}$ ведет к макроскопическому расслоению на ферромагнитную и антиферромагнитную фазы при температуре ~150 К [6], которая близка к наблюдаемому переходу металл – диэлектрик в $La_{0,5}Ba_{0,5}CoO_3$.

Природу ферромагнетизма кобальтитов объясняют с помощью сверхобменных взаимодействий через кислород, зонного магнетизма и двойного обмена [1]. Чтобы понять причины большого магниторезистивного эффекта в $La_{0,5}Ba_{0,5}CoO_3$, мы провели исследования свойств системы $La_{1-x}Ba_xCoO_{3-\delta}$.