УДК 548.732

ДИФРАКЦИЯ РЕНТГЕНОВСКОГО ПРОСТРАНСТВЕННО-НЕОДНОРОДНОГО ПУЧКА В КРИСТАЛЛЕ С КУБИЧЕСКОЙ НЕЛИНЕЙНОСТЬЮ

М.К. БАЛЯН

Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

e-mail: mbalyan@ysu.am

(Поступила в редакцию 25 января 2016 г.)

Теоретически исследована дифракция пространственно-неоднородной рентгеновской волны в кристалле с кубическим нелинейным откликом на напряженность внешнего поля. С помощью численных расчетов для двухволновой дифракции узкого падающего пучка исследованы распределения интенсивностей на выходной поверхности кристалла в зависимости от толщины и интенсивности падающего пучка. Приведены результаты численных расчетов интегральных (пространственных) коэффициентов прохождения и отражения в зависимости от интенсивности падающей волны для фиксированной толщины кристалла.

1. Введение

Теоретические исследования нелинейной рентгеновской дифракции в кристаллах стали проводится в связи с появлением интенсивных синхротронных источников рентгеновского излучения и с разработками рентгеновских лазеров на свободных электронах. В работе [1], используя модель холодной плазмы, рассматривается линейная двухволновая дифракция второй гармоники, образовавшаяся в кристалле под влиянием интенсивного короткого импульса проходящего через него рентгеновского излучения. Обратное динамическое влияние образовавшихся двух брэгговских волн на первичную волну не рассматривается. Без привлечения модели холодной плазмы в [2,3] рассматривается кинематическая брэгговская дифракция интенсивной плоской рентгеновской волны в условиях нелинейности второго порядка с параметрической конверсией падающего рентгеновского кванта на рентгеновский квант более низкой частоты и на квант УФ излучения. В работе [4] с использованием модели холодной плазмы рассматривается прямое прохождение интенсивного пучка рентгеновских лучей через кристалл в условиях кубического отклика кристалла на напряженность электрического поля излучения. В [5], применяя обычную модель, известную из оптики света видимого диапазона [6], теоретически рассматривались основные уравнения динамической дифракции рентгеновских волн в кристалле с кубической нелинейностью. С помощью этих уравнений теоретически исследованы основные плосковолновые нелинейные дифракционные эффекты для случаев Лауэ [7] и Брэгга [8].

В настоящей работе теоретически исследована нелинейная дифракция рентгеновского пространственно-неоднородного пучка в кристалле с кубической нелинейностью на основе нелинейных уравнениях Такаги [5,7,8].

2. Нелинейные уравнения Такаги

Для дальнейшего изложения приведем основные уравнения нелинейной дифракции – нелинейные уравнения Такаги, полученные в работе [5]. Рассмотрим двухволновую дифракцию σ -поляризованной волны в кристалле (в общем случае деформированном). Согласно [5], амплитуды проходящей E_0 и дифрагированной E_h волн удовлетворяют следующей системе нелинейных уравнений Такаги:

$$\frac{2i}{k}\frac{\partial E_{0}}{\partial s_{0}} + (\eta_{0}^{(3)}I + \eta_{h}^{(3)}E_{0}E_{h}^{*} + \eta_{\overline{h}}^{(3)}E_{0}^{*}E_{h})e^{-\mu z/\cos\theta}E_{0} \\
+ [\chi_{\overline{h}}^{(1)} + (\eta_{0}^{(3)}E_{0}E_{h}^{*} + \eta_{\overline{h}}^{(3)}I + \eta_{2\overline{h}}^{(3)}E_{0}^{*}E_{h})e^{-\mu z/\cos\theta}]E_{h} = 0, \tag{1}$$

$$\frac{2i}{k}\frac{\partial E_{h}}{\partial s_{h}} + (\eta_{0}^{(3)}I + \eta_{h}^{(3)}E_{0}E_{h}^{*} + \eta_{\overline{h}}^{(3)}E_{0}^{*}E_{h})e^{-\mu z/\cos\theta}E_{h} \\
+ [\chi_{h}^{(1)} + (\eta_{0}^{(3)}E_{0}^{*}E_{h} + \eta_{h}^{(3)}I + \eta_{2h}^{(3)}E_{0}E_{h}^{*})e^{-\mu z/\cos\theta}]E_{0} = 0.$$

Здесь $I = |E_0|^2 + |E_h|^2$, μ – линейный коэффициент поглощения кристалла, θ – угол Брэгга, ось *z* направлена вдоль отражающих плоскостей, ось *x* направлена антипараллельно дифракционному вектору **h**, *s*₀ и *s*_h – координаты вдоль направлений распространения проходящей и диффрагированной волн, соответственно, $\chi_{0,h}^{(1)}$ – Фурье-коэффициенты линейной поляризуемости для дифракционных векторов 0 и **h**, соответственно, $\eta^{(3)}_{0,h,2h}$ – Фурье-коэффициенты нелинейной поляризуемости в общем случае комплексны и учитывают поглощение в кристалле.

Известно, что линейная часть поляризуемости кристалла пропорциональна концентрации электронов среды [9]. Исходя из этого становится возможным представление линейной поляризуемости в совершенном кристалле в виде трехмерного ряда Фурье по векторам обратной решетки. Так как в большинстве случаев дифракция рентгеновских лучей происходит в результате рассеяния на электронах внутренних оболочек атомов, которые сильно связаны в атоме, то в деформированном кристалле рассеяние рассматривается на основе модели жестких ионов, т. е. при деформации вся электронная конфигурация как целое, вместе с ядром смещается на вектор смещения **u** [9]. Вследствие этого в деформированном кристалле Фурье-коэффициенты поляризуемости получаются из Фурье-коэффициентов идеального кристалла умножением на exp(-igu), где **g** – вектор обратной решетки кристалла. Как было показано в работе [5] на основе теории возмущений квантовой и классической теорий поляризуемости, при рассеянии на внутренних оболочках атомов кубическая часть поляризуемости так же, как и линейная часть, пропорциональна концентрации электронов. Поэтому и для кубической части поляризуемости в идеальном кристалле можно применять разложение по векторам обратной решетки кристалла, а в деформированном кристалле, применяя модель жестких ионов, Фурье-коэффициенты поляризуемости получаются умножением на exp(-igu). Следует отметить, что модель жестких ионов применима только для электронов внутренних оболочек, когда пренебрегается рассеянием на валентных электронах, слабосвязанных с атомами. Вместе с тем, даже для внутренних электронов модель жестких ионов перестает быть применимой, когда напряженность внешнего поля становится равной или большей, чем внутриатомные поля, и невозможно применение теории возмущений. В таком случае следует применять модель холодной плазмы, образованной под влиянием внешнего излучения. Оценка критического значения напряженности электрического поля падающего на кристалл излучения, при котором рассеяние, обусловленное нелинейной частью поляризуемости, становится равным рассеянию, обусловленному линейной частью поляризуемости, приводится в работе [5].

В общем случае систему (1) необходимо решать численным методом. С этой целью приведем систему (1) к безразмерному виду, удобному для численных расчетов. Сначала представим поляризуемости в виде $\chi^{(1)}_{0,h,2h} = \chi^{(1)}_{0r,hr,2hr} + i\chi^{(1)}_{0i,hi,2hi}$ и $\eta^{(3)}_{0,h,2h} = \eta^{(3)}_{0r,hr,2hr} + i\eta^{(3)}_{0i,hi,2hi}$, причем, $\chi^{(1)}_{-hr,-2hr} = \chi^{(1)*}_{hr,2hr}$, $\chi^{(1)}_{-hi,-2hi} = \chi^{(1)*}_{hi,2hi}$ и $\eta^{(3)}_{-hr,-2hr} = \eta^{(3)*}_{hr,2hr}, \eta^{(3)}_{-hi,-2hi} = \eta^{(3)*}_{hi,2hi}$. Согласно [5], имеют место следующие соотношения

$$\eta_{0r,hr,2hr}^{(3)} = -3\chi_{0r,hr,2hr}^{(1)} / I_{\rm cr}, \qquad (2)$$

где I_{cr} – критическая интенсивность, при которой рассеяние от нелинейной части поляризуемости становится равным рассеянию, обусловленному линейной частью поляризуемости (оценку этой величины см. в работе [5]). Разделив уравнения системы (1) на $|\chi^{(1)}_{hr}|$ и используя соотношения (2), приходим к следующим безразмерным уравнениям:

$$\frac{i}{\pi} \frac{\partial E_0}{\partial s_0} + (\alpha_0^{(3)}I + \alpha_h^{(3)}E_0E_h^* + \alpha_{\bar{h}}^{(3)}E_0^*E_h)e^{-\mu'z/\cos\theta}E_0 + [\beta_{\bar{h}}^{(1)} + (\alpha_0^{(3)}E_0E_h^* + \alpha_{\bar{h}}^{(3)}I + \alpha_{2\bar{h}}^{(3)}E_0^*E_h)e^{-\mu'z/\cos\theta}]E_h = 0, \frac{i}{\pi} \frac{\partial E_h}{\partial s_h} + (\alpha_0^{(3)}I + \alpha_h^{(3)}E_0E_h^* + \alpha_{\bar{h}}^{(3)}E_0^*E_h)e^{-\mu'z/\cos\theta}E_h + [\beta_h^{(1)} + (\alpha_0^{(3)}E_0^*E_h + \alpha_h^{(3)}I + \alpha_{2h}^{(3)}E_0E_h^*)e^{-\mu'z/\cos\theta}]E_0 = 0.$$
(3)

Здесь s_0 и s_h – безразмерные переменные вдоль направлений проходящего и дифрагированного пучков, соответственно, связанные с размерными величинами соотношениями $s_{0,h}$ (безразм.) = $s_{0,h}$ (разм.) $|\chi^{(1)}_{hr}|/\lambda$, где λ – длина волны используемого излучения, $\alpha^{(3)}_{0,h,2h} = \eta^{(3)}_{0,h,2h}/|\eta^{(3)}_{hr}|$ и $\beta^{(1)}_{h,-h} = \chi^{(1)}_{h,-h}/|\chi^{(1)}_{hr}|$. Амплитуды в (3) выражаются через амплитуды в (1) согласно соотношениям $E_{0,h}$ (в системе (3)) = $E_{0,h}$ (в системе (1))/ ($I_{cr}/3$)^{1/2}, вследствие чего интенсивности будут выражаться в единицах $I_{cr}/3$. Значения $\alpha^{(3)}_r$ можно конкретизировать, используя значения линейных частей поляризуемостей и соотношение (2), тогда как конкретные значения $\alpha^{(3)}_i$ должны заимствоваться из опыта. Так как эти величины для рентгеновского диапазона не измерены, то их можно выбрать, учитывая, что отношение $\eta^{(3)}_r/\eta^{(3)}_i \sim |\chi^{(1)}_r|/|\chi^{(1)}_i|$ для тех же отражений. Безразмерные координаты связаны с соответствующими размерными величинами z (безразм.) = z (разм.)/ Λ^L и x (безразм.) = x (разм.)/(Λ^L tan θ), где $\Lambda^L = \lambda \cos\theta/|\chi^{(1)}_{hr}|$ – экстинкционная длина линейной теории и $\mu' = \mu \Lambda^L$.

Для численного решения системы (3) используем хорошо известный из линейной теории алгоритм полушагового численного интегрирования уравнений Такаги [9,10] с тем отличием, что на каждом шаге вычислений амплитуд на выходе из данного слоя вместо постоянных значений поляризуемости имеем эффективные поляризуемости, модулированные амплитудами проходящей и дифрагированной волн. Для эффективных поляризуемостей берем их вычисленные значения на входе в данный слой.

3. Нелинейная динамическая дифракция узкого пучка

Как и в линейной теории, имеет определенный интерес исследование нелинейной дифракции узкого пучка рентгеновских лучей. В линейной теории, в симметричной геометрии Лауэ, узким считается пучок, поперечный размер 2aкоторого в плоскости дифракции вдоль вектора дифракции удовлетворяет неравенству $2a \ll 2\Lambda^L \tan\theta/\pi$ [11]. При этом реализуется дифракция сферической волны от точечного источника, расположенного на близком расстоянии от кристалла (случай дифракции Като) [12,13]. Согласно (1), характеристики при нелинейной дифракции те же, что и при линейной дифракции, поэтому для пространственно-ограниченной падающей волны дифракционное волновое поле будет существовать в тех же областях, что и в линейной теории [11]. В частности, для падающей сферической волны при дифракции Като поле существует в треугольнике Бормана с вершиной на источнике. При нелинейной дифракции представляет интерес исследование распределения интенсивностей (нормированные интенсивностью падающей волны) как в проходящей, так и в дифрагированной волнах

$$I_{0}'(x,z) = \exp\left(-\frac{\mu'z}{\cos\theta}\right) \frac{I_{0}(x,z)}{I^{i}},$$

$$I_{h}'(x,z) = \exp\left(-\frac{\mu'z}{\cos\theta}\right) \frac{I_{h}(x,z)}{I^{i}},$$
(4)

в зависимости как от глубины точки наблюдения в кристалле, так и от интенсивности падающей волны. Здесь $I_{0,h} = |E_{0,h}|^2$. Кроме того, для неоднородного пучка вместо коэффициентов прохождения и отражения следует ввести интегральные (пространственные) коэффициенты прохождения T(z) и отражения R(z). Эти величины определяются как

$$T(z) = \exp\left(-\frac{\mu' z}{\cos\theta}\right)_{x_{\min}}^{x_{\max}} I_0(x, z) dx \Big/ \int_{-a}^{a} I^i(x) dx,$$

$$R(z) = \exp\left(-\frac{\mu' z}{\cos\theta}\right)_{x_{\min}}^{x_{\max}} I_h(x, z) dx \Big/ \int_{-a}^{a} I^i(x) dx.$$
(5)

Здесь x_{\min} и x_{\max} – координаты концов области на выходной поверхности кристалла, где существует поле, отличное от нуля. В выражениях (5) использованы безразмерные координаты. Для случая дифракции Като $x_{\min} = -z$ и $x_{\max} = z$.

Рассмотрим пример Si(220) симметричного отражения по Лауэ σ -поляризованного излучения с длиной волны $\lambda = 0.71$ Å (17.46 кэВ). Экстинкционная длина, соответствующая линейной поляризуемости, равна $\Lambda^L = 36.6$ мкм. Отклонение падающей волны от точного условия Брэгга $\Delta \theta = 0$ и $a = 0.1/\pi$ (в размерных координатах $a = 0.1\Lambda^L \tan \theta/\pi$). Значения Фурье-коэффициентов действительной и мнимой частей линейной поляризуемости взяты из [14]. Для определения Фурьекоэффициентов действительной части кубической поляризуемости используем (2), а для определения Фурье-коэффициентов мнимой части кубической поляризуемости берем $\eta^{(3)}_{0i,hi,2hi} = 0.01\eta^{(3)}_{0r,hr,2hr}$, что приблизительно равно отношению соответствующих Фурье-коэффициентов линейной части поляризуемости. При проведении численных расчетов используем уравнения дифракции (3) в безразмерном виде и применяем метод полушага.

Обратимся к результатам численных расчетов. На рис.1 показано распределение интенсивности дифрагированной волны $I_h'(x, z)$ в зависимости от x при z = 5 для двух значений интенсивности падающей волны $I^i = 0.1$ (пунктирная кривая) и $I^i = 0.5$ (сплошная кривая); при этом $\mu'z = 0.27$. Как видно из рисунка, в нелинейном случае интенсивность несимметрична по x, причем, осцилляции для $I^i = 0.1$ сглажены для x > 0, что, по видимому, обусловлено уменьшением одной из интерферирующих мод. Это более отчетливо видно для $I^i = 0.5$, где наблюдается один максимум в области положительных x. Координата максимума (пика) относительно соответствующего максимума линейной теории и нелинейной



Рис.1. Распределение интенсивности дифрагированной волны на выходной поверхности кристалла: толщина кристалла z = 5. Интенсивность падающей волны $I^i = 0.1$ (пунктирная кривая) и $I^i = 0.5$ (сплошная кривая).

теории для $I^i = 0.1$ не смещена, а значение пика выше значения соответствующих максимумов как линейной теории, так и нелинейной теории при $I^i = 0.1$. В области отрицательных значений x координаты максимумов не смещены и значения максимумов стали меньше. Заметим, что в области положительных значений x наблюдаются два слабых максимума, координаты которых тоже не смещены. Это соответствует тому, что одна из интерферирующих мод дифрагирует с меньшей интенсивностью в области положительных x, тогда как обе моды дифрагируют с меньшей интенсивностью в области отрицательных x. Как показывают расчеты



Рис.2. Распределение интенсивности проходящей волны на выходной поверхности толстого поглощающего кристалла для различных толщин от z = 100 до z = 300 с шагом $\Delta z = 50$. Интенсивность падающей волны $I^i = 0.5$.

для интенсивности $I^i = 0.1$, с увеличением толщины остается один максимум (пик). Образовавшиеся максимумы с увеличением толщины кристалла для проходящей волны смещаются в сторону положительных *x*, а для дифрагированной волны смещаются в сторону отрицательных *x*.

Соответствующие зависимости интенсивностей проходящей и дифрагированной волн показаны на рис.2 и 3 для различных возрастающих больших значений z. Интенсивность падающей волны $I^i = 0.5$. На рис.2 показаны распределения интенсивностей проходящей волны для значений толщины кристалла z от 100 до 300 с шагом $\Delta z = 50$, где µ'z изменяется от 5.5 до 16.4. На рис.3 показаны кривые распределения интенсивности дифрагированной волны для значений толщины кристалла z от 50 до 300 с тем же шагом $\Delta z = 50$, где µ'z изменяется от 5.5 до 16.4. Значения максимумов с увеличением толщины кристалла уменьшаются, поэтому нет необходимости нумеровать кривые на этих рисунках.



Рис.3. Распределение интенсивности дифрагированной волны на выходной поверхности толстого поглощающего кристалла для различных толщин от z = 50 до z = 300 с шагом $\Delta z = 50$. Интенсивность падающей волны $I^i = 0.5$.

Для сравнения на рис.4 приведены зависимости интенсивностей проходящей и дифрагированной волн от x при $z \approx 300$. Напомним, что в линейной теории для толстого поглощающего кристалла распределение интенсивности дифрагированной волны вследствие эффекта Бормана имеет вид гауссиана и его максимум находится в точке 0, а для проходящей волны вследствие того же эффекта с увеличением толщины кристалла максимум смещается в сторону отрицательных x и в пределе находится в точке x = 0. Таким образом, эффект Бормана в нелинейном случае выражается по другому, так как конкурирует с нелинейными эффектами. В линейной теории интегральные (пространственные) коэффициенты



Рис.4. Сравнение интенсивностей проходящей и дифрагированной волн на выходной поверхности толстого поглощающего кристалла для z = 300 и $I^i = 0.5$ в нелинейном случае.

прохождения и отражения не зависят от интенсивности Iⁱ падающей волны.

В нелинейной теории зависимости интегральных коэффициентов от интенсивности падающей волны для z = 5 показаны на рис.5. Интегральный коэффициент прохождения с увеличением интенсивности падающей волны уменьшается почти вдвое, а коэффициент отражения с увеличением интенсивности падающей волны увеличивается почти во столько же раз.

Линейная дифракция таких импульсов описывается зависящими от времени линейными уравнениями Такаги [15,16]. Рассмотрение нелинейной дифракции импульса требует вывода зависящих от времени нелинейных уравнений Такаги.



Рис.5. Зависимости интегральных (пространственных) коэффициентов прохождения и отражения от интенсивности падающей волны для толщины кристалла z = 5.

4. Заключение

Теоретически исследована двухволновая динамическая дифракция пространственно-неоднородной рентгеновской σ-поляризованной волны в идеальном кристалле с нелинейным кубическим откликом на напряженность электрического поля. Рассмотрена динамическая дифракция узкого падающего рентгеновского пучка. Приведены результаты численных расчетов нелинейного уравнения Такаги. Для тонкого кристалла распределение интенсивности дифрагированного пучка на выходной поверхности кристалла асимметрично относительно центра пучка, тогда как в линейном случае распределение интенсивности симметрично. С увеличением интенсивности падающего пучка распределение интенсивности для тонкого кристалла имеет один основной максимум. Для больших толщин кристалла кривая интенсивности дифрагированного пучка при относительно малых интенсивностях падающего пучка тоже имеет один основной максимум. С увеличением толщины кристалла максимум проходящей волны смешается в сторону, противоположную направлению вектора дифракции, а для дифрагированной волны – в направлении вектора дифракции. С увеличением толщины кристалла значения максимумов уменьшаются. Интегральные (пространственные) коэффициенты прохождения и отражения в линейной теории не зависят от интенсивности падающей волны. В нелинейном случае при фиксированной толщине кристалла интегральный коэффициент прохождения уменьшается, а интегральный коэффициент отражения возрастает.

Эксперименты можно проводить, используя рентгеновские источники синхротронного излучения и рентгеновские лазеры на свободных электронах.

Здесь рассматривалась дифракция монохроматической волны, между тем представляет большой интерес нелинейная дифракция рентгеновского импульса, т. к. и рентгеновские лазеры на свободных электронах и синхротронные источники испускают рентгеновские импульсы.

ЛИТЕРАТУРА

- 1. A. Nazarkin, S. Podorov, I. Uschmann, E. Förster, and R. Sauerbrey. Phys. Rev. A, 67, 041804 (2003).
- 2. K. Tamasaku, K. Ishikawa. Phys. Rev. Lett., 98, 244801 (2007).
- 3. K. Tamasaku K., K. Ishikawa. Acta Cryst. A, 63, 437 (2007).
- 4. C. Conti, A. Fratalocchi, G. Ruocco, F. Sette. Optics Express, 16, 8324 (2008).
- 5. M.K. Balyan. Crystallography Reports, 7, 993, 2015.
- 6. R. Boyd. Nonlinear Optics. New York, Academic, 2003.
- 7. М.К. Балян. Кристаллография, 7, (2016) (принята к печати).
- 8. M.K. Balyan. J. Sync. Rad., 22, 1410 (2015).
- 9. A. Authier. Dynamical Theory of X-ray Diffraction. Oxford, Oxford University Press, 2001.
- 10. Y. Epelboin. Acta Cryst. A, 33, 758 (1977).

- 11. И.Ш. Слободетский, Ф.Н. Чуховский. Кристаллография, 15, 1101 (1970).
- 12. N.Kato. Acta Cryst., 14, 526 (1961).
- 13. N.Kato. Acta Cryst., 14, 627 (1961).
- 14. З.Г.Пинскер. Рентгеновская кристаллооптика. Москва, Наука, 1982.
- 15. Л.В.Левонян, К.Г.Труни. Изв. АН Арм ССР, Физика, 13, 108 (1978).
- 16. Л.В.Левонян, К.Г.Труни. Изв. АН Арм ССР, Физика, 14, 253 (1979).

ቡԵՆՏԳԵՆՅԱՆ ՏԱՐԱԾԱԿԱՆՈՐԵՆ ԱՆՀԱՄԱՍԵՌ ՓՆՋԻ ԴԻՖՐԱԿՑԻԱՆ ԵՐՐՈՐԴ ԿԱՐԳԻ ՈՉ ԳԾԱՅՆՈՒԹՅԱՄԲ ԲՅՈՒՐԵՂՈՒՄ

Մ.Կ. ԲԱԼՅԱՆ

Տեսականորեն հետազոտված է տարածականորեն անհամասեռ ռենտգենյան ալիքի դիֆրակցիան արտաքին դաշտի լարվածության երրորդ կարգի ոչ գծային արձագանքով բյուրեղում։ Թվային հաշվարկի օգնությամբ ընկնող նեղ փնջի երկալիքային դիֆրակցիայի համար ուսումնասիրված են ինտենսիվության բաշխումները բյուրեղի ելքի մակերևույթին կախված հաստությունից և ընկնող փնջի ինտենսիվությունից։ Բերված են անցման և անդրադարձման ինտեգրալ (տարածական) գործակիցների թվային հաշվարկների արդյունքները կախված ընկնող փնջի ինտենսիվությունից բյուրեղի հաստության սևեռված արժեքի համար։

DIFFRACTION OF AN X-RAY SPATIALLY INHOMOGENEOUS BEAM IN A CRYSTAL WITH THIRD-ORDER NONLINEARITY

M.K. BALYAN

The diffraction of a spatially inhomogeneous X-ray wave in a crystal with the third-order nonlinear response to the strength of an external field is theoretically considered. For the two-beam diffraction case by means of numerical calculations for a narrow incident beam the intensity distributions on the exit surface of the crystal depending on the thickness and on the intensity of the incident wave are investigated. The results of numerical calculations of the integral (spatial) transmission and reflection coefficients depending on the intensity of the incident wave for a fixed thickness of the crystal are presented.