مجلهٔ پژوهش فیزیک ایران، جلد ۷، شمارهٔ ۱، بهار ۱۳۸۶

تحلیل پراکندگی پرتوهای X تشدید یافته در لبهٔ K ی Mn در $Nd_{0/5}Sr_{0/5}MnO_3$

عبدالله محمدی تبار[۱]، محمد ابراهیم قاضی[۱] و هادی عربشاهی[۲]

۱. دانشکدهٔ فیزیک دانشگاه صنعتی شاهرود
۲. گروه فیزیک دانشگاه تربیت معلم سبزوار

(دریافت مقاله: ۸۵/۱/۲۲ ؛ دریافت نسخهٔ نهایی: ۸۶/۱/۲۰)

چکیده

مطالعه بر روی پدیده‌هایی چون نظم بار، اسپین و اربیتال در منگنایتها در سالهای اخیر توجه بسیار زیادی را به خود جلب کرده است. با استفاده از سینکروترونهای امروزی مطالعهٔ این پدیده‌ها امکان پذیر شده است. چرا که به وسیله آنها می‌توان پرتو x با شار فوتونی بالا، انرژی و قطبیدگی دلخواه تولید کرد. در این مقاله با محاسبه فاکتور پراکندگی، شدت قله‌های ناشی از نظم اربیتال و بار در ترکیب $Nd_{0/5}Sr_{0/5}MnO_3$ با توجه به ساختار آن و مدلی که معرفی گردیده است، محاسبه شده است. سپس وابستگی شدت این قله‌ها به انرژی فوتون فرودی و دوران نمونه حول بردار پراکندگی مورد بررسی قرار گرفته است.

واژه‌های کلیدی: نظم بار، نظم اربیتال، منگنایت، پراکندگی اشعه x تشدید یافته

۱. مقدمه

کشف ابررسانای دمای بالا در اکسیدهای مس در سال ۱۹۸۶ [۱] و مقاومت مغناطیسی فوق العاده بزرگ[۱] (CMR) در سال ۱۹۹۳ در برخی از اکسیدهای فلزات واسطه [۲] باعث شد که تلاش وسیعی برای مطالعهٔ اکسیدهای عناصر واسطه صورت گیرد. اثر MR مشاهده شده در منگنایتهای[۲] با ساختار پروسکایت بسیار بزرگتر از مقدار مشاهده شده در دیگر مواد است، لذا عبارت CMR برای آن، مورد استفاده قرار گرفت. این اثرها در اکسیدهای فلزات واسطه با آلایش حفره‌ای مشاهده شده‌اند و باعث شد که تحقیقات وسیعی بر روی این مواد هم به صورت تئوری و هم به طور تجربی با استفاده از تکنیکهای مختلفی از جمله پراکندگی پرتوهای X ، پراش نوترونی و الکترونی انجام پذیرد. این آزمایشها شواهدی از وجود نظم متناوب اسپین، بارو اربیتال را در دماهای پایین، در بعضی ترکیبات منگنز، نیکل و مس را نشان می‌دهند.

این ترکیبها در حالت بدون آلایش حفره‌ای ($x=0$)، مثل $LaMnO_3$ ، $PrMnO_3$ ، $NdMnO_3$ در همه دماها عایق هستند. این مواد می‌توانند با یونهای دو ظرفیتی (مثل Sr^{2+}) آلایش یابند، و نتیجه این آلایش ایجاد حفره در سیستم می‌باشد وحرکت این حفره‌ها می‌تواند خاصیت فلزی را برای ماده فراهم آورد. اثرهای هیبریداسیون و برهمکنش الکترونها بر توزیع حفره‌ها تأثیر می‌گذارند و باعث می‌شوند که در دمای گذار نظم بار (T_{CO})، حفره‌ها در نوارهای تناوبی نظم بگیرند.

نظم بار پدیده‌ای است که در گستره وسیعی از مواد، شامل عناصر مغناطیسی، مشاهده شده است و به معنای جایگزیدگی حاملهای بار الکتریکی در موقعیتهای خاصی در شبکه بلور است. این در دمایی کمتر از T_{co} اتفاق می‌افتد و نظمی را در

۱. Colosal Magnetoresistance
۲. Manganite

بلور به وجود می‌آورد که البته بستگی به میزان آلایش حفره‌ای سیستم دارد. از نظر تاریخی مشاهدهٔ نظم بار در منگنایتها برای اولین بار توسط ولان و کوهلر[۱] صورت گرفت [۳]. در بعضی از ترکیبات در دماهای کوچکتر از دمای T_{so} (دمای گذار نظم اسپین) اسپینهای یونها و T_{OO}، اربیتالها نیز می‌توانند منظم شوند که به ترتیب نظم اسپین و اربیتال نامیده می‌شوند. دمای گذار به این حالات منظم در ترکیبات مختلف متفاوت می‌باشد.

قله‌های متناظر با نظم بار می‌توانند با پراش پرتوهای X آشکار سازی شوند اما شدت آنها 10^{-3}–10^{-4} بار کوچکتر از قله‌های براگ هستند. ضمن این که قله‌های نظم اوربیتال و اسپین، به اندازهٔ ضریب 10^{-6} کوچکتر از این مقدار هستند [۴]. تکنیکهای جدید پراکندگی پرتو X، با استفاده از منابع دارای شار فوتونی زیاد (سینکروترون)، برای آشکارسازی ساختار و رفتار مغناطیسی مواد، در طی ده سال اخیر توجه زیاد دانشمندان را به خود جلب کرده است. پراکندگی پرتوهای X تشدید یافته[۲] (که هنگامی اتفاق می‌افتد که انرژی پرتو X فرودی بر لبهٔ جذب عنصر مورد مطالعه منطبق شود) حساسیتهایی نشان می‌دهد که مستقیماً منجر به تعیین ساختار مغناطیسی می‌شود. تعیین دقیق قطبیدگی پرتوهای ورودی و خروجی مسیر جدیدی برای تعیین ساختار مغناطیسی باز کرده است و اجازه جداسازی سهم اسپین و اوربیتال را در پراکندگی فراهم نموده است.

۲. منگنایتها

منگنایتها دارای فرمول عمومی $Ln_{1-x}A_xMnO_3$ می‌باشند که در آن Ln یکی از لانتانیدهای سه ظرفیتی مثل Nd, Pr, La می‌باشد و A عنصر قلیایی خاکی دو ظرفیتی مثل Ca ، Sr و Ba است. این ترکیبات دارای ساختار پروسکایت هستند و مواد ایده آلی برای مطالعه بر روی فیزیک دستگاههای الکترونی با همبستگی شدید هستند. مطالعه روی منگنایتها از سال ۱۹۵۰ آغاز و با مشاهدات تجربی CMR در $Nd_{0.5}Pb_{0.5}MnO_3$ [۵] و $La_{2/3}Ba_{1/3}MnO_3$ [۶] دوباره قوت گرفت. علاوه بر کشف CMR، دو پدیدهٔ جالب دیگر، نظم بار (CO) و نظم اوربیتال (OO) نیز مشاهده شده است .

در منگنایتها مقدار آلایش، x، تناسب اتمهای Mn را درحالت اکسیداسیون ۴+ و ۳+ کنترل می‌کند. آزمایشهای بسیاری نشان داده‌اند که خواص الکتریکی، مغناطیسی و ساختاری منگنایتها با تغییر در غلظت حاملهای بار، تغییر می‌کند. یون Mn^{3+} چهار الکترون در تراز 3dی خود دارد. برهمکنش‌های الکترونی بین این چهار الکترون و میدان بلوری (ناشی از یونهای اکسیژن مجاور) باعث شکافتن این ترازهای 3d با تبهگنی پنج گانه به دو زیرلایه انرژی می‌شود. سه تا از این الکترونها تراز انرژی پایین‌تر t_{2g}، با تبهگنی سه گانه، را اشغال می‌کنند و الکترون باقی‌مانده تراز انرژی بالاتر e_g ، با تبهگنی دوگانه، را اشغال می‌کنند. این حالت بسیار ناپایدار است و این منجر به اثر شناخته شده یان- تلر (J-T)[۳] می‌شود که سیستم انرژی خود را از طریق شکافتن این حالت دوگانه به دو زیر لایهٔ انرژی کاهش می‌دهد. تبهگنی دوگانه برای الکترون e_g بدین معنی است که دو اوربیتال برای اشغال کردن وجود دارد، این، دو درجهٔ آزادی اسپینی و اوربیتالی را ناشی می‌شود. در منگنایتهای با ساختار پروسکایت، دافعهٔ کولنی، اثر یان- تلر بر روی ترازهای انرژی الکترون e_g ، برهمکنش الکترون- شبکه، و برهمکنش تبادل دوگانه[۴] نقش بسیار مهمی را در بسیاری از حالتهای متفاوت ماده، مخصوصاً در ثبات حالت نظم بار بازی می‌کنند [۳]. اعوجاج ساختمان هشت وجهی MnO_6 نیز به علت اثر J-T تأثیر بسزایی در گذار فاز مرتبهٔ اول فلز- نارسانا (MI)[۵] در این ترکیبات بازی می‌کند [۷].

حساسیت پراکندگی پرتو X به نظم اوربیتالی در اکسیدهای عناصر واسطه هنگامی افزایش می‌یابد که انرژی پرتو X فرودی بر لبهٔ جذب عنصر مورد نظر تنظیم شود. نتایج آزمایشهای انجام شده بر روی $LaMnO_3$ [۸] ، $La_{0.5}Sr_{1.5}MnO_4$ [۹] و $Nd_{0.5}Sr_{0.5}MnO_3$ [۱۰, ۱۱] وجود قله‌های نظم بار و اوربیتال

---

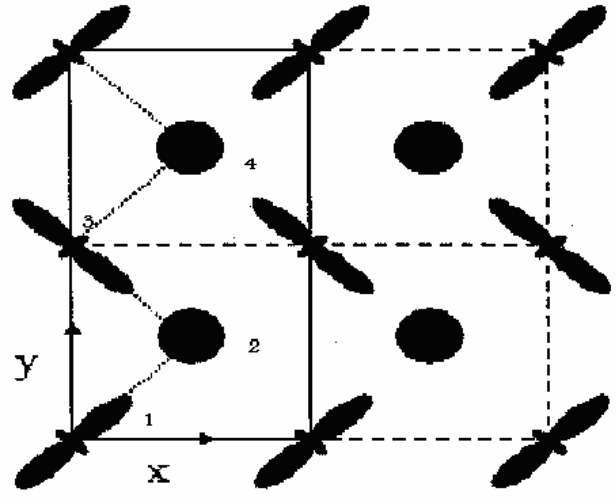
۱. Wollan & Koehler

۲. Resonance X-ray scattering

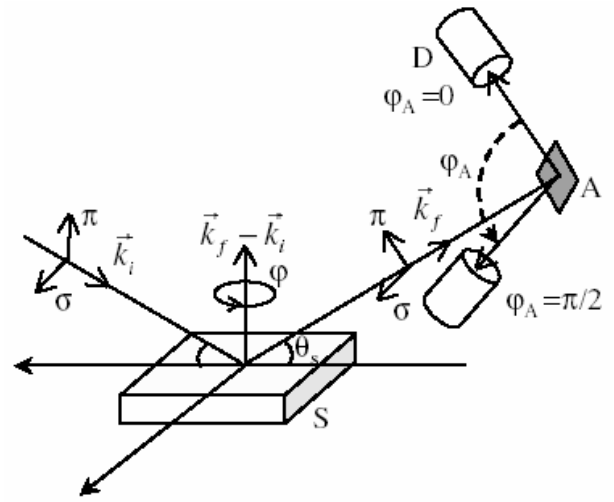
۳. Jahn-Teller

۴. Double exchange

۵. Metal-Insulator transition



شکل ۱. طرح شماتیک نظم بارو اوربیتال نوع CE در منگنایتهای با آلایش نیمه به همراه سلول واحد $Nd_{0/5}Sr_{0/5}MnO_3$. اوربیتالهای کشیده اوربیتالهای e_g یون Mn^{3+} و دایره‌ها یون Mn^{4+} هستند.



شکل ۲. طرح شماتیک آزمایش پراکندگی پرتو X، بلور مورد آزمایش S – بلور آنالیزور A – آشکار ساز D. $\vec{k}_i$ و $\vec{k}_f$ پرتوهای X فرودی و پراکنده شده هستند [۱۴]

را نشان داده است. این قله‌ها یک افزایش زیاد در شدت را در لبه جذب Kی Mn نشان می‌دهند. همچنین در وابستگی شدت قله‌ها به تغییر زاویه سمتی (چرخش نمونه حول بردار پراکندگی) تقارن مشاهده شده است، که ناشی از همسانگردی چگالی الکترون در صفحهٔ ab ناشی از نظم اوربیتالی است.

در $Nd_{1-x}Sr_xMnO_3$ نظم بار تنها به یک گستره محدود و غلظت Sr حوالی x=۱/۲ منحصر شده است. دیاگرام فازی آن [۱۲] نشان می‌دهد که این ترکیب بر حسب x و دما دارای ساختارهای مغناطیسی متفاوتی است. این ماده در دماهای بالا پارامغناطیس و عایق است. در آلایش کم، نظم مغناطیسی حالت پایه سیستم، فاز فرومغناطیس است و با افزایش x به فاز نظم بار با آرایش اسپینی پاد فرو مغناطیس (نوع CE) تبدیل می‌شود. با افزایش بیشتر Sr، حالت پاد فرومغناطیس نوع A به وجود می‌آید که خاصیت فلزی دارد و در نهایت به آنتی فرومغناطیس عایق نوع C ختم می‌شود. نظم بار- اسپین نوع CE تنها در x=۱/۲ پایدار است. توزیع بار به صورت نظم نوع CE در یونهای Mn^{3+} و Mn^{4+} تنها در صورت حضور الکترونهای غیر جایگزیده e_g اتفاق می‌افتد.

در ترکیب $Nd_{0/5}Sr_{0/5}MnO_3$ در حوالی ۱۶۰K یک گذار مرتبهٔ اول به حالت نارسانا مشاهده می‌شود. این حالت نارسانا یک حالت نظم بار حاصل از زیرلایه‌های متناوب Mn^{3+} و Mn^{4+} است. این نظم بار که از نوع CE می‌باشد با نظم اسپین و اوربیتال توام بوده و همچنین با اعوجاجهای زیاد شبکه همراه است [۱۳]. طرح شماتیک نظم بار و اربیتال در شکل ۱ نشان داده شده است.

پراکندگی تشدیدی در واقع وقتی امکان پذیر است که بتوانیم انرژی فوتون فرودی را تغییر و مساوی یکی از لبه‌های جذب عنصر مورد نظر انتخاب کنیم. همچنین در مطالعهٔ نظم بار، اسپین و اربیتال باید پرتو فرودی دارای قطبیدگی معین و مطالعهٔ قطبیدگی پرتوهای پراکنده نیز امکان پذیر باشد. علاوه بر اینها به علت ضعیف بودن شدت بازتابهای ناشی از این نظمها، عملاً استفاده از منابع آزمایشگاهی تولید پرتوهای x برای این کار امکان پذیر نمی‌باشد. ولی منابع سینکروترون امروزی به دلیل داشتن چگالی شار فوتونی بالا، قابلیت تغییر انرژی فوتون فرودی و درجه بالایی از قطبیدگی خطی، شرایط فوق را برآورده می‌کنند. طرح شماتیک آزمایش پراکندگی در شکل ۲

نشان داده شده است. به دلیل این که دمای گذار به این حالات منظم در این ترکیب پایین‌تر از ۱۶۰K می‌باشد، نمونه در داخل سرما ساز قرار می‌گیرد. پرتوهای X تکفام فرودی بعد از پراکنده شدن وارد بلور آنالیزور جهت تحلیل قطبیدگی پرتوهای پراکنده می‌شوند که در این مورد از یک تک بلور مس استفاده می‌شود و بازتابی از آن انتخاب که در انرژی متناظر با لبه جذب منگنز دارای زاویه پراکندگی ۹۰ درجه باشد. سپس پرتو وارد آشکار ساز می‌گردد. با چرخش بلور آنالیزور حول پرتو پراکنده، مولفه‌های قطبیده خطی σ (در صفحه مدار سینکروترون) و π (عمود بر آن) پرتو پراکنده می‌توانند به طور مجزا مطالعه گردند و امکان تمایز بین پراش ناشی از بار و مغناطیس وجود دارد.

در این مقاله هدف محاسبه فاکتورهای پراکندگی و شدت پیکهای نظم بار و اربیتال مشاهده شده در لبهٔ جذب Kی Mn در این ترکیب بر اساس مدلی از نظم بار و اربیتال است. نتایج محاسبات با نتایجی که از طریق پراکندگی پرتوهای X تشدید یافته به دست آمده است مقایسه خواهد شد.

۳. محاسبهٔ فاکتورهای پراکندگی و شدت بازتابهای ناشی از نظم بار و اربیتال

نزدیک به هر لبهٔ جذب اتمی (در این مورد لبهٔ K) فاکتور پراکندگی اتمی با معادلهٔ زیر داده می‌شود .

$$f_{(E)} = f_{\circ} + f'_{(E)} + f''_{(E)} \qquad (۱)$$

که در آن $f_{\circ}$ فاکتور پراکندگی تامسون و f' و f'' قسمتهای حقیقی و موهومی فاکتور پراکندگی غیرعادی هستند. $f_{\circ}$ مستقل از انرژی است اما f' و f'' توابعی از انرژی هستند.

ابتدا به محاسبه فاکتور ساختار برای بازتابهای $(\circ,\mathrm{h},\circ)$ و $(k,\circ,\circ)$ ناشی از نظم بار (h و k فرد هستند) و همچنین بازتاب $(\circ, k/۲,\circ)$ ناشی از نظم اوربیتال که با استفاده از تکنیک پراش پرتوهای x با استفاده از تابش سینکروترون مشاهده شده است، می‌پردازیم [۱۰ , ۱۱]. سلول واحد مدل در نظر گرفته شده در شکل ۱ دارای ابعاد $a\times ۲b\times c$ با گروه فضایی Ibmm است. هشت اتم Mn در این سلول واحد سهیم هستند، اما از آنجا که در راستای محور c اتمهای Mn هم ارز هستند، ما می‌توانیم به طور مؤثر به چهار اتم Mn با مختصات (۱/۲, ۳/۲, ۱/۲)، (۰, ۰, ۰)، (۱/۲, ۱/۲, ۱/۲)، (۰, ۱, ۰) اکتفا کنیم (که در شکل با شماره‌های ۱ تا ۴ شماره گذاری شده‌اند). در شکل ۳ هشت وجهیهای $Mn^{+۳}O_{۶}$ و $Mn^{+۴}O_{۶}$ که به ترتیب در شکل با شماره‌های ۱ و ۲ مشخص شده‌اند، نشان داده شده است. $Mn^{۴+}$ فاقد الکترون در اوربیتال e_g و همسانگرد است و هشت وجهی منتظم دارد و $Mn^{۳+}$ با دارا بودن یک الکترون در اوربیتال e_g و داشتن آزادی اوربیتالی، ناهمسانگرد و هشت وجهی اعوجاج یافته دارد. پس فاکتور ساختار برای بازتابهای ذکر شده به شرح زیر می‌باشد:

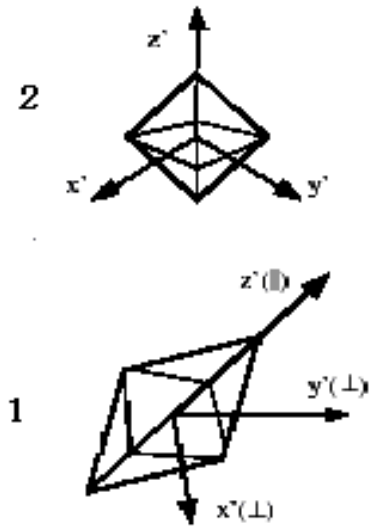
$$F_{hkl} = \sum_{۱}^{N} f_n e^{۲\pi i(hu_n + kv_n + lw_n)}$$

$$F_{(\circ,k,\circ)} = f_۱ exp(\circ) + f_۲ exp(۲\pi i \tfrac{k}{۲}) + f_۳ exp(۲\pi i k) + f_۴ exp(۲\pi i \tfrac{۳k}{۲}) = f_۱[۱] + f_۲[-۱] + f_۳[۱] + f_۴[-۱] = f_۱ - f_۲ + f_۳ - f_۴ \qquad (۲)$$

$$F_{(h,\circ,\circ)} = f_۱ exp(\circ) + f_۲ exp(۲\pi i \tfrac{h}{۲}) + f_۳ exp(\circ) + f_۴ exp(۲\pi i \tfrac{h}{۲}) = f_۱[۱] + f_۲[-۱] + f_۳[۱] + f_۴[-۱] = f_۱ - f_۲ + f_۳ - f_۴ \qquad (۳)$$

$$F_{(\circ,k/۲,\circ)} = f_۱ exp(\circ) + f_۲ exp(۲\pi i \tfrac{k}{۴}) + f_۳ exp(۲\pi i \tfrac{k}{۲}) + f_۴ exp(۲\pi i \tfrac{۳k}{۴}) = f_۱[۱] + f_۲[i] + f_۳[-۱] + f_۴ + [-i] = f_۱ - f_۳ + i(f_۲ - f_۴) \qquad (۴)$$

f_iها فاکتور پراکندگی غیرعادی مربوط به اتم i ام منگنز است. فاکتور پراکندگی غیرعادی برای هر اتم به صورت یک ماتریس است. در این جا اتمهای ۲ و ۴ که $Mn^{۴+}$ می‌باشند، اتمهای متقارنی (یا همسانگرد) هستند چون فاقد الکترون e_g هستند و تنها دارای سه الکترون در تراز ۳d ($t_{۲g}$) هستند، اما اتمهای ۱ و ۳ که $Mn^{۳+}$ هستند (به علت اعوجاج یان – تلر) اتمهای ناهمسانگرد می‌باشند. فاکتور پراکندگی غیرعادی برای اتمهای زوج را می‌توان به فرم یک ماتریس قطری با سه مؤلفه یکسان در نظر گرفت در صورتی که برای اتمهای فرد این ماتریس در دستگاه $x'y'z'$ (دستگاه متصل به هر هشت وجهی، شکل ۳) ماتریس قطری با مؤلفه‌های $f_{۱۱}$, (فاکتور پراکندگی در جهت



شکل ۳. هشت وجهیهای $Mn^{+3}O_6$ (شماره ۱) و $Mn^{+4}O_6$ (شماره ۲) که در شکل ۱ با شماره‌های ۱ و ۲ مشخص شده‌اند.

ناهمسانگردی) و $f_\perp$ (فاکتور پراکندگی عمود بر راستای ناهمسانگردی) می‌باشد، یعنی:

$$f_1=\begin{pmatrix} f_\perp & 0 & 0\\ 0 & f_\perp & 0\\ 0 & 0 & f_{11}\end{pmatrix},\qquad f_2=f_4=\begin{bmatrix} f & 0 & 0\\ 0 & f & 0\\ 0 & 0 & f\end{bmatrix},$$
$$f_3=\begin{pmatrix} f_\perp & 0 & 0\\ 0 & f_\perp & 0\\ 0 & 0 & f_{11}\end{pmatrix}. \qquad (۵)$$

دراین مدل با توجه به نتایج تجربی فرض شده است که راستای ناهمسانگردی با محورهای xyz بلور، زاویه 45° می‌سازد. پس ماتریسهای فوق را می‌توانیم با استفاده از ماتریسهای دوران در دستگاه متصل به سلول واحد xyz به شکل زیر بنویسیم :

$$f_1=\tfrac{1}{2}\begin{bmatrix} f_\perp+f_{II} & f_\perp-f_{II} & 0\\ f_\perp-f_{II} & f_\perp+f_{II} & 0\\ 0 & 0 & 2f_\perp\end{bmatrix},$$
$$f_2=f_4=\begin{bmatrix} f & 0 & 0\\ 0 & f & 0\\ 0 & 0 & f\end{bmatrix},$$
$$f_3=\tfrac{1}{2}\begin{bmatrix} f_\perp+f_{II} & f_{II}-f_\perp & 0\\ f_{II}-f_\perp & f_\perp+f_{II} & 0\\ 0 & 0 & 2f_\perp\end{bmatrix}. \qquad (۶)$$

با جایگذاری در معادلات ۲ تا ۴ فاکتورهای ساختار چنین به دست می‌آیند:

$$F(h,0,0)=F(0,k,0)=\begin{bmatrix} f_\perp+f_{II}-2f & 0 & 0\\ 0 & f_\perp+f_{II}-2f & 0\\ 0 & 0 & 2f_\perp-2f\end{bmatrix}$$

$$F(0,k/2,0)=\begin{bmatrix} 0 & f_\perp-f_{II} & 0\\ f_\perp-f_{II} & 0 & 0\\ 0 & 0 & 0\end{bmatrix}. \qquad (۷)$$

شدت پراکندگی پرتو X تشدید یافته از رابطهٔ زیر به دست می‌آید [۱۴] :

$$I(\varphi,\varphi_A)=\sum_{\lambda_i}\left|\sum_{\lambda_f}M_{\lambda_i\lambda_f}(\varphi_A)\cdot A_{\lambda_i\lambda_f}(\varphi)\right|^2 \qquad (۸)$$

که در آن λ_i و λ_f نشان دهندهٔ قطبش پرتو X فرودی و پراکنده شده هستند. $M(\varphi_A)$ ماتریس پراکندگی آنالیزور و A به صورت زیر می‌باشند [۱۴]:

$$M(\varphi_A)=F_A\begin{pmatrix}\cos\varphi_A & -\sin\varphi_A\\ \sin\varphi_A\cos2\theta_A & \cos\varphi_A\cos2\theta_A\end{pmatrix}, \qquad (۹)$$

$$A_{\lambda_i\lambda_f}(\varphi)=\frac{e^2}{mc^2}\vec{e}_{k_f\lambda_f}\left[U(\varphi)VFV^+U^+(\varphi)\right]\vec{e}^{+}{}_{k_i\lambda_i}\ . \qquad (۱۰)$$

در روابط فوق F_A فاکتور پراکندگی ساختار مربوط به بلور آنالیزور ، F فاکتور پراکندگی ساختار نمونه در مختصات متصل به بلور (xyz) ، θ_A زاویه پراکندگی آنالیزور که مقدار آن 90° گرفته می‌شود، φ_A زاویه سمتی آنالیزور (که برای پراکندگی σ صفر درجه و برای پراکندگی π نود درجه می‌باشد) ، V ماتریس تبدیل دستگاه مختصات متصل به بلور به دستگاه مختصات آزمایشگاهی یعنی $(\hat{e}_1,\hat{e}_2,\hat{e}_3)$ و θ زاویه پراکندگی بازتاب مورد نظر است . U ماتریس چرخش بلور حول بردار پراکندگی است که با توجه به شکل ۲ و با انتخاب محور y در راستای بردار پراکندگی $(\vec{q}=\vec{k}_f-\vec{k}_i)$، می‌توان U را بدین صورت نوشت:

$$U(\varphi)=\begin{pmatrix}\cos\varphi & 0 & -\sin\varphi\\ 0 & 1 & 0\\ \sin\varphi & 0 & \cos\varphi\end{pmatrix} \qquad (۱۱)$$

$\vec{e}_{k_i}$ و $\vec{e}_{k_f}$، به ترتیب بردارهای قطبیدگی پرتوهای X فرودی و پراکنده هستند که در دستگاه مختصات آزمایشگاهی با توجه به شکل ۲ برای قطبیدگیهای σ و π پرتوهای فرودی و پراکنده عبارتند از:

$$\vec{e}_{k_i\sigma}=(۱\ \ ۰\ \ ۰)\ ,\quad \vec{e}_{k_f\sigma}=(۱\ \ ۰\ \ ۰)\ , \qquad (۱۲)$$

$$\vec{e}_{k_i\pi}=(\sin\theta_s\ \ \cos\theta_s\ \ ۰)\ ,\quad \vec{e}_{k_f\pi}=(-\sin\theta_s\ \ \cos\theta_s\ \ ۰)\ .$$

البته ذکر این مطلب ضروری است که سهم مربوط به پراکندگی تامسون چون یک جملهٔ ثابت مستقل از انرژی است و تنها باعث ایجاد یک شدت زمینه می‌شود، در محاسبات در نظر گرفته نشده است.

۳. ۱. محاسبهٔ شدت پراکندگی از قلهٔ نظم بار (h,۰,۰) در کانال σ - σ و σ - π

با استفاده از روابط ذکر شده فوق برای قلهٔ (h,۰,۰) داریم :

$$I^{\sigma\sigma}_{(h۰۰)}=\left[F_A\frac{e^۲}{mc^۲}\right]^۲\Big[(f_\perp+f_{\rm II}-۲f)\sin^۲\varphi+ ۲(f_\perp-f)\cos^۲\varphi\Big]^۲ \qquad (۱۳)$$

به طور مشابه برای کانال σ - π، با جایگذاری مقادیر متناظر نتیجه می‌شود:

$$I^{\sigma\pi}_{(h۰۰)}=\left[F_A\frac{e^۲}{mc^۲}\right]^۲\Big[(f_\perp-f_{\rm II})\sin\varphi\cos\varphi\sin\theta\Big]^۲\ . \qquad (۱۴)$$

۳. ۲. محاسبه شدت پراکندگی از قلهٔ نظم اوربیتال (۰,k/۲,۰) در کانال σ - σ و σ - π

$$\Rightarrow I^{\sigma\sigma}_{(۰,k/۲,۰)}=۰\ , \qquad (۱۵)$$

$$I^{\sigma\pi}_{(۰,k/۲,۰)}=\left[F_A\frac{e^۲}{mc^۲}\right]^۲\Big[\sin^۲\varphi\cos^۲\theta(f_\perp-f_{\rm II})^۲\Big]\ . \qquad (۱۶)$$

۴. نتایج

تشدید اصلی در شدتها در لبهٔ جذب *K*ی اتم Mn اتفاق می‌افتد. مقدار انرژی لبهٔ جذب یک اتم در ترکیب به دو عامل حساس است: یکی به حالت ظرفیت اتم، و دیگری به شرایط محیط اطراف اتم (همسانگردی یا نا همسانگردی). برای قطبیدگیهای متفاوت، عامل اول جابه‌جایی شیمیایی[۱] و مورد دوم، جابه‌جایی نا همسانگردی[۲] خوانده می‌شود. وضعیت انرژی لبه جذب به زاویه بین بردار قطبیدگی پرتو X و جهت محور نا همسانگردی اتم بستگی دارد. در محاسبات انجام شده δ_{chem}=۰/۷ eV و δ_{anis}=۱/۶ eV انتخاب [۱۵] و از داده‌های تجربی بخش حقیقی f' و موهومی f'' فاکتور پراکندگی برحسب انرژی، مربوط به نمونه‌های $LaMnO_۳$ و $CaMnO_۳$ استفاده شده است [۱۶]. لازم به ذکر است که در نمونهٔ اول یونهای Mn به شکل $Mn^{۳+}$ و در نمونهٔ دوم به شکل $Mn^{۴+}$ می‌باشند.

شکل ۴ (سمت راست) شدت پراکندگی ناشی از قلهٔ نظم بار (۰، ۰، ۳) را در کانال σ - σ بر حسب تغییر در انرژی فوتون فرودی نشان می‌دهد. شکل برای دو زاویهٔ سمتی متفاوت φ رسم گردیده است. تشدید در انرژی ۶۵۵۷ eV اتفاق می‌افتد که متناظر با لبهٔ جذب *K*ی اتم منگنز می‌باشد.

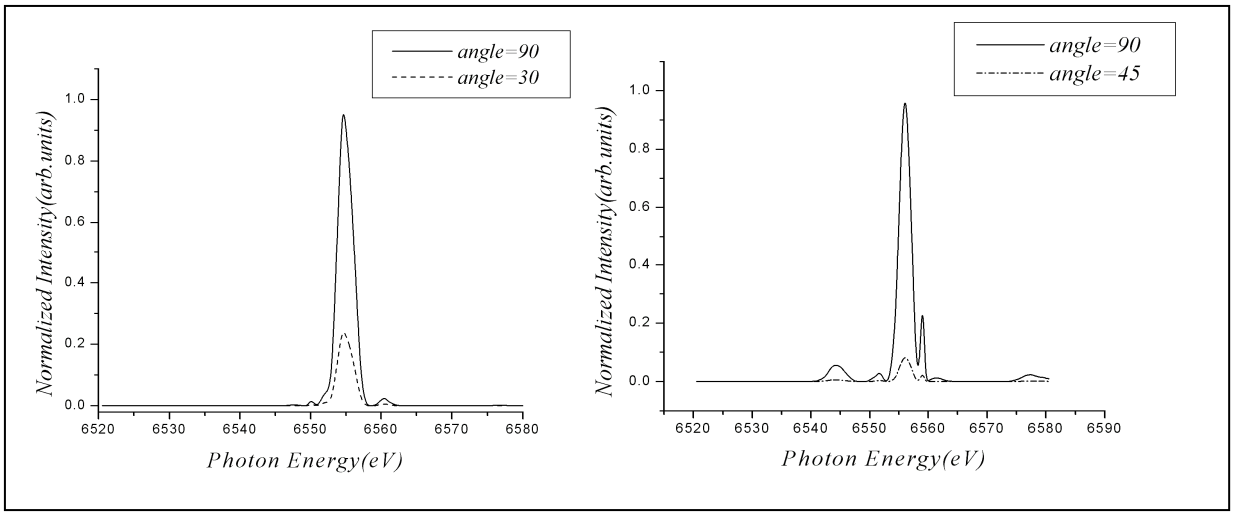
در شکل ۵ (سمت راست) بستگی شدت این قله بر حسب زاویه سمتی (دوران نمونه حول بردار پراکندگی) رسم شده است. همان طور که شکل به خوبی نشان می‌دهد شدت قلهٔ وابسته به زاویهٔ سمتی می‌باشد که ناشی از تغیرات چگالی اوربیتال e_g ی منگنز در صفحه *ab* می‌باشد. شکل به ازای انرژیهای متفاوت رسم شده است و همان طور که ملاحظه می‌گردد وقتی از انرژی تشدید دور می‌شویم، شدت کاهش می‌یابد تا این که در انرژی ۶۵۷۰ eV که دور از لبه جذب می‌باشد، شدت تقریباً ثابت و صفر می‌شود. لازم به ذکر است که شدت پراکندگی ناشی از نظم بار در کانال چرخیده π - σ در مقابل σ - σ خیلی کوچک و تقریباً صفر می‌باشد.

حال به بررسی نتایج حاصل از بازتاب ناشی از نظم اوربیتال می‌پردازیم. نمودار شدت بر حسب انرژی و زاویه سمتی برای قلهٔ (۰,k/۲,۰) در شکلهای ۴و ۵ (سمت چپ) نشان داده شده است. تشدید در انرژی حدود ۶۵۵۷ eV اتفاق می‌افتد که به خوبی بستگی به انرژی را نشان می‌دهد. لازم به ذکر است همان طور که معادلهٔ (۱۵) نشان می‌دهد شدت این قله در کانال σ - σ صفر می‌باشد. وابستگی شدت به زاویه سمتی نیز نشان می‌دهد که ماکزیمم شدت در انرژی تشدید اتفاق می‌افتد و به طور مشابه وقتی از انرژی لبهٔ جذب *K*ی اتم منگنز دور می‌شویم شدت تقریباً صفر خواهد شد.

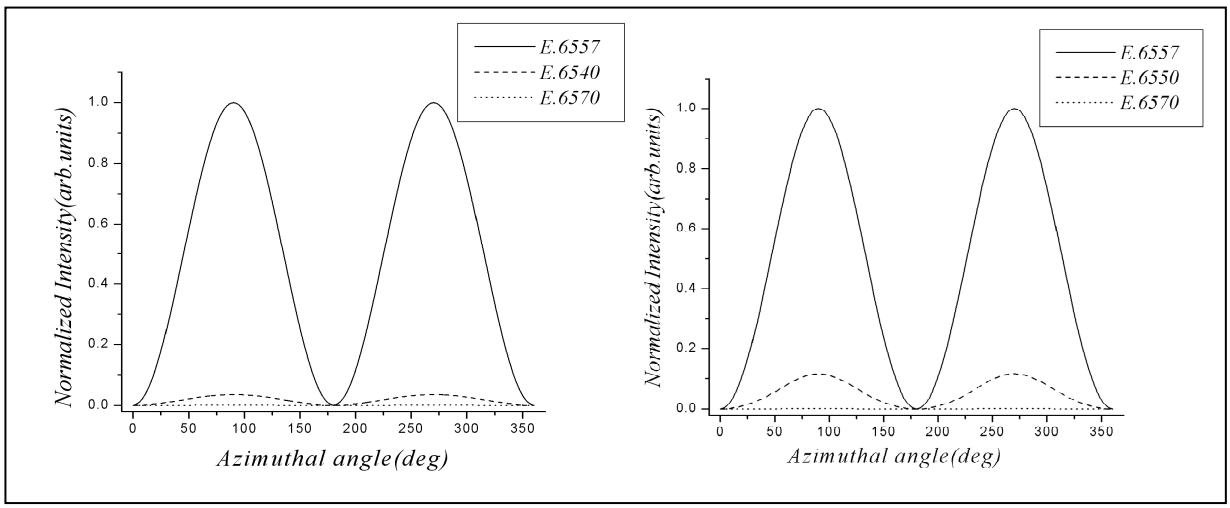
---

۱. Chemical shift

۲. Anisotropic shift



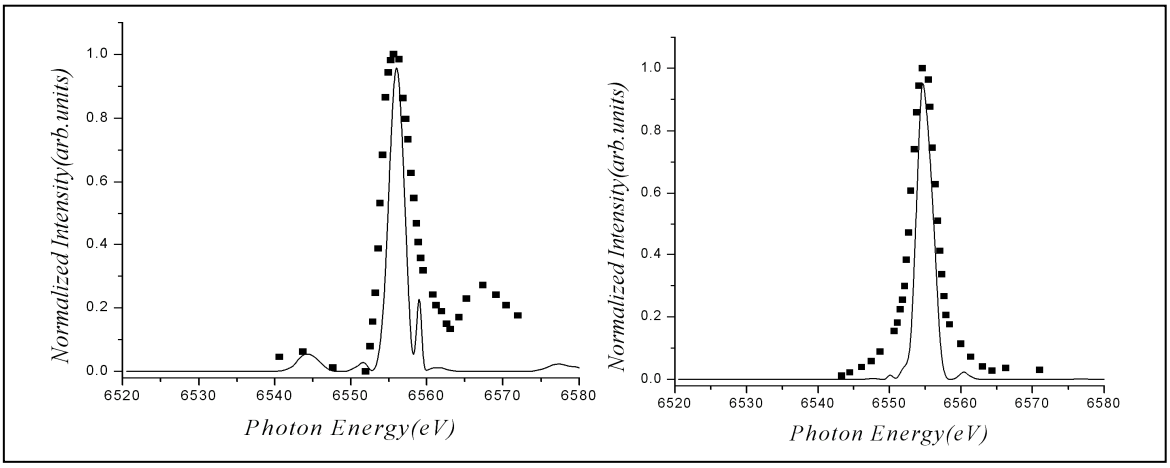
شکل ۴. شدت پراکندگی بازتاب (۳۰۰) در کانال σ - σ ناشی از نظم بار (سمت راست) و بازتاب (۰,k/۲,۰) در کانال π - σ ناشی از نظم اوربیتال (سمت چپ) بر حسب انرژی پرتو X فرودی. خط ممتد به ازای زاویهٔ سمتی ϕ=۹۰° و خط چین به ازای زاویه سمتی ϕ=۴۵° و ۳۰° است.



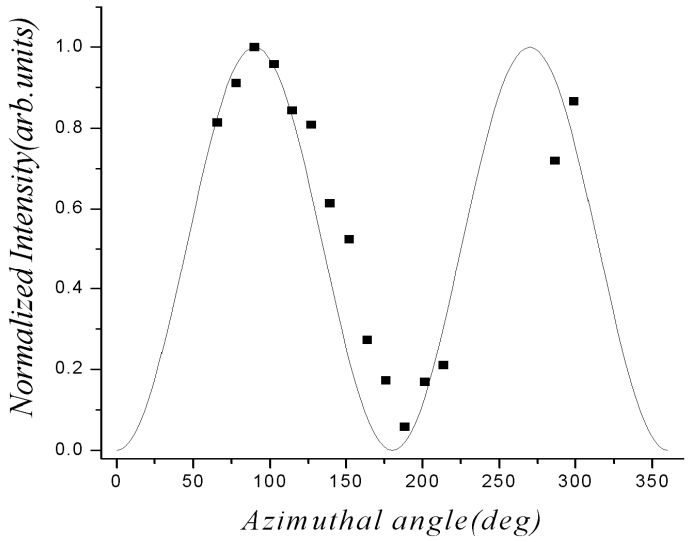
شکل ۵ . شدت پراکندگی بازتاب (۳۰۰) در کانال σ - σ ناشی از نظم بار (شکل سمت زاست) و بازتاب (۰,k/۲,۰) در کانال π - σ ناشی از نظم اوربیتال (سمت چپ) بر حسب زاویهٔ سمتی. خط ممتد به ازای انرژی در لبه جذب و خطهای دیگر به ازای انرژیهای دیگر می‌باشد.

۵. نتیجه‌گیری

مقایسهٔ نتایج به دست آمده بر اساس این مدل و مقادیر اندازه‌گیری شده از بازتابهای نظم بار و اوربیتال در فاز دمای پایین $Nd_{0.5}Sr_{0.5}MnO_3$ با نتایج مارتین و همکارانش [۱۵] و ناکامورا و همکارانش [۱۷] نشان می‌دهد که توافق نسبتاً خوبی وجود دارد که برای مقایسه در شکلهای ۶ و ۷ نشان داده شده است. در این شکلها منحنی نشان داده شده توسط مربعهای کوچک مربوط به داده‌های تجربی ذکر شده می‌باشد. لازم به ذکر است که هر دو منحنی جهت مقایسهٔ بهتر داده‌ها به عدد یک نرمالیزه شده‌اند. منحنیها نشان می‌دهند که در مورد انرژی مربوط به تشدید و همچنین شکل عمومی منحنیها، توافق نسبتاً خوبی بین این نتایج و داده‌های تجربی وجود دارد.



شکل۶. شدت بازتاب نظم بار (۳۰۰) در کانال σ - σ (سمت چپ) و بازتاب نظم اوربیتال (۰، ۵/۲، ۰) در کانال π-σ (سمت راست) برحسب انرژی پرتو X فرودی به ازای زاویهٔ سمتی ϕ =۹۰° خط ممتد، حاصل از محاسبات و مربعها نتیجه [۱۷] آزمایشها می‌باشد.



شکل۷. شدت بازتاب نظم اوربیتال (۰, k/۲, ۰) در کانال π - σ در انرژی لبهٔ جذب، برحسب زاویهٔ سمتی. خط ممتد، حاصل محاسبات و مربعها نتیجه [۱۷] آزمایشها می‌باشد.

در شکل ۷ تغییر شدت بر حسب زاویهٔ سمتی برای بازتاب ناشی از نظم اربیتال به همراه نتایج تجربی (مربعها) جهت مقایسه نشان داده شده است. در آزمایش به علت محدودیتهایی که در چرخش نمونه حول بردار پراکندگی وجود دارد که آن هم به دلیل دستگاه پراش سنج[۱] و آشکار سازها می‌باشد امکان دستیابی به تمام زوایای سمتی وجود ندارد. شکلها نشان دهنده توافق نسبتاً خوبی با تجربه می‌باشند.

نتایج به دست آمده در اینجا بر اساس مدل انتخاب شده می‌تواند تأییدی بر وجود نظم شطرنجی[۲] و همچنین نظم اوربیتالی الکترونهای e_g در ترکیب $Nd_{0/5}Sr_{0/5}MnO_3$ باشد. بدین معنی که این یونهای Mn با ظرفیتهای ۳+ و ۴+ در دماهای پایین مطابق شکل ۱ نظم می‌یابند.

۱. Diffractometer

۲. Cheackerboard pattern

مراجع

1. J Bernors and K A Muller, *Zeitsch for physics* B-*Condensed Matter* **64** (1986) 189.
2. Rvon Helmolt, J Walker, B Holzupfet, et. al., *Phys. Rev. Lett*. **71** (1993) 2331.
3. E O Wollan and W C Koehler, *Phys. Rev*. **100** (1955) 545.
4. J M Tranquada, B J Sternlieb, J D Axe, et. al., *Nature* **375** (1995) 651.
5. R M Kusters, J Singleton, D A Keen, et. al., *Physica* B **155** (1989) 362.
6. C W Searle and S T Wang, *Can. J. Phys*. **47** (1969) 2703.
7. P Dai, J D Zhang, H A Mook, et al., *Phys. Rev*. B **54** (1996) R3694.
8. Y Murakami, J P Hill, D Gibbs, et al., *Phys. Rev. Lett*. **81** (1998) 582.
9. Y Murakami, H Kawada, H Kawata, et al., *Phys. Rev. Lett*. **80** (1998) 1932.
10. K Nakamura, T Arima, A Nakazawa, et al., *Phys. Rev*. B **60** (1999) 2425.
11. J P H Zimmermann M v, Doon Gibbs, M Blume, D casa, B Kimer, Y Murakami, Y tomioka and Y Tokura, *Phys. Rev. Lett*. **83** (1999) 4872.
12. R Kajimoto, H Yoshizawa, H Kawano, et.al,, *Phys. Rev*. B **60** (1999) 9506.
13. H Kuwahara, Y Tomioka, A Asamitsu, et.al, *Science* **270** (1995) 961.
14. Sumio. Ishihara, Sadamichi. Maekava, *Rep. Prog. Phys*. 65 (2002) 561.
15. Javier Herrero-Martín, Joaquín García, et.al, *Phys. Rev*. B **70** (2004) 024408.
16. W Stuart, PhD. thesis, Durham Univ. UK, (2003).
17. K Nakamura, T Arima, A Nakazawa, et.al, *Phys. Rev*. B **60** (1999) 2425.