

01  
**Спектрометрические пары на единой монокристалльной основе в опытах по малоугловому рассеянию нейтронов**

© Н.О. Елютин, Д.В. Львов, А.Н. Тюлюсов

Институт экспериментальной и теоретической физики,  
 Москва, Россия

E-mail: tyulyusov@itep.ru

(Поступила в Редакцию 7 ноября 2012 г.)

С целью развития и совершенствования методики применения двухкристального спектрометра из монокристаллического слитка Si высокого совершенства были на единой основе изготовлены спектрометрические пары в различных сочетаниях геометрии рассеяния: по Брэггу, по Лауэ и их комбинация. Предлагаются возможные схемы их использования в сочетании с кристаллом-анализатором в опытах по малоугловому рассеянию нейтронов.

**1. Введение**

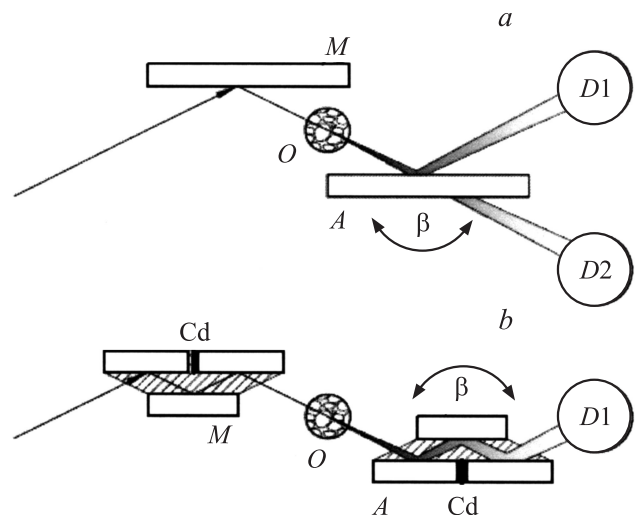
Традиционный двухкристальный спектрометр [1,2] состоит из совершенных кристаллов: монокроматора (*M*) и анализатора (*A*), а также детектора нейтронов (*D1*), отраженных от *A* (рис. 1, *a*). Анализатор помещается на сканирующее устройство, осуществляющее повороты с шагом  $\sim 0.1''$  вокруг оси, перпендикулярной плоскости рассеяния (обычно горизонтальной).

Интенсивность  $I_0$  дважды отраженных нейтронов максимальна, когда плоскости (*hkl*) пары *M* и *A* параллельны. При повороте кристалла-анализатора интенсивность  $I_0$ , регистрируемая *D1*, быстро падает, образуя инструментальную линию  $I_0(\beta)$  (рис. 2, *a*) с полушириной (2–3)'' при длине волны нейтронов  $\lambda = 2 \text{ \AA}$  и использовании кристаллов Si или Ge, вырезанных по плоскостям (111) или (110). При установке образца (*O*) между кристаллами часть нейтронов рассеется на малые углы на неоднородностях образца, размывая  $I_0$ . Но в силу того что углы рассеяния  $\theta$  значительно меньше расходимости пучка ( $\sim 30'$ ) (это сугубо малоугловое рассеяние нейтронов — „ультра“-МУРН), эти нейтроны останутся в ее пределах. Если спектрометрическая пара находится в параллельной позиции, для них будет нарушено условие Брэгга при падении на кристалл *A*, и обнаружить их можно, лишь вращая его на углы  $\beta$ . Полученное при этом распределение  $I(\beta)$  складывается из  $I_0(\beta)$ , спадающей как  $\theta^{-2}$ , „хвосты“ которой простираются до углов 3–5', и дифференциального сечения  $d\sigma/d\beta$ , являющегося усредненным по вертикальным отклонениям нейтронов значением сечения  $d\sigma/d\theta$ , содержащего информацию о неоднородностях образца [3].

Двухкристальная методика допускает оценку характеристик неоднородностей в образце без получения всей картины рассеяния нейтронов по углу  $d\sigma/d\beta$ , лишь при измерении интегральных сечений рассеяния  $\Sigma_S$  (методика Уоррена) [2]. Это позволяет судить об изменениях структуры (в диапазоне надатомных размеров) исследуемого образца [4], тогда информация об угловом распределении нейтронов  $I(\beta)$  может использоваться в качестве дополнительной. Процедура вычисления  $\Sigma_S$

описана в [2]. Однако в методике Уоррена требуется удерживать кристаллы в строго параллельной позиции в течение десятков часов измерений, что технически весьма непросто, и дополнить схему детектором *D2*, фиксирующим пучок, прошедший сквозь образец *O* и кристалл-анализатор *A* (рис. 1, *a*).

Существует способ подавления хвостов кривой  $I_0(\beta)$  — использование кристаллов *M* и *A* „с пропилом“ (рис. 1, *b*), когда из монокристалльного слитка вырезаются пластины, отражающие нейтроны по Брэггу плоскостями (111) или (110) [5,6]. Тогда за счет многократных дифракционных отражений нейтронов в пространстве между пластинами происходит значительное ослабление хвостов. Инструментальная линия  $I_0(\beta)$  (рис. 2, *b*) приобретает форму, близкую к треугольной



**Рис. 1.** Двухкристальный спектрометр на совершенных кристаллах. *a* — традиционная методика: монокроматор (*M*) и анализатор (*A*) — плоские пластины Si или Ge, вырезанные по плоскостям (111) или (110); *b* — использование тех же кристаллов, но „с пропилом“ и Cd-вставкой. *O* — образец, *D1*, *D2* — детекторы полного поглощения,  $\beta$  — угол вращения анализатора *A*.

с основанием  $\sim 3-4''$ , что позволяет измерять МУРН, практически не ощущая ее влияния. Однако помимо потери интенсивности на шести отражениях (рис. 1, *b*) очевидным недостатком является жесткая фиксация  $\lambda$ , в [6] равной 4.4 Å. Другим ограничением является невозможность использовать одновременно два детектора (*D1* и *D2* на рис. 1), т.е. работать по методу Уоррена, проводя серийные малоугловые измерения [3].

## 2. Трехкристальный спектрометр для малоугловых опытов

Вместе с тем логичным было бы разделить рассеянные и прямо прошедшие через образец нейтроны, пространственно разведя их, применив прием из интерферометрии [7], когда для создания двухкристального интерферометра из единого монокристалла вырезают пластины параллельно отражающим плоскостям (*hkl*) с освобождением массива слитка. В подобной схеме исследуемый образец помещается в промежуток между пластинами, а кристалл *A* устанавливается отдельно на сканирующее устройство и поворачивается с шагом  $\sim 0.1''$  в угловом диапазоне  $\beta = \pm 10'$  (рис. 3) [8].

Нейтроннооптический путь становится таким. Пучок, монохроматизированный *M*, рассеивается *O* и далее расщепляется *S* на рассеянную часть, угловое распределение которой сканируется поворотом *A* и регистрируется детектором *D1*, и прямо прошедшие через образец нейтроны, регистрируемые детектором *D2*. Эта часть содержит как нерассеянные нейтроны, так и испытавшие МУРН в угловой диапазон порядка ширины рефлекса  $\omega \sim 2-3''$ . Кроме того, и те и другие испытывают поглощение в кристалле-расщепителе *S*. Сквозь кристалл *S* проходят нейтроны, рассеявшиеся малоугловым образом на неоднородностях образца *O*.

Возникает задача расчета интенсивностей, регистрируемых *D1* и *D2*, которая решалась численным моделированием инструментальных кривых и малоугловых спектров, получающихся как результат использования двухкристального преобразователя углового спектра в опытах по МУРН. Расчет проводился для схемы (рис. 4), моделирующей *RTR*- и *RRR*-кривые, которые являются для трехкристального спектрометра инструментальными линиями (*R* — отражение, *T* — пропускания). В *RTR*-случае нейтронный пучок дифракционно отражается от *M*, проходит через *S* (при этом угловую зависимость сканирует кристалл *A2*) и регистрируется *D2*. В случае *RRR*-кривых пучок отражается от кристаллов *M*, *S* и *A1* (причем сканирование производится *A1*) и попадает в *D1*.

Коэффициенты отражения  $R(\beta)$  и пропускания  $T(\beta)$  для совершенного кристалла полагались известными (см., например, [1]). Зависимость интенсивности нейтронов, отраженных кристаллом *S*, от угла поворота *A1* с точностью до нормировки можно представить в виде

$$I_R(\beta) = \int_{-\infty}^{\infty} R(\alpha)R(\alpha)R(\alpha + \beta)d\alpha; \quad (1)$$

зависимость интенсивности нейтронов, прошедших через *S*, от угла поворота *A2* — в виде

$$I_T(\beta) = \int_{-\infty}^{\infty} R(\alpha)T(\alpha)R(\alpha + \beta)d\alpha, \quad (2)$$

где *R* — коэффициент отражения нейтронов кристаллами *A1*, 2 и монохроматором *M*; *T* — коэффициент

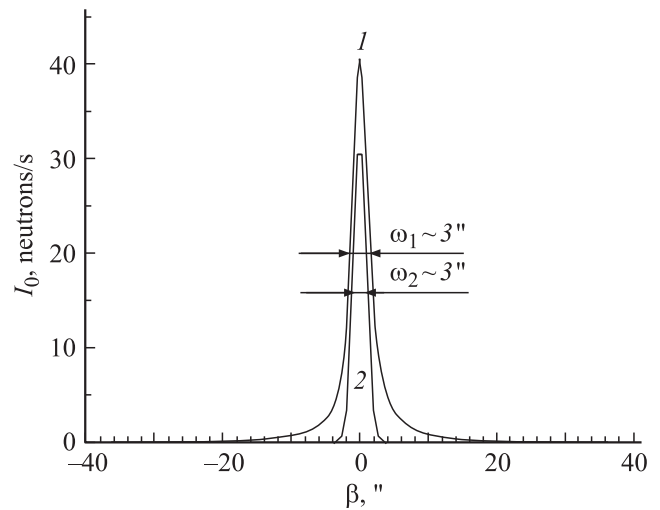


Рис. 2. Инструментальная линия  $I_0(\beta)$  двухкристального спектрометра. 1 — пластины Ge (111), 2 — кристалл „с пропилом“ и трехкратным отражением нейтронов от стенок канала.

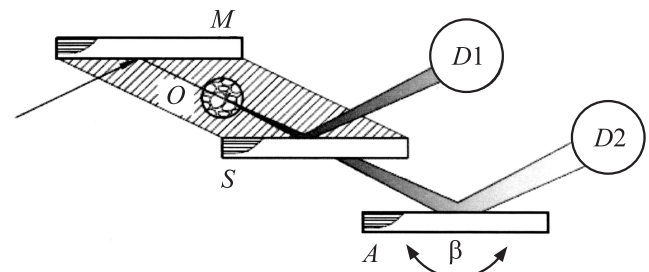


Рис. 3. Трехкристальный спектрометр для малоугловых опытов с использованием кристаллов, вырезанных в геометрии Брэгга. *S* — кристалл-расщепитель. Остальные обозначения те же, что на рис. 1.

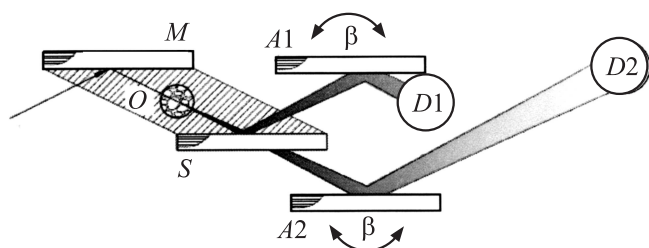
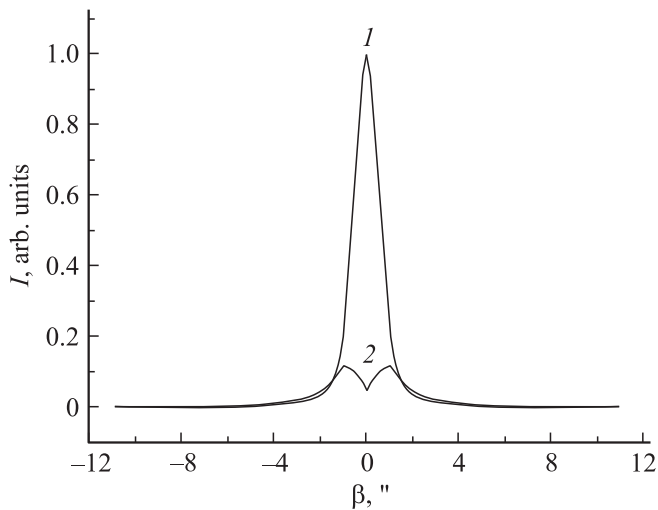


Рис. 4. Конфигурация кристаллов, принятая для расчетов трехкристального спектрометра для опытов по МУРН, с использованием кристаллов, вырезанных в геометрии Брэгга. *A1*, *A2* — анализаторы; остальные обозначения те же, что на рис. 3.



**Рис. 5.** Инструментальные линии двухкристального преобразователя спектра в случае геометрии „Брэгг–Брэгг–Брэгг“. 1 — кривая тройного  $R$ -отражения, получаемая в результате вращения кристалла  $A_2$ ; 2 — кривая, описывающая профиль пучка, прошедшего сквозь кристалл  $S$  (за пределами области полного отражения), и получаемая как результат вращения  $A_1$ .

ослабления пучка нейтронов при прохождении нейтронов сквозь кристалл  $S$ ;  $\beta$  — угол поворота кристалла-анализатора,  $\alpha$  — угол падения нейтронов на кристалл  $M$ , отсчитываемый от поверхности кристалла. Пределы интегрирования расширены до бесконечных, так как подынтегральное выражение вносит вклад в интеграл только в области малых углов, много меньших угловой расходимости падающего пучка. Оптимизация время вычислений — ошибка вычислений осуществлялась итерационно при варьировании густоты разбиения и обрезки области интегрирования.

Результаты вычислений приведены на рис. 5, откуда видно, что отношение интенсивностей  $RRR$ - и  $RTR$ -инструментальных линий составляет примерно 10/1 при одинаковом законе спада хвостов  $\sim \alpha^{-2}$ , что можно интерпретировать как подавление вклада инструментальной линии вблизи ее максимума. При этом, как показано в [9], требование к точности равенства толщины пластин не является определяющим, а отклонения приводят к изменениям интенсивности в максимуме инструментальных линий в пределах 15%.

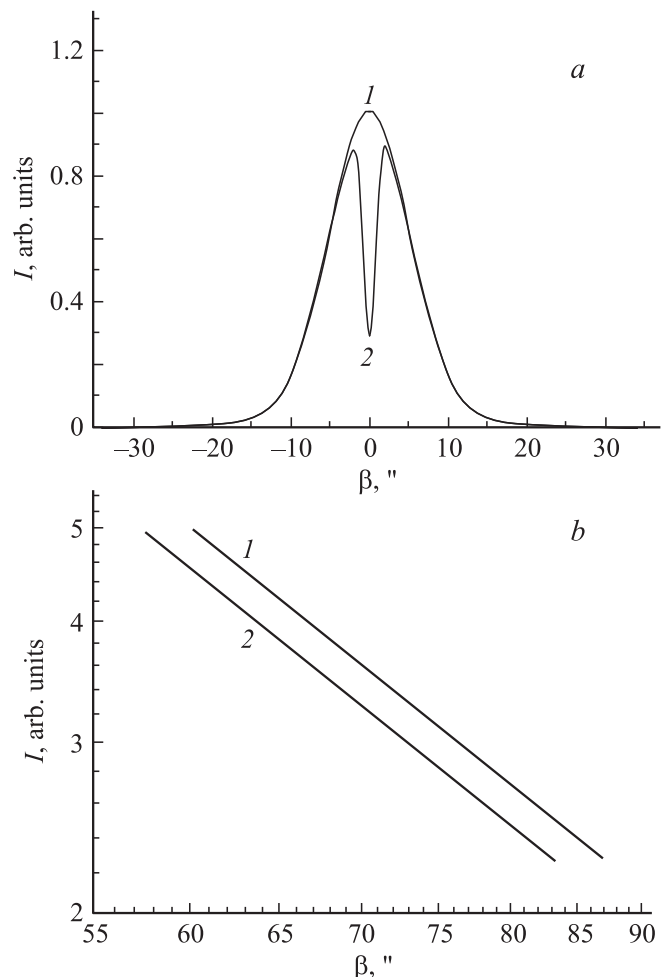
### 3. Процедура проведения малоугловых опытов

Проведение малоугловых опытов с использованием трехкристального спектрометра (рис. 3) представляется следующим. Исследуемые образцы, закрепленные в кассете, помещаются в пространство между кристаллическими пластинами и перемещаются перпендикулярно нейтронному пучку. Детектор  $D_1$  при этом фиксирует прямо прошедшие через образец нейтроны, реализуя

методку Уоррена [2]. По завершении измерений серии образцы, показавшие anomальные результаты, возвращаются на центральную позицию между кристаллами  $M$  и  $S$ , после чего возможно проведение сканирования малоуглового распределения нейтронов  $I(\beta)$  кристаллом  $A$  с регистрацией дефектором  $D_2$ , так, как это делается в двухкристальной методике.

Как известно [10], центральная часть кривой МУРН хорошо аппроксимируется функцией Гаусса, а „хвосты“ спадают по степенному закону. В связи с этим дальнейшее моделирование проводилось для двух случаев: 1) для центральной части, когда роль модельного спектра играет функция Гаусса с полушириной  $\Delta\omega_{SANS} = 8''$  (что соответствует рассеянию на неоднородностях микронных размеров); 2) для случая, когда моделируется функция Лоренца.

Вычисления проводились аналогично  $I_R(\beta)$  (1) и  $I_T(\beta)$  (2), а кривая МУРН с точностью до нормировоч-



**Рис. 6.** Результаты расчета МУРН в случае геометрии „Брэгг–Брэгг“.  $a$  — кривые МУРН в случае, когда роль образца играет функция Гаусса;  $b$  — асимптотика кривых МУРН в двойном логарифмическом масштабе в случае, когда роль образца играет функция Лоренца. 1 — двухкристальный спектрометр, 2 — предлагаемый трехкристальный прибор.

ного множителя была представлена в виде

$$I(\beta) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} d\alpha d\theta R(\alpha)M(\theta)T(\alpha + \theta)R(\alpha + \theta + \beta). \quad (3)$$

Здесь  $M(\theta)$  представляет собой проинтегрированное в вертикальной плоскости дифференциальное сечение МУРН. Внешнее интегрирование, как обычно, производится по горизонтальной угловой расходимости пучка нейтронов. Наличие внутреннего интеграла объясняется необходимостью просуммировать все возможные траектории в пространстве импульсов, приводящие к одинаковому отклонению импульса нейтронов.

С целью получения сравнительных характеристик расчеты проводились для стандартной двухкристалльной методики (рис. 1, *a*) и для предлагаемого трехкристалльного спектрометра (рис. 3). Результаты вычислений представлены на рис. 6, *a, b*, откуда видно, что при использовании функции Гаусса графики накладываются друг на друга (рис. 6, *a*), за исключением области полного отражения кристалла  $S$ . Асимптотическое поведение интенсивности МУРН (рис. 6, *b*) показывает, что степени спада „хвостов“ кривых  $I(\beta)$  совпадают, а небольшая ( $\sim 10\%$ ) потеря интенсивности связана с прохождением рассеянных нейтронов сквозь кристалл  $S$ . Таким образом, применение схемы „Брэгг–Брэгг“ позволяет совместить методику Уоррена с регистрацией всего углового спектра с выходом на асимптоту [11].

#### 4. Использование геометрии „Лауэ–Лауэ“

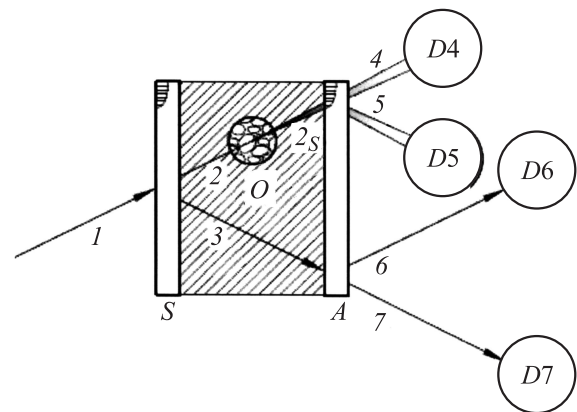
Реализация метода Уоррена возможна также в случае использования геометрии „Лауэ–Лауэ“, преимуществом которой является одновременное измерение интенсивности как нейтронов, прошедших через образец, так и свободного пучка (рис. 7). Кристаллы  $M$  и  $A$ , вырезанные в геометрии Лауэ из единого слитка, играют роль спектрометрической пары.

Пучок нейтронов 3, отраженный от  $S$ , расщепляется кристаллом  $A$  на пучки 6 и 7, интенсивность которых регистрируется детекторами  $D6$  и  $D7$ . Скорость счета детекторов, принимая интенсивность пучков 2 и 3 за единицу, можно представить в виде

$$\begin{aligned} I_6 &= \varepsilon_6 R_A, \\ I_7 &= \varepsilon_7 T_A. \end{aligned} \quad (4)$$

Здесь и далее  $\varepsilon_j$  — эффективность детектора  $D_j$ ;  $T$  и  $R$  — коэффициенты прохождения и отражения нейтронов от кристалла  $M$  ( $A$ ) при их падении под углом Брэгга  $\theta_B$ .

Введем в пространство между кристаллами  $M$  и  $A$  образец  $O$ , содержащий неоднородности, на которых нейтроны испытывают МУРН. Тогда после прохождения через образец пучок  $2s$  будет содержать рассеянную и



**Рис. 7.** Реализация метода Уоррена в схеме „Лауэ–Лауэ“.  $O$  — образец,  $S$  — кристалл-расщепитель,  $A$  — кристалл-анализатор. 1 — падающий пучок, 2, 3 — когерентные пучки после расщепления,  $2s$  — пучок нейтронов, прошедший через образец, 4, 5 — прошедший и отраженный от кристалл-анализатора пучки, содержащие информацию об образце, 6, 7 — отраженный и прошедший через кристалл-анализатор пучки нейтронов,  $D_i$  — детекторы нейтронов ( $i = 4-7$ ).

нерассеянную часть. В согласии с динамической теорией рассеяния [1] нейтроны, отклонившиеся на малый угол, лежащий в пределах полного отражения совершенного кристалла  $\Delta\theta$  (профиль Дарвина), испытают дифракционное отражение на кристалле  $A$ , так же как и не испытавшие рассеяния. И те и другие дадут вклад в интенсивность пучка 5, а отклоненные на угол, больший, чем  $\Delta\theta$ , пройдут прямо и соответственно дадут вклад в интенсивность пучка 4. Поэтому скорость счета детекторов при наличии образца можно представить в виде

$$\begin{aligned} I_4 &= \varepsilon_4 T_A T_0 T_S + \varepsilon_4 T'_A T_0 (1 - T_S), \\ I_5 &= \varepsilon_5 T_0 T_S R_A. \end{aligned} \quad (5)$$

где  $T_0$  — коэффициент ослабления пучка образцом, который учитывает выбывание нейтронов за счет всех каналов, кроме МУРН;  $T'_A$  — фактор ослабления пучка при прохождении сквозь кристалл  $A$  при падении под углом, не равным  $\theta_B$ .

Степень уменьшения интенсивности излучения при прохождении через вещество выражается через коэффициент ослабления  $T_S$  [2], величину которого можно записать в виде

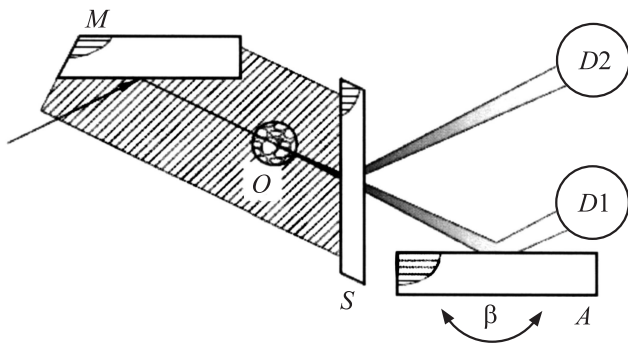
$$T_S = \exp(-\Sigma_S L), \quad (6)$$

где  $\Sigma_S [\text{cm}^{-1}]$  — полное макроскопическое сечение МУРН [12] или, другими словами, линейный коэффициент ослабления,  $L$  — толщина образца.

Комбинируя выражения (4) и (5), можно получить соотношение, связывающее экспериментально измеримые величины и макроскопическое сечение МУРН  $\Sigma_S$ :

$$\frac{1}{T_S} = \exp(\Sigma_S L) = \frac{1}{T'_A} \left( \frac{\varepsilon_5}{\varepsilon_6 \varepsilon_4} \frac{I_6 I_4}{I_5} - \frac{I_7}{\varepsilon_7} + T'_A \right). \quad (7)$$





**Рис. 8.** Трехкристалльный спектрометр для малоугловых опытов с использованием комбинированной сборки „Брэгг–Лауэ“: Кристалл  $M$  вырезан в геометрии Брэгга, а кристалл-расщепитель  $S$  — в геометрии Лауэ.

Таким образом, как и для схемы „Брэгг–Брэгг“, здесь можно получить информацию о неоднородностях методом Уоррена. Выражения (4)–(7) являются аналогами уже известного подхода, что делает применимой развитую ранее теорию [2].

Кроме обсуждавшихся представляется перспективным вариант, в котором  $M$  и  $A$  — кристаллы, вырезанные в геометрии Брэгга, а расщепитель  $S$  — тонкая пластина в геометрии Лауэ (рис. 8). Эта комбинация позволяет сохранить максимальную плотность потока нейтронов на образце (из-за использования отражения по Брэггу от  $M$ ) и свести к минимуму поглощение нейтронов, прошедших сквозь расщепитель  $S$  на детектор  $D1$ , регистрирующий нейтроны, испытавшие МУРН, и регистрировать нерассеянные нейтроны детектором  $D2$  при работе по методу Уоррена.

Все обсуждавшиеся выше спектрометрические пары на единой монокристалльной базе в различных сочетаниях геометрии рассеяния (по Брэггу, по Лауэ и их комбинация) были изготовлены из совершенного кремния и показаны на рис. 9. Существуют различные схемы их использования в опытах по малоугловому рас-

сеянию нейтронов, часть из которых была представлена в настоящей работе.

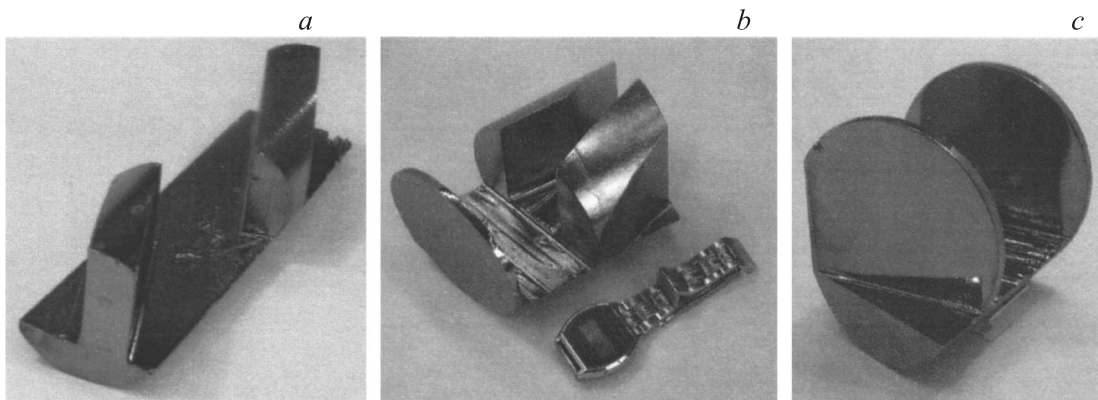
## 5. Заключение

В настоящей работе предлагается, воспользовавшись приемом из интерферометрии, усовершенствовать двухкристалльную методику, позволяющую в плоскости рассеяния работать с угловым разрешением  $\sim 10^{-5}$  rad ( $\sim 2''$ ) и изучать ультрамалоугловое рассеяние в диапазоне векторов рассеяния  $3 \cdot 10^{-3} > q > 3 \cdot 10^{-5} \text{ \AA}^{-1}$ .

Предлагаемая комбинация спектрометрической пары на единой монокристалльной базе и кристалл-анализатора в случае всех кристаллов, вырезанных в геометрии Брэгга, позволяет совместить измерение  $\Sigma_S$  — полного макроскопического сечения МУРН серии образцов, снимая техническую сложность удержания параллельной позиции, и получение полного углового распределения рассеянных нейтронов вплоть до асимптотики, что подтверждается данными численного моделирования. При этом возможно проведение серийных измерений при естественном ограничении размеров образцов геометрией вырезанных пар. Кроме того, описанную спектрометрическую пару можно использовать в качестве разрезного монохроматора и (или) анализатора в классической схеме двухкристалльного спектрометра.

Для пары „Лауэ–Лауэ“ показана возможность реализации методики Уоррена в геометрии „Лауэ–Лауэ“, преимуществом которой является одновременное измерение интенсивности как нейтронов, прошедших через образец, так и свободного пучка. Пара „Брэгг–Лауэ“ представляется перспективной для дальнейшего изучения в силу того, в ней совмещается большая отражающая способность первого кристалла с малой толщиной (т. е. малым поглощением нейтронов) второго, что позволяет увеличить измеряемую интенсивность.

Прибор позволяет применять различные методики измерения и получения информации без особых технических сложностей, что в сочетании с достаточно



**Рис. 9.** Кристаллические пары в схемах „Брэгг–Брэгг“ (a), „Лауэ–Брэгг“ (b) и „Лауэ–Лауэ“ (c), вырезанные из единых монокристаллических слитков бездислокационного кремния. Отражающие поверхности пластин совпадают с кристаллографической системой плоскостей (111).

интенсивным пучком нейтронов позволит перейти к экспрессным серийным измерениям МУРН.

В заключение следует отметить, что разработанная методика при ее успешной опытной реализации является хорошим примером применения фундаментальных научных теорий — динамической дифракции и малоуглового рассеяния нейтронов — к задачам практического материаловедения.

## Список литературы

- [1] Ю.Г. Абов, Н.О. Елютин, А.Н. Тюлюсов. Ядер. физика **65**, 1993 (2002).
- [2] Н.О. Елютин, Ю.И. Смирнов, Д.В. Львов, А.Н. Тюлюсов. ПТЭ **4**, 5 (2007).
- [3] Ю.Г. Абов, Н.О. Елютин, Д.В. Львов, А.Н. Тюлюсов. Препринт ИТЭФ 16-02. М. (2002). 29 с.
- [4] Ю.И. Смирнов, Н.О. Елютин. Неорганические материалы **40**, 633 (2004).
- [5] M.M. Agamalian, G.D. Wignall, R. Triolo. Neutron News **9**, 24 (1998).
- [6] D. Bellmann, H. Clemens, J. Banhart. Appl. Phys. A **74** (Suppl.), S1136 (2002).
- [7] G. Leilinder, C.G. Shull, J. Arthur, M. Horn. Phys. Rev. A **28**, 487 (1983).
- [8] А.Н. Тюлюсов, Н.О. Елютин, С.Г. Беличенко. Научная сессия МИФИ-2005. Сб. трудов **5**, 96 (2005).
- [9] Н.О. Елютин, Е.В. Новикова, А.Н. Тюлюсов. Научная сессия МИФИ-2007. Сб. трудов **5**, 87 (2007).
- [10] Д.И. Свергун, Л.А. Фейгин. Рентгеновское и нейтронное малоугловое рассеяние. Наука, М. (1986). 280 с.
- [11] Ю.Г. Абов, Д.С. Денисов, Ф.С. Джепаров, Н.О. Елютин, Д.В. Львов, С.К. Матвеев, Ю.И. Смирнов, А.О. Эйдлин. ЖЭТФ **114**, 2194 (1998).
- [12] В.Е. Warren. J. Appl. Phys. **20**, 96 (1949).