

Методика нейтронного эксперимента, приборы и источники излучения

Об учете пространственных эффектов при описании разрешения порошковых нейтронных дифрактометров

© В.И. Бобровский*, В.И. Воронин*, И.Ф. Бергер*,**

* Институт физики металлов УрО РАН,
Екатеринбург, Россия

** Институт химии твердого тела УрО РАН,
Екатеринбург, Россия

E-mail: bobrovskii@imp.uran.ru

Развитые ранее методы аналитического описания разрешения порошковых нейтронных дифрактометров с учетом пространственных эффектов применены для анализа конкретного прибора. Результаты сравниваются с данными, полученными путем симуляционных расчетов с использованием метода Монте-Карло, а также с результатами экспериментов. Показана близость результатов обеих расчетных методик, определены эффективные параметры установки.

Работа выполнена при поддержке гранта МНТЦ 3074.2.

Теоретическое описание зависимостей ширин и интегральных интенсивностей пиков от аппаратурных параметров представляет интерес как для оптимизации нейтронных приборов, так и для интерпретации данных экспериментов, связанных, например, с изменением ширин пиков в результате различных воздействий. Известный упрощенный подход к решению этой задачи пренебрегает пространственными эффектами, т.е. не учитывает неоднородность по поперечному сечению нейтронного потока и ее изменение по тракту дифрактометра. Но даже в системах с плоскими монохроматорами, где причинами таких эффектов являются естественная сепарация нейтронного потока по мере его продвижения по тракту дифрактометра, а также конечные размеры реальных кристаллов-монокроматоров, они могут играть заметную роль. Исследование разрешения приборов возможно различными способами, например, с помощью моделирования процессов рассеяния нейтронов с использованием метода Монте-Карло. Однако большой интерес представляет получение именно аналитических выражений, позволяющих, с одной стороны, дать интерпретацию наблюдаемых явлений, а с другой — вести осознанный поиск оптимальных условий проведения эксперимента. Особенно эффективным является сочетание аналитического подхода и численного моделирования. На основе развитого нами математически корректного подхода [1–4] в гауссовом приближении получены выражения для параметров нейтронных пиков, учитывающие пространственные эффекты. Показано, что описание весьма широкого набора конструкций дифрактометров может быть сделано с помощью формул единой структуры, которые имеют ясную геометрическую интерпре-

тацию. Целью настоящей работы является применение развитых нами методов для описания конкретного прибора — дифрактометра D7A, установленного на исследовательском реакторе ИВВ-2М. Его конфигурация, а именно большие пролетные расстояния и малые поперечные размеры кристаллов-монокроматоров, позволяла ожидать значительной величины пространственных эффектов.

На рис. 1 изображена принципиальная схема дифрактометра. Особенностью конструкции является использование в нем в качестве монохроматоров монокристаллов пирографита и германия с существенно различающимися межплоскостными расстояниями, равными 3.38 и 1.088 Å соответственно. При используемой длине волны $\lambda = 1.532 \text{ \AA}$ это дает существенно разные значения брэгговских углов, равные $\theta_{M1} = 13.1^\circ$ и $\theta_{M2} = 44.8^\circ$. В свою очередь такая разница обеспечивает получение на образце высокомонокроматичного нейтронного потока.

Центральный волновой вектор распределения падающего на образец потока в центре образца обозначим как \mathbf{k}_1 . При этом $k_1 = 2\pi/\lambda_1$, $\mathbf{k}_1 \parallel \mathbf{r}_1 = \mathbf{O}_2\mathbf{O}'$.

Положение точек внутри образца относительно точки O' задается вектором \mathbf{x}' . Отклонения от центрального значения волновых векторов нейтронов, падающих на образец, обозначаем как \mathbf{q}' , а полные значения волновых векторов этих нейтронов тогда равны $\mathbf{k}' = \mathbf{k}_1 + \mathbf{q}'$.

Как показано в [2,3], общий вид выражения, описывающего плотность распределения нейтронного потока в пространстве волновых векторов и в точке координатного пространства \mathbf{x}' , созданного монохроматорами разного типа на образце, в гауссовом приближении

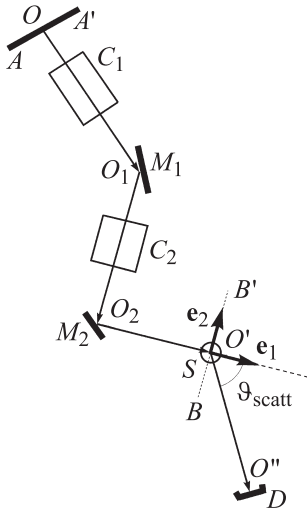


Рис. 1. Принципиальная схема дифрактометра D7A. Точки O , O_1 , O_2 , O' , O'' — центры светящегося пятна активной зоны, монохроматора 1, монохроматора 2, образца и окна детектора соответственно. $OO_1 = 295$ см, $O_1O_2 = 250$ см, $O_2O' = 60$ см, $O'O'' = 86$ см. Ограничители C_1 и C_2 имеют длину 40 см и поперечные сечения размерами 4×6 и 4×1 см соответственно. Монохроматор 1: пирографит, плоскость (002), 50×50 мм, ширина кристалла $2\bar{W}_{M1} = 50$ мм, высота $2\bar{H}_{M1} = 50$ мм, мозаичность (полная ширина кривой качания на половине высоты) $\approx 50'$. Монохроматор 2: германий, плоскость (531), $2\bar{W}_{M2} = 10$ мм, $2\bar{H}_{M2} = 72$ мм, мозаичность в диапазоне 10–30'.

может быть представлен в виде

$$j_s(\mathbf{k}'; \mathbf{x}') = j_s(\mathbf{k}_1 + \mathbf{q}'; \mathbf{x}') = j_0(k_1)B_M(\mathbf{k}'; \mathbf{x}'), \quad (1)$$

где $j_0(k_1)$ обозначает соответствующую плотность на входе внутриканального коллиматора (относительно слабо зависящую от модуля и направления волнового вектора \mathbf{k} и потому взятую при его центральном значении), а фильтрационная функция блока монохроматора $B_M(\mathbf{k}'; \mathbf{x}')$ в изображенной на рис. 1 системе координат равна

$$B_M(\mathbf{k}'; \mathbf{x}') = B_{M0}(\mathbf{k}_1) \exp\left(-\frac{1}{2}[a_{33}q_3'^2 + 2b_3x_3'q_3' + d_3x_3'^2]\right) \times \exp\left(-\frac{1}{2}\left[\sum_{i,k=1}^2 a_{ik}q_i'q_k' + 2b_1x_2'q_1' + 2b_2x_2'q_2' + d_2x_2'^2\right]\right). \quad (2)$$

Или в эквивалентном виде

$$B_M(\mathbf{k}'; \mathbf{r}') = B_{M0}(\mathbf{k}_1) \exp\left(-\frac{1}{2}[a_{33}(q_3' + v_3x_3')^2 + g_3x_3'^2]\right) \times \exp\left(-\frac{1}{2}\left[\sum_{i,k=1}^2 a_{ik}(q_i' + v_ix_2')(q_k' + v_kx_2') + g_2x_2'^2\right]\right), \quad (3)$$

где

$$v_1 = \frac{a_{22}b_1 - a_{12}b_2}{a_{11}a_{22} - a_{12}^2}, \quad v_2 = \frac{a_{11}b_2 - a_{12}b_1}{a_{11}a_{22} - a_{12}^2}, \quad v_3 = \frac{b_3}{a_{33}}, \quad (4)$$

$$g_2 = d_2 - \frac{a_{11}b_2^2 + a_{22}b_1^2 - 2a_{12}b_1b_2}{a_{11}a_{22} - a_{12}^2}, \quad g_3 = d_3 - \frac{b_3^2}{a_{33}}. \quad (5)$$

Эта формула имеет весьма общий характер, являясь просто гауссовым приближением для описания характеристик падающего на образец нейтронного потока. Фигурирующие в (2), (3) коэффициенты зависят от конкретных деталей конструкции блока монохроматора, а также от расстояния r_1 . В точке поперечного сечения потока BB' с координатами $(0, x_2', x_3')$ центральный вектор распределения волновых векторов нейтронов имеет вид

$$\mathbf{k}'_c = \mathbf{k}_1 - v_1x_2'\mathbf{e}_1 - v_2x_2'\mathbf{e}_2 - v_3x_3'\mathbf{e}_3. \quad (6)$$

При $b_1 = b_2 = 0$ и $d_2 = 0$ развитый в [1–4] алгоритм вычислений приводит для образца в форме кругового цилиндра радиуса $\bar{\rho}$ к формуле для дисперсии формы линии [4]

$$W_\vartheta^2 = \frac{W_D^2}{r_F^2} + \frac{1}{k_1^2(a_{11}a_{22} - a_{12}^2)} \times \left\{ 4a_{22} \operatorname{tg}^2\left(\frac{\vartheta}{2}\right) + 4a_{12} \operatorname{tg}\left(\frac{\vartheta}{2}\right) + a_{11} \right\} + \frac{\rho^2}{r_F^2}. \quad (7)$$

Отметим, что полная ширина пика на половине высоты (FWHM) связана с W_ϑ соотношением $\text{FWHM} = 2\sqrt{2 \ln 2} W_\vartheta$. Фигурирующие здесь „гауссовы“ параметры — полуширина окна детектора W_D и радиус образца ρ — возникают вследствие моделирования функций формы образца и детектора гауссианами с такими дисперсиями. Эти характеристики прибора являются эффективными. Их значения зависят от нормализации нейтронного потока при прохождении через прибор и составляют ~ 0.5 – 0.8 от соответствующих истинных геометрических значений \bar{W}_D и $\bar{\rho}$ [1–4].

Как указано в [4], эта формула легко обобщается на случай $b_1 = b_2 = 0$; $d_2 \neq 0$, что соответствует, например, установке перед образцом диафрагмы, а также на случай, когда образец имеет эллиптическое горизонтальное сечение с полуосями ρ_1 и ρ_2 в направлениях, параллельном и перпендикулярном \mathbf{k}_1 . Тогда в ней происходит замена

$$\rho^2 \rightarrow \frac{\rho_1^2 \sin^2 \vartheta}{r_F^2} + \left(\frac{1}{\rho_2^2} + d_2\right)^{-1} \frac{\cos^2 \vartheta}{r_F^2}. \quad (8)$$

Предложенный в [1–3] алгоритм характеризуется большой степенью общности и пригоден для дифрактометров различных конструкций с произвольной траекторией движения детектора, включением в систему дополнительных устройств (коллиматоров, ограничителей) и

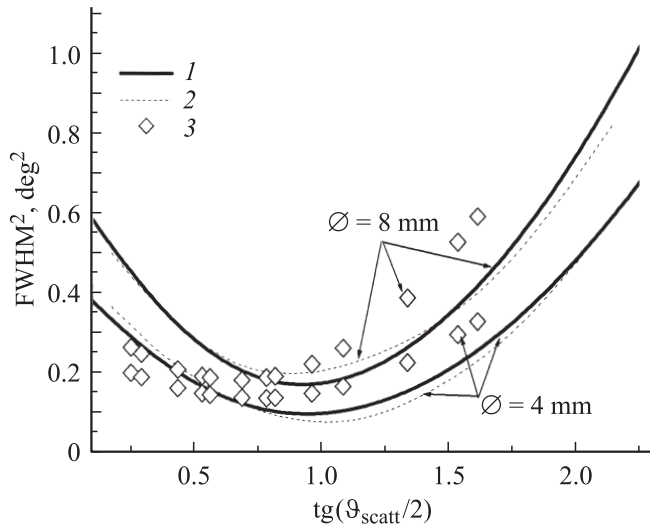


Рис. 2. Зависимость квадрата полной ширины на половине высоты брэгговского пика от тангенса половинного угла рассеяния. Параметры пиков рассчитаны с использованием нашей гауссовой модели (1), учитывающей пространственные эффекты, и с использованием пакета McStas (2). 3 — значение ширины пиков, экспериментально определенных для дифрактометра D7A. Диаметр цилиндрических образцов 4 и 8 мм.

различных форм образца. В результате весьма громоздких преобразований (исследование будет опубликовано отдельно) для приборов традиционных конструкций с детектором, движущимся по окружности, в центре которой размещается образец, выражение для ширины линии в случае потока, описываемого формулой (3), может быть приведено к компактному виду

$$W_{\vartheta}^2 = \frac{W_D^2}{r_F^2} + \frac{1}{k_1^2(a_{11}a_{22} - a_{12}^2)} \left\{ 4a_{22} \operatorname{tg}^2 \left(\frac{\vartheta}{2} \right) + 4a_{12} \operatorname{tg} \left(\frac{\vartheta}{2} \right) + a_{11} \right\} + \frac{\rho_1^2 \sin^2 \vartheta}{r_F^2} + \left(\frac{1}{\rho_2^2} + g_2 \right)^{-1} \left[\frac{\cos \vartheta}{r_F} + \frac{2 \operatorname{tg}(\vartheta/2) v_1 - v_2}{k_1} \right]^2. \quad (9)$$

Легко видеть, что в отличие от (7), где зависимость квадрата ширины линии от тангенса половинного угла рассеяния имеет известную структуру, представляя собой простую параболу, учет пространственных неоднородностей потока приводит к искажению этой зависимости. В работе [4] эти расхождения были продемонстрированы на конкретных примерах. При этом подтвердилось, что простым переопределением эффективных параметров прибора действительно невозможно описать с помощью формулы (7) зависимость ширины брэгговских пиков от угла рассеяния в достаточно широком диапазоне углов.

Развитые в [1–3] методы расчета коэффициентов в выражениях (2), (3) были нами обобщены на случай двойных монохроматоров (ввиду большой громоздкости

эти результаты будут опубликованы отдельно). Помимо них при описании реального прибора D7A для сравнения и взаимной верификации мы также использовали основанный на методе Монте-Карло известный пакет McStas [5]. Основу анализа составляли данные о значениях ширины брэгговских пиков, измеренных на порошках CeO_2 , помещенных в цилиндрические контейнеры диаметром 4 и 8 мм.

На рис. 2 приведены эти экспериментальные результаты, а также ширины пиков для образцов диаметром 4 и 8 мм, рассчитанные с помощью пакета McStas при предполагавшемся изначально значении мозаичности второго монохроматора, равном $25'$. Видно, что наблюдается довольно заметное расхождение не только в величине, но и в характере поведения (положение минимумов) этих зависимостей и экспериментальных данных. Аналитические расчеты по нашей методике, как и в [4], показали значения, близкие к симуляционным при тех же значениях параметров. Небольшая вариация этих параметров, предпринятая для выяснения их эффективных значений в рамках гауссовой модели, обеспечила неплохое совпадение результатов двух расчетных методик (рис. 2). В частности, эффективная мозаичность монохроматора 1 оказалась равной $45'$, а монохроматора 2 — $29'$. Эффективные гауссовы параметры монохроматоров определились как $W_{M1} = 1.6$ см, $W_{M2} = 0.4$ см.

Как ясно из (7), в пренебрежении пространственными эффектами на рис. 2 должны получаться простые параболы, причем положение минимумов и кривизна парабол

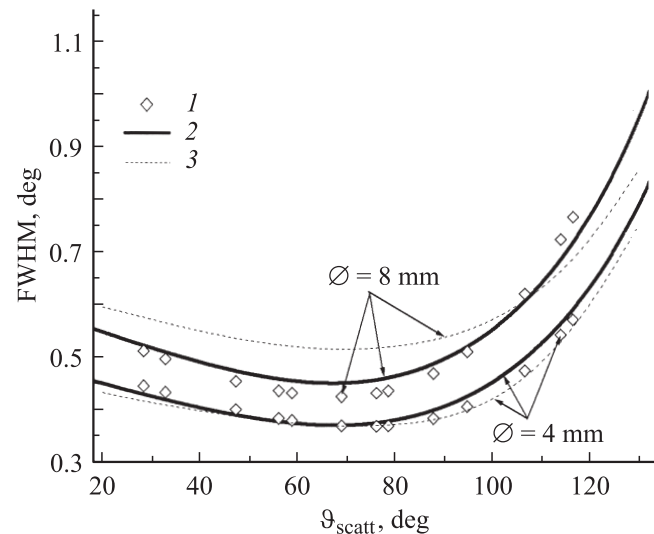


Рис. 3. Зависимость полной ширины на половине высоты брэгговского пика от угла рассеяния при диаметрах образцов 4 и 8 мм. 1 — данные, экспериментально определенные для дифрактометра D7A, 2 — результаты расчетов с использованием нашей аналитической модели при вариации параметров, обеспечивающей их подгонку к экспериментальным данным (мозаичности монохроматоров $45'$ ($M1$), $10'$ ($M2$)), 3 — расчет с использованием пакета McStas при тех же значениях параметров.

должны быть одинаковыми при всех диаметрах образца. Однако видно, что это не так для всех трех приведенных здесь зависимостей. Причем и экспериментальные результаты не укладываются на две параллельные параболы.

Воспользовавшись высокой вариативностью нашей модели, мы определили также набор параметров, обеспечивающий достаточно хорошее совпадение ее результатов уже с результатами эксперимента. Оказалось, что наиболее принципиальное изменение при этом касается мозаичности второго монохроматора. Она определена в $10'$. Удалось уточнить и эффективный размер окна детектора — $W_D = 2.3 \text{ mm}$. Эти результаты приведены на рис. 3. С полученным набором параметров вновь выполнен расчет нейтронных групп с помощью пакета McStas. При этом никакой дополнительной подгонки специально не проводилось. Эти кривые также изображены на рис. 3, демонстрируя качественное и неплохое количественное совпадение результатов двух расчетных методик.

Полученные результаты подтверждают применимость для описания разрешения прибора развитых нами аналитических методов учета пространственных эффектов. При разумных значениях эффективных параметров прибора показано достаточно хорошее совпадение результатов нашей гауссовой модели с данными, полученными путем численного моделирования, а также экспериментальных измерений. Установлены значения эффективных параметров прибора, могущие служить отправной точкой направлений дальнейшей модернизации.

Список литературы

- [1] В.И. Бобровский, И.Л. Ждахин. Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования 7, 72 (2007).
- [2] В.И. Бобровский, И.Л. Ждахин. Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования 8, 42 (2007).
- [3] В.И. Бобровский, И.Л. Ждахин. Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования 12, 3 (2007).
- [4] В.И. Бобровский. Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования 1, 7 (2009).
- [5] K. Lefmann, K. Nielsen. Neutron News 10, 20 (1999).