

01;12
©1993 г.

ФУНКЦИЯ РАЗРЕШЕНИЯ НЕЙТРОННОГО ДИФРАКТОМЕТРА С ДЕТЕКТОРОМ, ДВИЖУЩИМСЯ В НЕДИАМЕТРАЛЬНОЙ ПЛОСКОСТИ

В.И. Бобровский, И.Л. Ждагин, В.И. Вологин, В.Д. Партоменко

Исследуется функция разрешения порошкового нейтронного дифрактометра с детектором, перемещающимся в плоскости, параллельной диаметральной плоскости конуса Дебая–Шерера, в которой движутся детекторы приборов традиционной конструкции. Описывается форма линии упругого пика, получаемая на этом дифрактометре. Приводятся формулы, позволяющие конвертировать экспериментально наблюдаемые на этом приборе спектры в спектры, получаемые на традиционных приборах.

Для повышения эффективности исследований на современных нейтронных дифрактометрах используются различные варианты многодетекторных систем. В данной работе изучаются особенности разрешения дифрактометра, в котором детекторы нейтронов установлены на кольце, плоскость которого сдвинута на некоторое расстояние относительно плоскости распространения первичного нейтронного пучка (диаметральной плоскости прибора и конуса Дебая–Шерера) (рис. 1). Такая конструкция прибора позволяет избежать перекрытия первичного пучка детекторами в процессе снятия дифрактограммы.

В работе [1] развит универсальный подход к проблеме описания разрешения порошковых нейтронных дифрактометров. Следуя ему, представим интенсивность сигнала любого порошкового нейтронного дифрактометра в виде

$$I = KV \int dQ \Xi(Q) R(Q), \quad (1)$$

где V — объем образца; K — константа, характеризующая прибор и пропорциональная интенсивности первичного пучка и эффективности детектора (подробно описана в [1]); $\mathbf{Q} = \mathbf{P}/\hbar$ — так называемый вектор рассеяния (\mathbf{P} — импульс, переданный нейтроном образцу); $R(Q)$ — функция разрешения дифрактометра; $\Xi(Q)$ пропорциональна сечению рассеяния на порошковом образце и равна

$$\Xi(Q) = \frac{4\pi^2}{V_S^2 k_i} \sum_b' N_S F^2(\mathbf{b}) \frac{1}{2} \delta(Q - b), \quad (2)$$

V_S — объем примитивной ячейки образца, $F_S(\mathbf{b})$ — структурный фактор.

Суммирование в (2) ведется по неэквивалентным векторам обратной решетки \mathbf{b} , при этом N_S — фактор повторяемости. Согласно [1], универсальное выражение для функции разрешения порошкового нейтронного дифрактометра имеет вид

$$R(Q) = \int d^3\chi d^3k_i d^3k_f \delta(k_i^2 - k_f^2) \delta(Q - \chi) \delta(\chi - [\mathbf{k}_i - \mathbf{k}_f]) B_m(\mathbf{k}_i) \Phi_D(\mathbf{n}_f). \quad (3)$$

Блок монохроматора, характеризуемый функцией пропускания $B_m(\mathbf{k}_i)$, подготавливает падающий на образец пучок. Нейтроны этого первичного пучка имеют векторы \mathbf{k}_i , близкие к вектору настройки монохроматора \mathbf{k}_I . Блок детектора настраивается на фиксацию нейтронов с волновым вектором $\mathbf{k}_{F'}$, но из-за конечности коллимаций фиксируются нейтроны с векторами \mathbf{k}_f из некоторой окрестности \mathbf{k}_F . Для дифрактометра с идеальным разрешением процесс рассеяния на образце может быть описан с помощью вектора рассеяния $\mathbf{Q}_0 = \mathbf{k}_I - \mathbf{k}_F$. Конечность разрешения прибора приводит к тому, что фиксируются результаты рассеяния с векторами рассеяния $\mathbf{Q} \simeq \mathbf{Q}_0$. Для порошкового же образца функция разрешения зависит фактически от модуля Q .

Функция пропускания монохроматора $B_m(\mathbf{k}_i)$ в гауссовом приближении имеет вид [1,2]

$$B_m(\mathbf{k}_i) = B_m^0(\mathbf{k}_I) \exp\left(-\frac{1}{2} \sum a_{\alpha\beta}^m x_{i\alpha} x_{i\beta}\right), \quad (4)$$

алгоритм вычисления коэффициентов $a_{\alpha\beta}^m$, характеризующих степень монохроматизации пучка, изложен в [1,2].

Функция пропускания блока детектора $\Phi_D(\mathbf{n}_f)$ зависит от направления вектора $\mathbf{n}_f = \mathbf{k}_f/k_f$, падающего на вход блока детектора нейтрона. Для малых отклонений волновых векторов падающего на образец и рассеянного нейтронов введено обозначение $\mathbf{k}_i = \mathbf{k}_I + \hat{x}_i$, $\mathbf{k}_f = \mathbf{k}_F + \hat{x}_f$.

Ограничиваясь первым порядком по малым величинам, вместо (3) получим

$$R(Q) = \int d^3k_i B_m(\mathbf{k}_i) V(\mathbf{k}_i), \quad (5)$$

$$V(\mathbf{k}_i) = \frac{1}{2} \int dx_f \delta(\mathbf{k}_I \mathbf{x}_i - \mathbf{k}_F \mathbf{x}_f) \delta\left(\left(X - \frac{\mathbf{Q}_0 \mathbf{x}_i}{Q_0}\right) + \frac{\mathbf{Q}_0 \mathbf{x}_f}{Q_0}\right) \Phi_D(\mathbf{n}_f). \quad (6)$$

Геометрическая интерпретация данного выражения проста: участок конуса Дебая-Шерера, пересекаемый детектором, аппроксимируется плоскостью (утолщенные участки на кольце) (рис. 1). Такая аппроксимация, как видно из рис. 1, в точках $\vartheta = 0, \pi$ приводит к расходимости в выражениях для ширины линии. На практике это означает, что описание рассеяния в малые углы требует более высокой точности разложений, чем использовавшееся в (6). Этой проблеме, весьма громоздкой математически, но важной для задач, связанных с рассеянием на малые углы, будет посвящена отдельная публикация.

Для вычисления интегралов в (5), (6) удобно ввести системы координат ε_α^I и $\varepsilon_{\alpha'}^F$, связанные с осевыми волновыми векторами \mathbf{k}_I и $\mathbf{k}_{F'}$, $\varepsilon_1^I \parallel \mathbf{k}_I$,

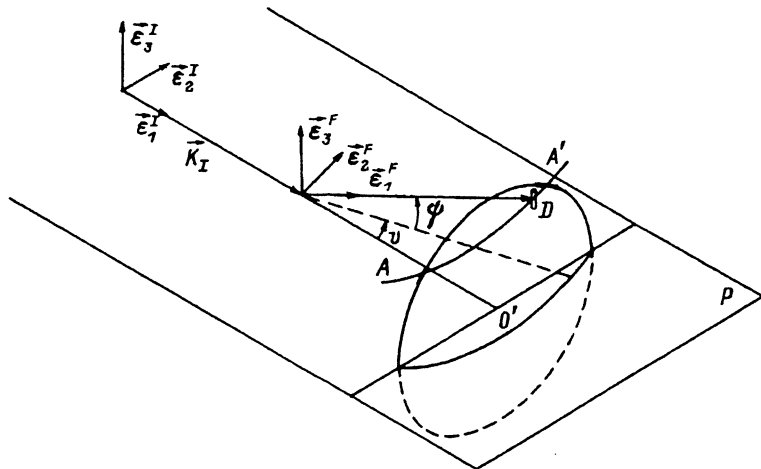


Рис. 1. Векторная диаграмма процесса рассеяния на образце.

k_I — волновой вектор нейтрона, на пропускание которого настроен блок монохроматора; k_F — волновой вектор нейтрона, на регистрацию которого настроен блок детектора. Кольцо с центром O' отвечает условию Дебая-Шерера $|k_I - k_F| = b$ рассеяния на порошковом образце. P — диаметральная плоскость. Сканирование k_F -пространства детектором осуществляется по дуге $A - A'$, так что $\Psi = \text{const}$, ϑ варьируется.

$\epsilon_1^F \parallel k_{F'}$, векторы $\epsilon_2^I, \epsilon_2^F$ лежат в диаметральной плоскости, как показано на рис. 1. Связь между ними дается выражением

$$\begin{pmatrix} \epsilon_1^F \\ \epsilon_2^F \\ \epsilon_3^F \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos \Psi \cos \vartheta & \cos \Psi \sin \vartheta & \sin \Psi \\ -\sin \vartheta & \cos \vartheta & 0 \\ -\sin \Psi \cos \vartheta & -\sin \Psi \sin \vartheta & \cos \Psi \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \epsilon_1^I \\ \epsilon_2^I \\ \epsilon_3^I \end{pmatrix}. \quad (7)$$

В F -системе координат функция пропускания детектора $\Phi_D(\mathbf{n}_f)$ имеет вид

$$\Phi_D(\mathbf{n}_f) = \exp \left(- \left[\frac{x_{f2}^2}{\alpha_D^2 k_F^2} + \frac{x_{f3}^2}{\beta_D^2 k_F^2} \right] \right), \quad (8)$$

где α_D, β_D — горизонтальная и вертикальная преддетекторные коллимации соответственно.

Подставив (8) в (5), (6) и проведя преобразования, получаем, что функция разрешения оказывается “острой” функцией от $X = Q - Q_0$

$$R(x) = \frac{2\pi^2 B_m^0 Q_0}{k_I^2 \sin \vartheta} \left(\frac{1}{\beta_D^2 k_I^2} + \frac{\sin^2 \Psi \operatorname{ctg}^2 \vartheta}{\alpha_D^2 k_I^2} \right)^{-1/2} \frac{1}{\sqrt{G}} \exp \left(-\frac{1}{2} \frac{x^2}{\Gamma_Q^2} \right), \quad (9)$$

где ширина функции разрешения в Q -координатах

$$\Gamma_Q^2 = \frac{k_I^2}{Q_0^2} \left\{ k_I^2 \sin^2 \vartheta \alpha_\epsilon^2 + \frac{4a_{22}(1 - \cos \Psi \cos \vartheta)}{a_{11}a_{22} - a_{12}^2} + \frac{4a_{12} \cos \Psi \sin \vartheta (1 - \cos \Psi \cos \vartheta)}{a_{11}a_{22} - a_{12}^2} + \frac{\sin^2 \Psi}{a_{33}} + \frac{a_{11} \cos^2 \Psi \sin^2 \vartheta}{a_{11}a_{22} - a_{12}^2} \right\}, \quad (10)$$

$$G = \det(a) + (a_{11}a_{22} - a_{12})\xi_3^2 + a_{22}a_{33}\xi_1^2 + a_{11}a_{33}\xi_2^2 - 2a_{12}a_{33}\xi_1\xi_2; \quad (11)$$

$$\xi_1 = -2(1 - \cos \Psi \cos \vartheta)/S; \quad \xi_2 = \cos \Psi \sin \vartheta/S; \quad \xi_3 = \sin \Psi/S, \quad (12)$$

$$S = k_I \alpha_e \sin \vartheta; \quad \det(a) = a_{33}(a_{11}a_{22} - a_{12}^2). \quad (13)$$

Обратим внимание, что в формуле для ширины функции разрешения (10) фигурирует эффективная "горизонтальная" коллимация детектора

$$\alpha_e^2 = \alpha_D^2 + \beta_D^2 \sin^2 \Psi \operatorname{ctg}^2 \vartheta_B, \quad (14)$$

которая показывает, что в рассматриваемом приборе вертикальное разрешение подмешивается к горизонтальному.

Форма линии брэгговского пика пропорциональна, как видно из (2),

$$I(Q_0) \simeq R(Q_0 - b). \quad (15)$$

Как легко получить из (7),

$$Q_0 = k_I \sqrt{2(1 - \cos \vartheta \cos \Psi)}. \quad (16)$$

Вблизи брэгговского пика, где $\vartheta \cong \vartheta_B$, получим

$$Q_0 - b = \frac{k_I^2}{Q_B} \sin \vartheta_B \cos \Psi (\vartheta - \vartheta_B). \quad (17)$$

Тогда, подставляя в (1) выражения (17), (2), (9), получаем формулу для описания формы линии в угловых координатах (ϑ — угол рассеяния, отсчитываемый по лимбу детектора $\vartheta = 2\theta$)

$$I(\vartheta) = I_{\Sigma}^0 \frac{1}{\sqrt{2\pi}\Gamma_{\vartheta}} \exp \left\{ -\frac{1}{2} \frac{(\vartheta - \vartheta_B)^2}{\Gamma_{\vartheta}^2} \right\}, \quad (18)$$

где интегральная интенсивность пика

$$I_{\Sigma}^0 = \frac{(2\pi)^{3/2} KV \alpha_D \beta_D B_M^0}{4V_S^2} \frac{2\lambda_I^3}{\sqrt{\det(a)} \cos \Psi \sin \vartheta_B \sqrt{2(1 - \cos \Psi \cos \vartheta_B)}} N_S F^2, \quad (19)$$

а его ширина

$$\Gamma_{\vartheta} = \frac{Q_B}{k_I^2 \cos \Psi \sin \vartheta_B} \Gamma_Q. \quad (20)$$

Заметим, что закон Брэгга $k_I - k_F = \mathbf{b}$ для прибора рассматриваемой конструкции в угловых переменных ϑ принимает вид

$$b = k_I \sqrt{2(1 - \cos \Psi \cos \vartheta_B)}, \quad (21)$$

$$\lambda_I = d \sqrt{2(1 - \cos \Psi \cos \vartheta_B)}, \quad (22)$$

где d — межплоскостное расстояние семейства плоскостей, отвечающих данному рефлексу ($d = 2\pi/b$, $\lambda_I = 2\pi/k_I$).

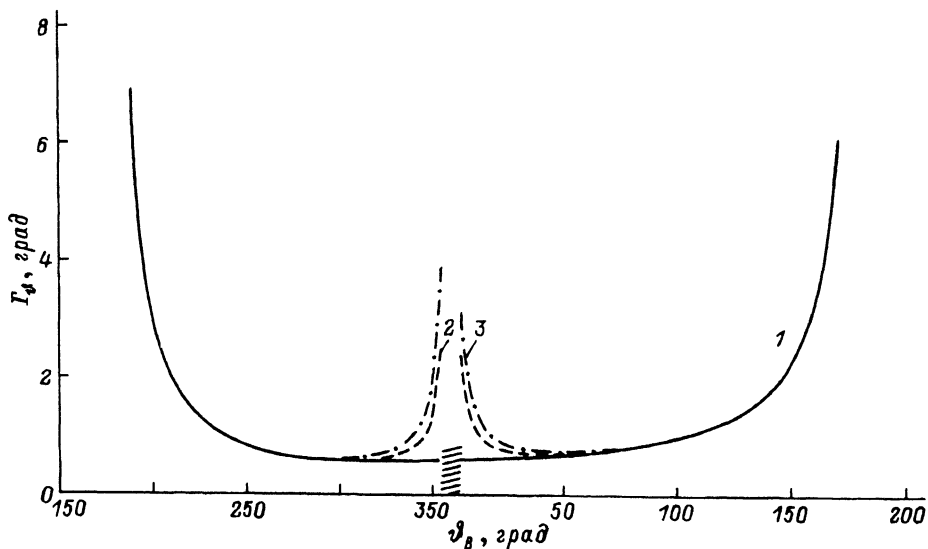


Рис. 2. Аппаратурная ширина брэгговских пиков в угловых координатах $\vartheta_B = 2\theta_B$ в зависимости от детекторных коллимаций и угла Ψ .

В заштрихованной области приближение (6) несправедливо. β_D , град: 2 — 1, 3 — 2, Ψ , град: 1 — 0; 2, 3 — 6.

Наконец, обратим внимание, что выражение для интегральной интенсивности содержит угловую зависимость (лоренц-фактор) в виде

$$\frac{2\lambda_I^3}{\cos \Psi \sin \vartheta_B \sqrt{2(1 - \cos \Psi \cos \vartheta_B)}}$$

Естественно, что при $\Psi \rightarrow 0$ это выражение переходит в обычное $\lambda_I^3 / \sin \theta_B / \sin 2\theta_B$. При этом предельном переходе и формула для ширины линии (10), (20) преобразуется в известную [1].

Формулы для ширины пиков и их интенсивностей получаются отличными от традиционных и при прецизионном анализе эту разницу необходимо учитывать, внося соответствующие поправки в пакеты обработки нейтрограмм. Однако при качественном изучении дифрактограмм эти отличия оказываются не столь уж существенными, за исключением области малых углов рассеяния. В самом деле, на рис. 2 приведена зависимость ширины брэгговских пиков от угла рассеяния ϑ , рассчитанная для приборов с одинаковыми блоками монохроматора, но с разными расстояниями между плоскостью детекторного кольца и диаметральной плоскостью, т.е. с различными значениями угла Ψ . При расчете использовались реалистические параметры прибора. Длина волны 1.72 А, дифрактометр оснащен сдвоенным монохроматором с медными монокристаллами (расстояние между отражающими плоскостями 1.273 А, горизонтальные и вертикальные мозаичности кристаллов монохроматора равны 10'). Внутриканальные коллимации: горизонтальная 1°, вертикальная 2°. Коллимации между кристаллами монохроматора: горизонтальная 2°, вертикальная 3°. Коллимации перед образцом: горизонтальная 15', вертикальная 2°. Преддетекторные: горизонтальная коллимация 30', вертикальная 1° и 2°. Ширина пика в приборах традиционной кон-

струкции (сплошная линия на рис. 2) не зависит от вертикальных коллимаций. Из этого рисунка хорошо видно, что вариация β_D сказывается на ширине линии при $\Psi \neq 0$.

Поведение характеристик нейтронных пиков в особой области ($\vartheta \cong 0$), заштрихованной на рис. 2, будет описано позднее.

Список литературы

- [1] Бобровский В.И., Гощицкий Б.Н., Ждагин И.Л. Сравнительное исследование разрешения порошковых нейтронных дифрактометров с обычным и кольцевым детекторами. Деп. в ВИНТИ. № 4388-В 86.
- [2] Бобровский В.И., Ждагин И.Л., Пирогов А.И. // Кристаллография. 1990. Т. 35. № 1. С. 17.

Институт физики металлов
Екатеринбург

Поступило в Редакцию
22 июля 1992 г.