

01,02

Развитие методов обработки спектров многократного малоуглового рассеяния нейтронов

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

ГНЦ РФ „Институт экспериментальной и теоретической физики“, Москва, Россия

E-mail: lvov@itep.ru

(Поступила в Редакцию 5 мая 2011 г.)

Проведено развитие метода обработки спектров многократного малоуглового рассеяния (ММУРН) для получения информации о неоднородностях вещества: их размере и концентрации. Предложен метод построения зависимости ширины линии ММУРН от толщины образца исходя из углового распределения нейтронов, измеренного на одном образце. Стандартный метод обработки данной зависимости усовершенствован для применения при любых кратностях рассеяния и полного учета инструментальной линии двухкристалльного спектрометра. Проведено тестирование метода на спектрах ММУРН образцов ферромагнетика Fe–Ni, порошках Al и ВТСП-керамике.

1. Введение

Исследования по методу малоуглового рассеяния нейтронов (МУРН) часто приходится проводить в условиях преобладания многократного рассеяния, т.е. в ситуации, когда $L \gg l$, где L — толщина образца, а l — длина свободного пробега нейтронов. Для получения значений характерного размера R единичных рассеивателей и их концентрации c в образце, как правило [1–3], используют зависимости $\omega(L)$, где ω — ширина на половине высоты распределений интенсивности ММУРН $I_L(q)$, измеренных для нескольких образцов с различными толщинами L . Здесь $q = |\mathbf{k} - \mathbf{k}_0|$ — модуль вектора рассеяния, а \mathbf{k} и \mathbf{k}_0 — волновые векторы рассеянного и падающего излучения соответственно.

Недостатком данной методики является необходимость изготовления нескольких идентичных по свойствам образцов, что к тому же делает ее неприменимой в случае, когда образец имеется в единственном экземпляре. Экспериментальное определение толщинных зависимостей, кроме того, требует больших временных затрат.

В данной работе предложен метод, позволяющий по одному единственному распределению $I_{L_0}(q)$, измеренному в широком интервале значений q для образца с толщиной L_0 , восстановить распределения $I_{nL_0}(q)$ для образцов с толщинами nL_0 , где n — целое число. Для образцов из калиброванного по размеру гранул порошка Al, сплава Fe–Ni и ВТСП-керамики состава $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ проведено восстановление кривых I_{nL_0} и построены толщинные зависимости $\omega(nL_0)$, которые сравнивались с аналогичными кривыми, полученными из экспериментов с образцами разной толщины. Для образца ВТСП-керамики проведена обработка полученных зависимостей на основе теории Мольер и определены характерный размер и концентрация пор. В связи с необходимостью обеспечения точности и достоверности при восстановлении кривых $I_{nL_0}(q)$ в работе подробно

рассмотрены вопросы корректного учета аппаратных искажений при обработке экспериментальных данных.

2. Коллимационные поправки в методе двухкристалльного спектрометра

В методике двухкристалльного спектрометра (ДКС) образец помещается между совершенными кристаллами — монохроматором и анализатором (рис. 1), и измеряется распределение интенсивности дважды отраженного излучения в зависимости от угла β между отражающими плоскостями кристаллов. Инструментальная линия прибора $I_0(\beta)$, измеряемая при отсутствии образца, описывается следующей формулой [4]:

$$I_0(\beta) = \kappa \int_{-\infty}^{\infty} R(\xi) \cdot R(\xi - \beta) d\xi \equiv \kappa R * R, \quad (1)$$

где κ — постоянная величина, зависящая от характеристик нейтронного пучка; $R(\xi)$ — коэффициент отра-

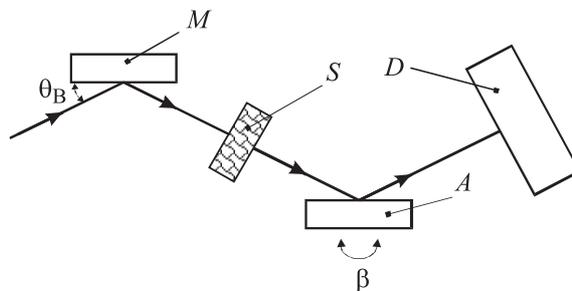


Рис. 1. Схема двухкристалльного спектрометра на совершенных кристаллах. M — кристалл-монохроматор, A — кристалл-анализатор, D — детектор, S — образец, θ_B — угол Брэгга, β — угловое отклонение анализатора от положения, параллельного монохроматору.

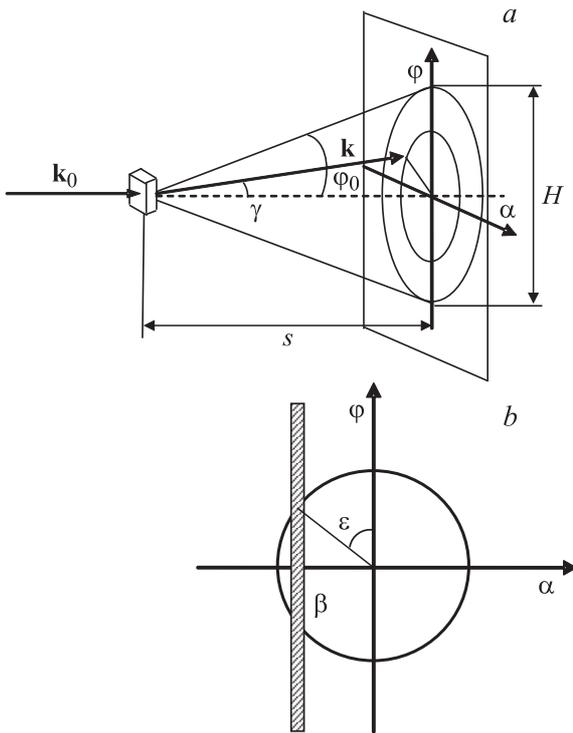


Рис. 2. Геометрия эксперимента. *a* — диаграмма малоуглового рассеяния с аксиальной симметрией: \mathbf{k}_0, \mathbf{k} — волновые векторы падающего и рассеянного излучения соответственно, φ, ε — сферические координаты вектора \mathbf{k} , α и φ — „декартовы“ координаты, φ_0 — максимальный угол рассеяния, при котором происходит регистрация излучения, s — расстояние от образца до детектора, H — размер окна детектора; *b* — рассеяние в декартовой системе координат: заштрихованная полоса — область в импульсном пространстве рассеянного излучения, регистрируемого с помощью двухкристалльного спектрометра в том случае, когда угловое положение анализатора $\alpha = \beta$.

жения от кристалла, $\xi = \vartheta - \theta_B$, ϑ — угол скольжения, θ_B — угол Брэгга.

В методе ДКС основной вклад в аппаратные искажения вносят конечная высота входного окна детектора и эффект обрыва экспериментальных угловых распределений. Из-за аксиальной симметрии МУРН распределение интенсивности излучения после образца $I(\gamma, \varepsilon)$, где γ, ε — сферические координаты вектора \mathbf{k} , является функцией только азимутального угла γ (рис. 2). Вследствие малости углов рассеяния ($\gamma < 10^3$ rad) можно характеризовать отклонение луча от первоначального направления углами α и φ , определяющими отклонение в горизонтальной и вертикальной плоскости соответственно, считая при этом, что $\gamma^2 = \alpha^2 + \varphi^2$. Таким образом, $I(\gamma, \varepsilon) \rightarrow I(\gamma) = I(\sqrt{\alpha^2 + \varphi^2})$. Угол скольжения лучей, падающих на кристалл-анализатор, в первом порядке по малым углам α и φ равен $\vartheta = \theta_B + \xi + \alpha - \beta$, т.е. данная методика чувствительна к угловым отклонениям рассеянного излучения только в плоскости дифракции. При фиксированной угловой координате кристалла-

анализатора (β), детектором регистрируется рассеянное излучение, распространяющееся в диапазоне, который представлен графически на рис. 2, *b* в виде вертикальной заштрихованной полосы. Ширина этой полосы определяется угловой шириной кривой отражения совершенного кристалла, составляющей в нашем случае около $3''$, а высота $(-\varphi_0, \varphi_0)$ определяется геометрией опыта (рис. 2, *a*):

$$\varphi_0 = \arctg(H/2s) \sim H/2s. \quad (2)$$

Здесь H — высота окна детектора, s — расстояние от образца до детектора. Соответственно экспериментально наблюдаемое распределение интенсивности МУРН описывается следующим образом:

$$I^{\text{exp}}(\beta) = \int_{-\infty}^{\infty} I_0(\beta - \alpha) d\alpha \int_{-\varphi_0}^{\varphi_0} I(\sqrt{\alpha^2 + \varphi^2}) d\varphi. \quad (3)$$

В обычных опытных условиях [4] $H = 40$ mm, $s = 1200$ mm, при этом $\varphi_0 \approx 1^\circ = 0.017$ rad. Для исследуемых образцов угловой диапазон, в котором интенсивность МУРН отлична от нуля, не превышает $\alpha_{\text{max}} \leq 7' \ll \varphi_0$, что позволяет в (3) перейти к интегрированию в бесконечных пределах и переписать его в виде

$$\begin{aligned} I^{\text{exp}}(\beta) &= \int_{-\infty}^{\infty} I_0(\beta - \alpha) d\alpha \int_{-\infty}^{\infty} I(\sqrt{\alpha^2 + \varphi^2}) d\varphi \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} I_0(\beta - \alpha) \tilde{I}(\alpha) d\alpha \equiv I_0 * \tilde{I}, \end{aligned} \quad (4)$$

где $\tilde{I}(\alpha)$ — интенсивность МУРН под углом α в горизонтальной плоскости

$$\tilde{I}(\alpha) = \int_{-\infty}^{\infty} I(\sqrt{\alpha^2 + \varphi^2}) d\varphi. \quad (5)$$

Из (5) легко сделать вывод, что если $I(\alpha) \sim \alpha^{-\delta}$ при $\alpha \rightarrow \infty$, то $\tilde{I}(\alpha) \sim \alpha^{-\delta+1}$, т.е. при использовании двухкристалльной методики степень зависимости интенсивности от переданного импульса повышается на единицу. Например, при изучении МУРН на сплошных, компактных частицах с резкой границей вместо известной асимптотической зависимости Порода $I(\alpha) \sim \alpha^{-4}$ при использовании двухкристалльной методики наблюдается зависимость $\tilde{I}(\alpha) \sim \alpha^{-3}$.

3. Метод восстановления толщинной зависимости

Предположим, что на образец падает пучок нейтронов, характеризующийся „абсолютной“ монохроматичностью и нулевой расходимостью, и для удобства введем толщину L в обозначение интенсивности излучения,

прошедшего через образец, $I_L(\alpha, \varphi)$. Согласно теории Мольер[5],

$$I_L(\alpha, \varphi) = I_L(\theta) = \frac{1}{2\pi} \int_0^\infty y dy \cdot J_0(y\theta) \exp[-L/l(1 - \sigma_y/\sigma_0)], \quad (6)$$

$$\sigma_y = \frac{1}{2\pi} \int_i^\infty \theta d\theta \cdot J_0(y\theta) \cdot \sigma(\theta), \quad \sigma_0 = \sigma_{y=0}, \quad (7)$$

где $\sigma(\theta)$ — дифференциальное сечение рассеяния на угол $\theta = \sqrt{\alpha^2 + \varphi^2}$, σ_0 — полное сечение. Из формулы (6) следует, что угловое распределение интенсивности излучения после образца двойной толщины является сверткой I_L с такой же функцией: $I_{2L}(\alpha, \varphi) \equiv I_L * I_L(\alpha, \varphi)$. Для образца толщиной nL угловое распределение будет описываться формулой

$$I_{nL}(\alpha, \varphi) = \int I_{(n-1)L}(\alpha', \varphi') I_L(\alpha - \alpha', \varphi - \varphi') d\alpha' d\varphi' \equiv I_{(n-1)L} * I_L. \quad (8)$$

С помощью данной формулы, зная распределение I_L в широком угловом диапазоне, можно расчетным путем восстановить кривые рассеяния для образцов с толщинами nL . Легко показать, что соотношение, аналогичное (8), должно выполняться и для интегральных угловых распределений $\tilde{I}(\alpha)$, определяемых согласно (5). Действительно,

$$\begin{aligned} \tilde{I}_{nL} &= \int_{-\infty}^\infty I_{nL}(\alpha, \varphi) d\varphi = \int_{-\infty}^\infty \int_{-\infty}^\infty \int_{-\infty}^\infty I_{(n-1)L}(\alpha', \varphi') \\ &\times I_L(\alpha - \alpha', \varphi - \varphi') d\alpha' d\varphi' d\varphi \\ &= \int_{-\infty}^\infty d\alpha' \cdot \int_{-\infty}^\infty I_{(n-1)L}(\alpha', \varphi') \cdot d\varphi' \\ &\times \int_{-\infty}^\infty I_L(\alpha - \alpha', \varphi - \varphi') \cdot d\varphi \\ &= \int_{-\infty}^\infty \tilde{I}_{(n-1)L}(\alpha') \cdot \tilde{I}_L(\alpha - \alpha') \cdot d\alpha' \equiv \tilde{I}_{(n-1)L} * \tilde{I}_L. \quad (9) \end{aligned}$$

. Отметим, что соотношение (9) верно только в случае, когда интегрирование проводится в бесконечных пределах. Исходная кривая рассеяния $\tilde{I}_L(\alpha)$ должна измеряться в довольно большом угловом диапазоне, чтобы можно было достаточно точно определить характер ее асимптотического поведения при $\alpha \rightarrow \infty$. Для больших значений α , находящихся за пределами измерений, можно воспользоваться результатами экстраполяции $\tilde{I}_L(\alpha)$ согласно найденному степенному закону $\tilde{I}(\alpha) \sim \alpha^{-3}$.

4. Сравнение с экспериментом

Эксперименты проводились на универсальном нейтронном дифрактометре с двухкристальным монохроматором [4,6], на котором была установлена пара совершенных кристаллов Ge, вырезанных по плоскости (111), в параллельной позиции (рис. 1). Измеренная ширина инструментальной кривой $I_0(\beta)$ при рабочей длине волны нейтронов $\lambda_0 = 1.75 \text{ \AA}$ составляла $\omega_0 = (3.1 + 0.2) \text{ ang. sec}$. Регистрация нейтронов проводилась ^3He -детектором с эффективностью регистрации 96%; фильтрация нейтронов высших порядков отражений с $\lambda_n = \lambda_0/n$ осуществлялась монокристаллическим кварцевым фильтром, снижающим их содержание в пучке до величины $< 1\%$ от основной компоненты.

На рис. 3 представлено экспериментальное распределение $I^{\text{exp}}(\beta)$, для образца Fe–Ni толщиной $L = 2 \text{ mm}$. Эта зависимость была использована для получения распределений I_{nL} по вышеизложенной схеме. Восстановленная кривая для $n = 5$ или, что то же самое, для $L = 10 \text{ mm}$, изображена сплошной кривой. Здесь же даны экспериментальные точки распределения $I^{\text{exp}}(\beta)$, полученные для образца Fe–Ni с толщиной $L = 10 \text{ mm}$ (кружки). Как видно из рисунка, наблюдается хорошее согласование между экспериментальным и восстановленным распределениями.

Используя полученные распределения I_{nL} , можно определить значения полуширин ω для каждого из них, т. е. восстановить зависимость $\omega(L^{1/2})$ в диапазоне толщин материала от L до nL . На рис. 4 представлена такая зависимость (сплошная линия) для образца Fe–Ni, а на рис. 5 — зависимость $\omega(m^{1/2})$ (также сплошная линия) для порошка Al, где m — масса образца. В качестве исходных были использованы распределения

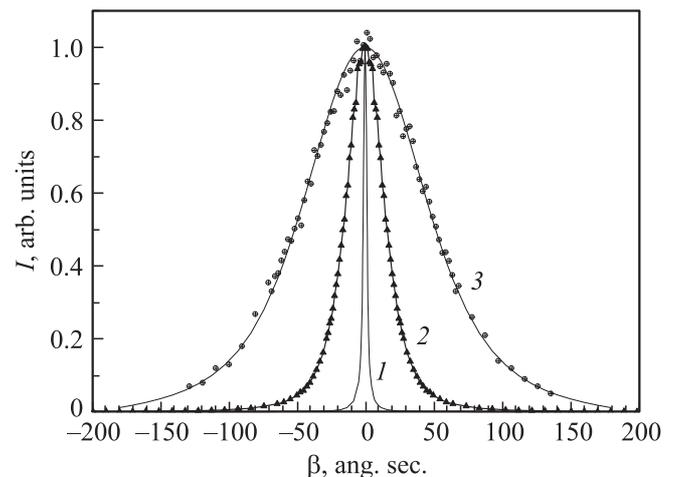


Рис. 3. Нормированные кривые малоуглового рассеяния, измеренные для образцов из сплава Fe–Ni. 1 — инструментальная линия, 2 — кривая ММУРН для образца толщиной 2 mm, 3 — кривые ММУРН для образца толщиной 10 mm: сплошной линией изображена расчетная кривая, кружками — измеренная.

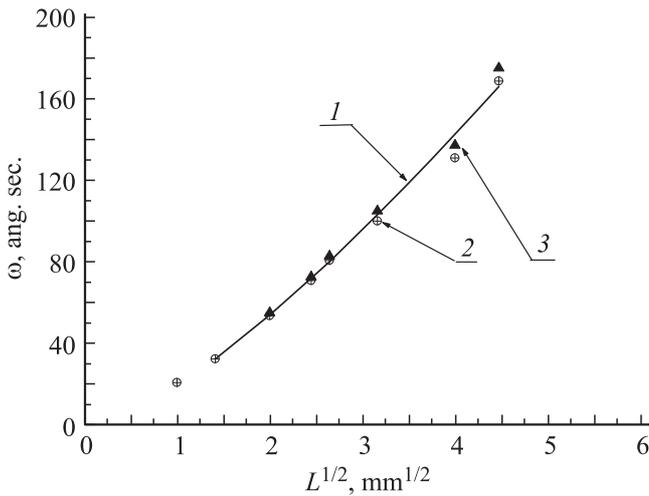


Рис. 4. Зависимость ширины ω на полувысоте угловых распределений интенсивности МУРН от толщины L образца Fe–Ni. 1 — расчётная зависимость; 2 — экспериментальная зависимость; 3 — экспериментальные значения с учетом поправки на инструментальную линию. При расчетах использовалась кривая рассеяния, снятая для образца толщиной $L = 2$ mm.

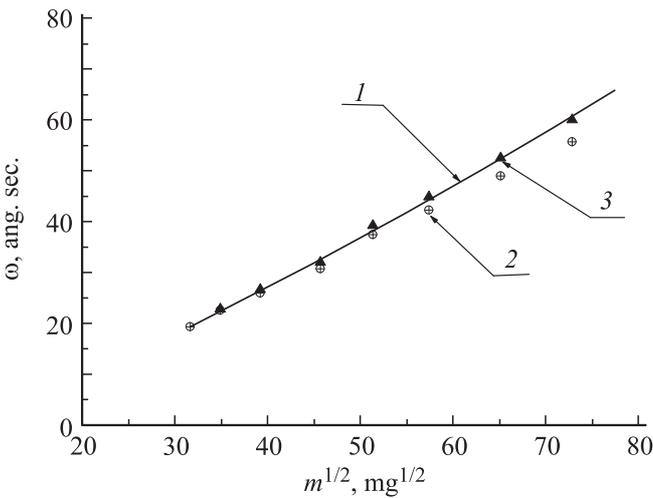


Рис. 5. Зависимость ширины ω на полувысоте угловых распределений интенсивности МУРН от массы m порошкового образца Al. 1 — расчетная зависимость; 2 — экспериментальная зависимость; 3 — экспериментальные значения с учетом поправки на инструментальную линию. При расчётах использовалась кривая рассеяния для образца массой $m = 1000$ mg.

$I_L^{\text{exp}}(\beta)$ и $I_m^{\text{exp}}(\beta)$, измеренные для образцов с $L = 2$ mm для Fe–Ni и с $m = 1000$ mg для Al. В виде кружков на обоих рисунках приведены значения $\omega(L^{1/2})$ и $\omega(m^{1/2})$, полученные из экспериментов с образцами, имевшими $L \geq 2$ mm и $m \geq 1000$ mg соответственно.

На рис. 4,5 восстановленные значения ширины ω систематически превышают опытные. Это объясняется тем, что, согласно (4), экспериментальная кривая представляет собой свертку распределения $\tilde{I}(\alpha)$ и инстру-

ментальной кривой I_0 , т.е. восстановленная и экспериментальная кривые для образца с толщиной, равной nL , описываются соответствующими выражениями:

$$I_{nL}^{\text{rec}} \equiv \tilde{I}_L * \dots * \tilde{I}_L * I_0 * \dots * I_0; \quad \{n \text{ раз}\} \quad \{n \text{ раз}\}$$

$$I_{nL}^{\text{exp}} \equiv \tilde{I}_L * \dots * \tilde{I}_L * I_0. \quad \{n \text{ раз}\} \quad (10)$$

Поэтому, для того чтобы иметь возможность сопоставлять, экспериментальные распределения были дополнительно $(n - 1)$ раз свернуты с инструментальной кривой прибора. Соответствующие значения ширины ω также представлены на рис. 4 и 5 (темные треугольники). В этом случае, как видно из рисунков, наблюдается хорошее согласие восстановленных и экспериментальных данных. Легко видеть, что формулы (9), (10) справедливы при любой кратности рассеяния. Следовательно, использование данного метода дает возможность работать с образцами, для которых рассеяние не является ни однократным, ни многократным.

5. Определение параметров неоднородностей образца

Рассмотрим теперь алгоритм получения характеристик рассеивающей системы из восстановленных толщинных зависимостей, что и является конечной целью малоуглового эксперимента. В работе [2] определялись характерный размер R единичного рассеивателя и удельный объем s , занятый рассеивателями в образце. Для этого измеренная толщинная зависимость $\omega^{\text{exp}}(\sqrt{L})$ сравнивалась с чисто расчетными кривыми $\omega^{\text{th}}(\sqrt{L})$, для вычисления которых использовались формулы (6), (7). При этом для Фурье-образа сечения рассеяния σ_y было использовано асимптотическое выражение при $u \rightarrow 0$ [5], что верно только в пределе больших кратностей рассеяния. Данный метод был усовершенствован нами следующим образом. Из соотношений (4)–(6) для наблюдаемой интенсивности получаем

$$I^{\text{exp}}(\beta) = 1/\pi \int_{-\infty}^{\infty} d\alpha I_0(\beta - \alpha) \int_0^{\infty} dy \cdot \cos(\alpha y) \times \exp[-L/l(1 - \sigma_y/\sigma_0)]. \quad (11)$$

Инструментальная линия, как было показано в работе [7], с достаточной точностью описывается лоренцевой функцией

$$I_0(\beta) = \frac{\omega_0}{2\pi [\beta^2 + (\omega_0/2)^2]}. \quad (12)$$

Учитывая, что свертке функций в Фурье-представлении отвечает произведение, получаем

$$I^{\text{exp}}(\beta) = 1/\pi \int_0^{\infty} dy \cdot \cos(\beta y) \cdot \exp(-\omega_0 y/2) \times \exp[-L/l(1 - \sigma_y/\sigma_0)]. \quad (13)$$

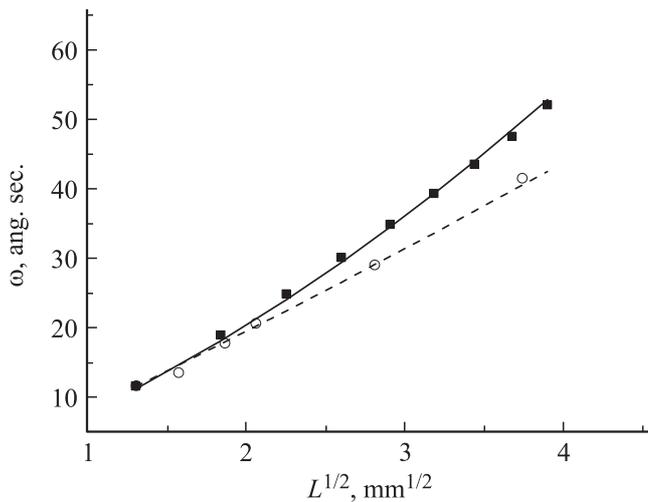


Рис. 6. Зависимости ширины ω углового распределения интенсивности рассеянных нейтронов от толщины L образца ВТСП-керамики. Кружки — экспериментальные значения, полученные с помощью нескольких образцов; квадраты — значения, восстановленные из единственного углового распределения; штриховая линия получена по формуле (13) для значений $R = 6 \mu\text{m}$ и $c = 8\%$, сплошная линия получена из (13) с выполнением дополнительных сверток с инструментальной линией.

На основе (13) нами строились расчетные кривые $\omega^{\text{th}}(\sqrt{L})$. σ_y определялось численно по формуле (7) исходя из дифференциального сечения рассеяния $\sigma(q) = (\sim qR - qR \cos qR)^2 / (qR)^6$ на неоднородности радиуса R , что избавляло от необходимости выполнения условия $L/l \ll 1$. Варьировались параметры R и удельный объем рассеивателей c , чтобы добиться совпадения экспериментальной и расчетной кривых.

Для того чтобы использовать этот метод обработки данных в случае восстановленной толщинной зависимости, необходимо преобразовать расчетные зависимости $\omega^{\text{th}}(\sqrt{L})$, дополнительно свернув спектры с инструментальной линией. Легко заметить, что для расчета по теории Мольер спектра, полученного n -кратной сверткой линии МУРН, надо в (13) в подынтегральном выражении $\exp(-\omega_0 y/2)$ заменить на $\exp(-(n+1)\omega_0 y/2)$. На образцах с высокой концентрацией неоднородностей (гранулы Al и домены в FeNi) из теории Мольер получаются завышенные значения R из-за наличия эффекта межчастичной интерференции [8]. Поэтому была проведена обработка спектров образцов ВТСП керамики состава $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, где концентрация неоднородностей (пор) значительно меньше. На рис. 6 кружками обозначены экспериментальные значения ширины линий ММУРН, измеренных на образцах с различными толщинами. Квадратами обозначены значения ω для распределений, восстановленных с помощью единственной экспериментальной кривой $I^{\text{exp}}(\beta)$ для $L = 1.69 \text{ mm}$. Эти значения были аппроксимированы на основе (13) с учетом дополнительных сверток с инструментальной линией. Полученная зависимость представлена на рис. 6

сплошной линией, отвечающей радиусу пор $R = 6 \mu\text{m}$ и совокупному удельному объему пор $c = 0.08$. Пунктирная линия получена по формуле (13) при тех же значениях R и c . Видно, что имеет место совпадение расчетной и восстановленной зависимостей.

Заметим, что возможен и другой способ определения параметров неоднородностей, основанный на аппроксимации по теории Мольер экспериментальной кривой $I^{\text{exp}}(\beta)$ для $L = 1.69 \text{ mm}$ выражениями (7), (13) по методу наименьших квадратов. Однако подгоночные параметры (концентрация и размер неоднородностей) являются сильно скоррелированными. Это приводит к тому, что сильно отличающиеся наборы параметров приводят к близким среднеквадратичным отклонениям χ^2/n . Данная неопределенность существенно уменьшается при аппроксимации зависимости $\omega(\sqrt{L})$, почти совпадающие кривые $I(\beta)$, соответствующие сильно отличающимся размерам и концентрациям, дают существенно различные зависимости $\omega(\sqrt{L})$, т. е. самосвертка кривых выполняет регуляризацию в методе наименьших квадратов.

6. Заключение

В работе рассмотрены коллимационные поправки в методе двухкристального спектрометра, предложены соответствующие расчетные формулы. В экспериментах с образцами алюминиевого порошка, сплава Fe–Ni и ВТСП-керамики показана работоспособность метода, позволяющего восстанавливать угловые распределения рассеянного излучения и получать толщинные зависимости после измерения единственного образца. Предложен и реализован алгоритм получения значений характерного размера и концентрации рассеивающих центров в исследуемом образце для данного метода. Важной особенностью этого метода является его пригодность в переходном случае, то есть тогда, когда рассеяние не носит ни чисто однократного, ни чисто многократного характера.

Список литературы

- [1] С.Ш. Шильштейн, В.А. Соменков, М. Каланов, Н.О. Елютин. ФТТ **18**, 3231 (1976).
- [2] Ю.Г. Абов, Ю.И. Смирнов, Д.С. Денисов, Н.О. Елютин, С.К. Матвеев, А.О. Эйдлин. ФТТ **34**, 1408 (1992).
- [3] Ю.И. Смирнов, А.О. Пекшев, А.О. Эйдлин, Н.О. Елютин, С.К. Матвеев, Д.С. Денисов. ФТТ **33**, 2273 (1991).
- [4] Ю.Г. Абов, Н.О. Елютин, Д.В. Львов, Ю.И. Смирнов, А.Н. Тюлюсов. Препринт ИТЭФ № 16-02, (2002). 29 с.
- [5] С.В. Малеев, Б.П. Топерверг. ЖЭТФ **78**, 315 (1980).
- [6] Н.О. Елютин, Ю.И. Смирнов, Д.В. Львов, А.Н. Тюлюсов. ПТЭ **4**, 5 (2007).
- [7] 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).
- [8] Ю.Г. Абов, Ф.С. Джепаров, Н.О. Елютин, Д.В. Львов, Ю.И. Смирнов, А.Н. Тюлюсов. Письма в ЖЭТФ **78**, 1011 (2003).