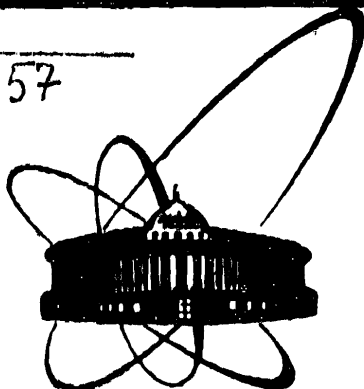


87-293

П57



**СООБЩЕНИЯ
ОБЪЕДИНЕННОГО
ИНСТИТУТА
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА**

СЗ44.1А

P14-87-293

Н. Попа

**ФУНКЦИЯ РАЗРЕШЕНИЯ
В НЕЙТРОННОЙ ДИФРАКТОМЕТРИИ**

1987

В экспериментах по рассеянию, в том числе и нейтронных дифракционных экспериментах, часто требуется знать функцию разрешения установки. Например, это необходимо, если информация извлекается из профиля пиков в измеренном от поликристаллического образца спектре /метод Ритвельда/. В случае монокристаллов также существуют проблемы, для решения которых требуется расчет функции разрешения /некоторые примеры даны в 3-м разделе/.

В настоящей работе последовательно рассмотрены факторы, влияющие на зависимость скорости счета детектора от переменных сканирования обратного пространства кристалла. Показано, что скорость счета является сверткой сечения рассеяния с функцией, определяющей вероятность события /регистрацию нейтрона, рассеявшегося в заданной точке обратного пространства/, которую и следует рассматривать как функцию разрешения. Получены общие выражения для трехмерной /случай монокристалла/ и одномерной /случай поликристалла/ функций разрешения для произвольно выбранных параметров сканирования. После конкретизации вида функции разрешения для дифрактометра по времени пролета ДН-2 обсуждается возможность определения сечения рассеяния с помощью деконволюции профиля дифракционных пиков.

1. ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ РАСЧЕТА ФУНКЦИИ РАЗРЕШЕНИЯ, ОПРЕДЕЛЕНИЯ И КОММЕНТАРИИ

Брэгговское дифференциальное сечение рассеяния нейтронов единичным объемом монокристалла можно записать в следующем виде:

$$\sigma(\vec{Q}) = (2\pi)^3 / v_c^2 \cdot |F_{\vec{H}}|^2 \phi(\vec{Q} - \vec{H}), \quad /1a/$$

$$\vec{Q} = \vec{k}_2 - \vec{k}_1; \quad /1b/$$

здесь \vec{k}_1 , \vec{k}_2 - волновые векторы нейтрона до и после рассеяния, \vec{H} - вектор в обратном пространстве кристалла, v_c - объем элементарной ячейки, $F_{\vec{H}}$ - структурный фактор, функция ϕ определяет форму пиков, она нормирована на единицу и зависит от

формы и объема когерентных блоков, составляющих кристалл, от мозаичного распределения, распределения дефектов и экстинкции. Для измерения $\sigma(\vec{Q})$ необходимо варьировать аргумент ϕ , другими словами, должно быть проведено сканирование обратного пространства. В общем случае это можно сделать, изменяя пять параметров: длину волны нейтрона $\lambda = 2\pi/k_1$ и направления векторов \vec{k}_2 и \vec{H} . Присвоим индекс В векторам $\vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{Q}$ и \vec{H} , для которых точно выполняется условие Брэгга: $\vec{Q}_B = \vec{k}_{2B} - \vec{k}_{1B} = \vec{H}_B$, а индекс 0 - текущим значениям этих векторов. Векторы $\vec{k}_{1B}, \vec{k}_{2B}$ и \vec{H}_B определяют среднюю плоскость рассеяния, которая далее считается горизонтальной. Тогда пять параметров сканирования определим как горизонтальные $\Delta 2\theta_0, \omega_0$ и вертикальные ψ_0, χ_0 углы отклонения \vec{k}_{20} и \vec{H}_0 от \vec{k}_{2B} и \vec{H}_B , соответственно /см. рис. 1/, и $\Delta k_0 = |\vec{k}_{10}| - |\vec{k}_{1B}| = |\vec{k}_{20}| - |\vec{k}_{2B}| = -\Delta\lambda_0 k_B / \lambda_B$.

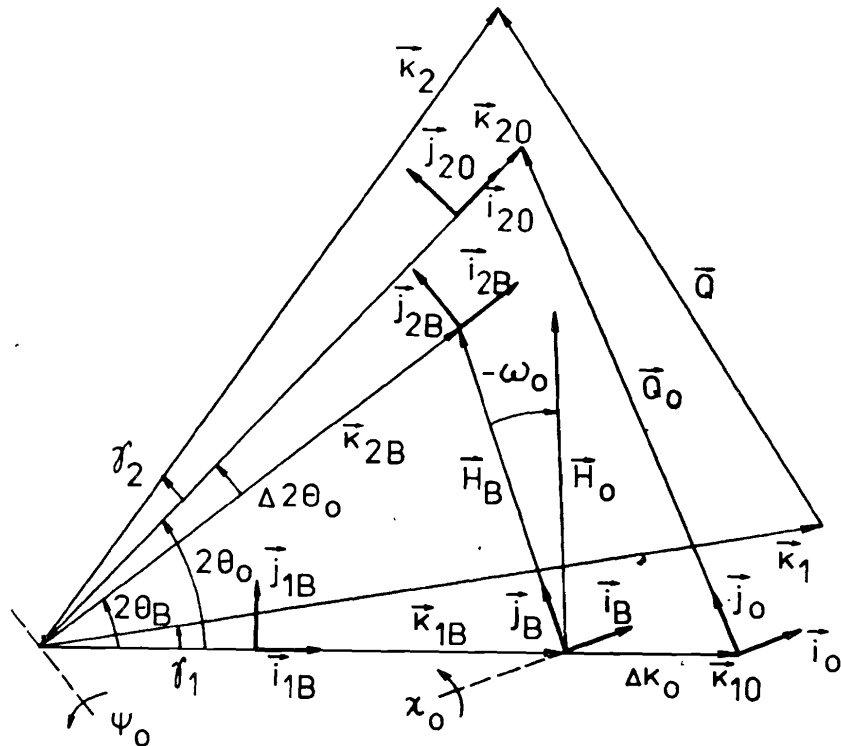


Рис. 1. Диаграмма процесса дифракции /показана проекция на горизонтальную плоскость/. Жирными линиями обозначены единичные векторы координатных систем. Пунктирные линии - оси вращения векторов \vec{H} и \vec{k}_{20} в вертикальной плоскости на углы χ_0 и ψ_0 .

Вследствие узости брэгговского пика эти пять величин малы. Для того чтобы написать явные выражения векторов $\vec{k}_{m0} / m = 1, 2 /$ и \vec{H}_0 , введем ортонормированные системы координат: $(\vec{i}_{mB}, \vec{j}_{mB}, \vec{l}_{mB}) / m = 1, 2 /$ с единичными векторами $\vec{i}_{mB} = \vec{k}_{mB} / k_B, \vec{j}_{mB}$, перпендикулярным \vec{i}_{mB} в горизонтальной плоскости, и $\vec{l}_{mB} = \vec{i}_{mB} \times \vec{j}_{mB}$; и систему $(\vec{i}_B, \vec{j}_B, \vec{l}_B)$ с $\vec{j}_B = \vec{H}_B / H_B, \vec{i}_B$, перпендикулярным \vec{j}_B в горизонтальной плоскости и $\vec{l}_B = \vec{i}_B \times \vec{j}_B$. В этом случае

$$\vec{k}_{10} = \vec{k}_{1B} + \Delta k_0 \vec{i}_{1B}, \quad /2a/$$

$$\vec{k}_{20} = \vec{k}_{2B} + \Delta k_0 \vec{i}_{2B} + k_B \Delta 2\theta_0 \vec{j}_{2B} + k_B \psi_0 \vec{l}_{2B}, \quad /2б/$$

$$\vec{H}_0 = \vec{H}_B - H_B \omega_0 \vec{i}_B - H_B \chi_0 \vec{l}_B. \quad /2в/$$

Принимая во внимание соотношения

$$\vec{i}_{mB} = \cos \theta_B \vec{i}_B + (-1)^m \sin \theta_B \vec{j}_B, \quad /3a/$$

$$\vec{j}_{mB} = (-1)^{m-1} \sin \theta_B \vec{i}_B + \cos \theta_B \vec{j}_B, \quad /3б/$$

$$\vec{l}_{mB} = \vec{l}_B \quad (m = 1, 2) \quad /3в/$$

и равенство $H_B = 2k_B \sin \theta_B$, запишем аргумент функции ϕ в виде

$$\vec{q}_0 = \vec{Q}_0 - \vec{H}_0 = \vec{k}_{20} - \vec{k}_{10} - \vec{H}_0 = q_{0x} \vec{i}_B + q_{0y} \vec{j}_B + q_{0z} \vec{l}_B, \quad /4a/$$

где

$$q_{0x} = H_B \left(\omega_0 - \frac{1}{2} \Delta 2\theta_0 \right), \quad /4б/$$

$$q_{0y} = H_B \left(-\frac{\Delta\lambda_0}{\lambda_B} + \frac{1}{2} \text{ctg} \theta_B \Delta 2\theta_0 \right), \quad /4в/$$

$$q_{0z} = k_B (\psi_0 + 2 \sin \theta_B \chi_0). \quad /4г/$$

Для достижения любой точки обратного пространства вблизи заданного узла обратной решетки достаточно изменять три из пяти возможных параметров сканирования. Выбор того или иного набора трех параметров определяет дифракционный метод. При постоянной длине волны излучения /АД-метод/ обычно выбираются $\omega_0, \Delta 2\theta_0, \chi_0$ / ω -сканирование/ или $\omega_0 = \omega_0' + \Delta\theta_0, \Delta 2\theta_0, \chi_0$ / $\theta - 2\theta$ -сканирование/. Если применяется "белое" излучение /ЕД-метод/, то сканирование ведется по $\Delta\lambda_0, \Delta 2\theta_0, \psi_0$.

Введем теперь обозначение (ν_1, ν_2, ν_3) для любой выбранной тройки величин из числа параметров сканирования. В случае идеального дифрактометра интенсивность рассеяния как функция (ν_1, ν_2, ν_3) пропорциональна $\sigma[\vec{Q}_0(\nu_1, \nu_2, \nu_3)]$. Однако для реального прибора необходимо учитывать вероятность обнаружения конкретных значений векторов \vec{k}_1 и \vec{k}_2 , которые как-то распределены относительно \vec{k}_{10} и \vec{k}_{20} . Другими словами, задание параметров (ν_1, ν_2, ν_3) еще не определяет полностью аргумента функции ϕ , т.к. он является случайной величиной. Его отклонение от ожидаемого значения $\vec{Q}_0 - \vec{H}_0$ есть

$$\Delta \vec{Q} = \vec{Q} - \vec{Q}_0 = (\vec{k}_2 - \vec{k}_{20}) - (\vec{k}_1 - \vec{k}_{10}) = \Delta Q_x \vec{i}_0 + \Delta Q_y \vec{j}_0 + \Delta Q_z \vec{l}_0. \quad /5/$$

В /5/ ортонормированная система $\{\vec{i}_0, \vec{j}_0, \vec{l}_0\}$ определена по отношению к вектору \vec{Q}_0 точно так же, как ранее система $\{\vec{i}_B, \vec{j}_B, \vec{l}_B\}$ была определена по отношению к вектору \vec{H}_B , в первом приближении эти две системы совпадают. Для явной записи $\Delta \vec{Q}$ необходимо ввести системы $(\vec{i}_{m0}, \vec{j}_{m0}, \vec{l}_{m0})$ ($m = 1, 2$), так же, как были введены системы $(\vec{i}_{mB}, \vec{j}_{mB}, \vec{l}_{mB})$ /рис. 1/. В этих новых системах

$$\vec{k}_m - \vec{k}_{m0} = \Delta k \vec{i}_{m0} + k_0 \gamma_m \vec{j}_{m0} + k_0 \delta_m \vec{l}_{m0} \quad (m = 1, 2), \quad /6/$$

где γ_m, δ_m - горизонтальное и вертикальное отклонения \vec{k}_m относительно \vec{k}_{m0} . Т.к. $Q_0 = 2k_0 \sin \theta_0$ и, кроме того, системы $(\vec{i}_{m0}, \vec{j}_{m0}, \vec{l}_{m0})$ связаны с системой $(\vec{i}_0, \vec{j}_0, \vec{l}_0)$ соотношениями типа /3/ /надо только заменить индекс B на 0/, то:

$$\Delta Q_x = -Q_0(\gamma_1 + \gamma_2)/2, \quad /7a/$$

$$\Delta Q_y = -Q_0[\Delta\lambda/\lambda_0 + \text{ctg} \theta_0(\gamma_1 - \gamma_2)/2], \quad /7б/$$

$$\Delta Q_z = -k_0(\delta_1 - \delta_2). \quad /7в/$$

Для вычисления интенсивности дифрагированного пучка необходимо проинтегрировать σ по случайным переменным $\Delta\lambda, \gamma_m, \delta_m$, принимая во внимание их функции распределения и корреляции, выражаемые формулами /7/:

$$I(\nu_1, \nu_2, \nu_3) (н/с) = V \Phi_0(\lambda_0) \int \dots \int d(\Delta \vec{Q}) \delta(\Delta \vec{Q} - \Delta \vec{k}_2 + \Delta \vec{k}_1) \times \\ \times \sigma(\vec{Q}_0 + \Delta \vec{Q}) T(\Delta\lambda/\lambda_0, \gamma_1, \delta_1, \gamma_2, \delta_2) d(\Delta\lambda) d\gamma_1 d\delta_1 d\gamma_2 d\delta_2; \quad /8/$$

здесь V - объем образца, $\Phi_0(\lambda_0)$ - спектральная плотность потока нейтронов на образце (н/см³/с). Функция $T(\Delta\lambda/\lambda_0, \gamma_1, \delta_1, \gamma_2, \delta_2)$, которую принято называть функцией пропускания, представляет собой вероятность обнаружения нейтрона с длиной волны $\lambda_0 + \Delta\lambda$ в телесных углах $d(\Delta\Omega_1) = d\gamma_1 d\delta_1$ и $d(\Delta\Omega_2) = d\gamma_2 d\delta_2$ соответственно до и после рассеяния. Она является безразмерной величиной, полученной после интегрирования распределений по другим, кроме $\Delta\lambda, \gamma_m, \delta_m$, переменным. Этими переменными /далее они называются переменными 2-го типа/ могут быть, в частности, координаты точек вылета нейтрона из источника, рассеяния его в образце и регистрации в детекторе, значения времени вылета и регистрации /для метода времени пролета/, угловое распределение пучка до монохроматизации /для двухосевого дифрактометра/ и т.д. Их следует учитывать в зависимости от того, присутствуют ли они в конкретной установке, в то время как величины $\Delta\lambda, \gamma_1, \gamma_2, \delta_1, \delta_2$ /переменные 1-го типа/ обязательны для учета, что и отражено в формуле /8/. Для определения $T(\Delta\lambda/\lambda_0, \gamma_1, \delta_1, \gamma_2, \delta_2)$ распределения волновых векторов нейтрона до и после рассеяния необходимо проинтегрировать по переменным 2-го типа, причем нужно учесть возможные корреляции между всеми случайными переменными как 1-го, так и 2-го типов. Конкретный расчет T для дифрактометра ДН-2 выполнен во второй части работы.

Определим нормированную функцию пропускания как

$$T_N(\Delta\lambda/\lambda_0, \gamma_1, \delta_1, \gamma_2, \delta_2) = \mathcal{L}^{-1} T(\Delta\lambda/\lambda_0, \gamma_1, \delta_1, \gamma_2, \delta_2), \quad /9/$$

где

$$\mathcal{L} = \int \dots \int d(\Delta\lambda) d\gamma_1 d\delta_1 d\gamma_2 d\delta_2 T(\Delta\lambda/\lambda_0, \gamma_1, \delta_1, \gamma_2, \delta_2). \quad /10/$$

Величину \mathcal{L} [см] будем называть светосилой дифрактометра. Теперь можно переписать /8/ в виде

$$I(\nu_1, \nu_2, \nu_3) = V \Phi_0(\lambda_B) \mathcal{L} \iiint d(\Delta \vec{Q}) R(\vec{Q}_0, \Delta \vec{Q}) \sigma(\vec{Q}_0 + \Delta \vec{Q}), \quad /11/$$

где

$$R(\vec{Q}_0, \Delta \vec{Q}) = \frac{2\lambda_0}{k_0 Q_0^2} \iint d\gamma_1 d\delta_1 T_N[(\frac{\Delta\lambda}{\lambda_0})^*, \gamma_1, \delta_1, \gamma_2^*, \delta_2^* |], \quad /12a/$$

$$(\Delta\lambda/\lambda_0)^* = -\text{ctg} \theta_0 \gamma_1 - \text{ctg} \theta_0 \Delta Q_x / Q_0 - \Delta Q_y / Q_0, \quad /12б/$$

$$\gamma_2^* = -\gamma_1 - 2\Delta Q_x / Q_0, \quad /12в/$$

$$\delta_2^* = \delta_1 + \Delta Q_z / Q_0. \quad /12г/$$

Функция R называется функцией разрешения дифрактометра, она дает вероятность регистрации события в точке $\vec{Q}_0 + \Delta\vec{Q}$ обратного пространства, если дифрактометр настроен на точку \vec{Q}_0 . Функция разрешения имеет размерность [см³], пикообразную по переменной форму и нормирована по $\Delta\vec{Q}$ на единицу. Ее зависимость от θ_0 и λ_0 существенно слабее, чем от $\Delta\vec{Q}$.

Для поликристаллического образца сечение рассеяния нейтронов

$$\sigma(Q) = 2\pi^2 |F_{\vec{H}}|^2 j_{\vec{H}}^2 / v_c^2 N^2 \cdot \phi(Q - H), \quad /13/$$

где $j_{\vec{H}}$ - фактор повторяемости, а ϕ нормирована на единицу. Для измерения $\sigma(Q)$ достаточно провести сканирование по одному параметру, например по $\Delta 2\theta_0$ в АД-методе или по $\Delta\lambda_0$ в ЕД-методе. Интегралы по ΔQ_x и ΔQ_z в /11/ берутся, и тогда

$$I(\nu_1) = V\Phi_0(\lambda_B) \int d(\Delta Q_y) R(Q_0, \Delta Q_y) \sigma(Q_0 + \Delta Q_y), \quad /14/$$

где одномерная функция разрешения

$$R(Q_0, \Delta Q_y) = \iint d(\Delta Q_x) d(\Delta Q_z) R(\vec{Q}_0, \Delta\vec{Q}) = \frac{\lambda_0}{Q_0} \iiint d\gamma_1 d\gamma_2 d\delta_1 d\delta_2 \times \\ \times T_N \left[\left(\frac{\Delta\lambda}{\lambda_0} \right)^{**}, \gamma_1, \delta_1, \gamma_2, \delta_2 \right], \quad /15а/$$

$$(\Delta\lambda/\lambda_0)^{**} = -\text{ctg} \theta_0 (\gamma_1 - \gamma_2) / 2 - \Delta Q_y / Q_0, \quad /15б/$$

$R(Q_0, \Delta Q_y)$ имеет размерность [см] и нормирована на единицу /по переменной ΔQ_y /.

Формулы для интенсивности /11/ и /14/ имеют вид свертки с отрицательным знаком у аргумента ядра. Если рассеяние измеряется на идеальном монокристалле, для которого функцию ϕ можно считать δ -функцией, то /11/ превращается /учитывая слабую зависимость R от \vec{Q}_0 / в

$$I(\nu_1, \nu_2, \nu_3) = (2\pi)^3 |F_{\vec{H}}|^2 / v_c^2 \cdot V\Phi_0 \int R[\vec{H}_B, -\vec{q}_0(\nu_1, \nu_2, \nu_3)]. \quad /16/$$

Аналогично для порошка, состоящего из неискаженных и крупных кристаллов:

$$I(\nu_1) = 2\pi^2 |F_{\vec{H}}|^2 j_{\vec{H}}^2 / v_c^2 N^2 \cdot V\Phi_0 \int R[H_B, -q_{0y}(\nu_1)]. \quad /17/$$

Следовательно, функцию разрешения можно измерить в некоторых точках обратного пространства, и наоборот, если известна функция разрешения и выполнено сканирование обратного пространства, то профиль $\sigma(\vec{Q})$ /или $\sigma(Q)$ / определяется обращением /деконволюцией/ /11/ /или /14//. Проведение трехмерного сканирования является сложной и не всегда необходимой процедурой. Например, если цель эксперимента - определение только интегральных интенсивностей пиков, то можно ограничиться одномерным сканированием, при условии, что апертура детектора достаточно велика для регистрации всего дифрагированного пучка. В любом случае формула /11/ для профиля пика остается справедливой /надо только положить отсутствующие параметры сканирования равными нулю/, но измерение функции разрешения и деконволюция спектра становятся возможными, если выполняются специальные, довольно строгие условия, касающиеся факторизации функции разрешения. Однако в этом случае результат деконволюции уже не является только лишь сечением рассеяния. Например, двумерный профиль пика, полученный сканированием в плоскости (Q_x, Q_y) обратного пространства, можно использовать в процедуре деконволюции, только если функция разрешения представима в виде

$$R(\Delta\vec{Q}) = R_H(\Delta Q_x, \Delta Q_y) R_V(\Delta Q_z). \quad /18/$$

Это же условие является необходимым для выполнения деконволюции одномерного профиля, полученного сканированием по направлению Q_z . Условие /18/ выполняется очень часто, но все же не всегда. Например, если монохроматор двухосевого дифрактометра обладает анизотропной мозаичностью, то ΔQ_z коррелирует с ΔQ_x и ΔQ_y . Кроме того, невозможно провести деконволюцию одномерных пиков от монокристалла, если сканирование проведено не по Q_z направлению, т.к. ΔQ_x и ΔQ_y коррелируют между собой.

Функция разрешения, введенная в настоящей работе, является обобщением функции, впервые определенной Купером и Натансом /1/ для двухосевого спектрометра. Вычисление ее для произвольного дифрактометра требует определения усредненной функции пропускания. Эта функция, а следовательно и разрешение, записывается в виде многократных интегралов, которые лишь в некоторых случаях могут быть вычислены аналитически. Для преодоления этой трудности в работе /2/ было предложено представлять функцию разрешения в виде ряда Грама-Чарлиера /ГЧ/, коэффициенты которого выражаются через моменты функций распределения, определяющих разрешение. Хотя этот метод был рекомендован как об-

щий /см. также / λ /, вопрос о сходимости ряда остался нерешенным. Есть распределения, для которых не все моменты существуют /например, лоренциан/, но даже при наличии всех моментов ряд ГЧ может расходиться. Именно такая ситуация возникает для распределения времени вылета нейтронов из замедлителя, которое имеет экспоненциальное крыло. Эксперимент ^{14/}, поставленный на реакторе ИБР-30, на самом деле не позволил проверить справедливость представления функции разрешения в виде ряда ГЧ, т.к. дисперсия распределения времени вылета нейтронов из замедлителя оказалась существенно меньше, чем дисперсия импульса быстрых нейтронов /при малых λ / или дисперсия пространственных распределений /при больших λ /. Характер этих распределений /близкий к гауссовому/ позволил результаты эксперимента ^{14/} описать достаточно хорошо с помощью ряда ГЧ, но при другом соотношении дисперсий ряд ГЧ может перестать сходиться. Например, для бустерного режима работы ИБР-30 вспышка быстрых нейтронов существенно короче времени замедления и функцию разрешения невозможно представить в виде ряда ГЧ. Дисперсия распределения времени вылета нейтронов из замедлителя, который в настоящее время применяется на ИБР-2 ^{15/}, составляет около $1,7 \cdot 10^4$ мкс² при $\lambda > 1,5 \text{ \AA}$, что даже превышает величину $1,18 \times 10^4$ мкс² для дисперсии импульса быстрых нейтронов ^{16/}. Хотя форма последнего хорошо описывается рядом ГЧ с пятью членами, но результирующее распределение представимо в виде ряда ГЧ только при очень малых λ .

К сожалению, невозможно указать общий метод расчета функции разрешения для произвольного дифрактометра. В некоторых случаях можно обойтись без вычислений. Например, для порошкового дифрактометра по времени пролета с фиксированной геометрией можно ввести эмпирическую параметрическую модельную функцию для профиля пиков, параметры которой зависят только от длины волны. Проведя измерения с образцом, не уширяющим дифракционные пики, можно, используя /17/, определить эту зависимость ^{17/}. Однако этот метод мало подходит для дифрактометров с переменной геометрией.

В случаях, когда методы, указанные выше, не годятся, можно рекомендовать следующую стратегию:

- а/ все распределения, входящие в Т, чей вклад в функцию разрешения пренебрежимо мал, заменяются на δ -функции;
- б/ оставшиеся распределения, если они неизвестны, измеряются каждое независимо;
- в/ ищутся эмпирические соотношения, позволяющие описать эти распределения и в то же время вычислить большую часть интегралов аналитически; остальные интегралы определяются численно;

г/ результат вычислений проверяется экспериментально с помощью стандартного образца.

Именно эта стратегия использовалась уже в работе ^{18/}. Она же применена для определения функции разрешения дифрактометра ДН-2 /2-й раздел работы/.

2. ПРИМЕНЕНИЕ МЕТОДА К ДИФРАКТОМЕТРУ ДН-2

Нейтронный дифрактометр по времени пролета ДН-2 установлен на импульсном реакторе ИБР-2, его конструкция и параметры описаны в ^{18/}. Первичный пучок формируется изогнутым зеркальным нейтроноводом с прямоугольным сечением. Пропускание идеального нейтроновода может быть рассчитано аналитически, но в реальном случае вычисления могут дать лишь качественную картину, т.е. на практике пропускание необходимо измерить. Реально может быть измерено распределение интенсивности нейтронного пучка на выходе нейтроновода или, что эквивалентно, на образце. Для записи этой величины введем ортогональную систему координат $/x, y, z/$ /см. рис. 2/ с началом O_S на оси гониометра,

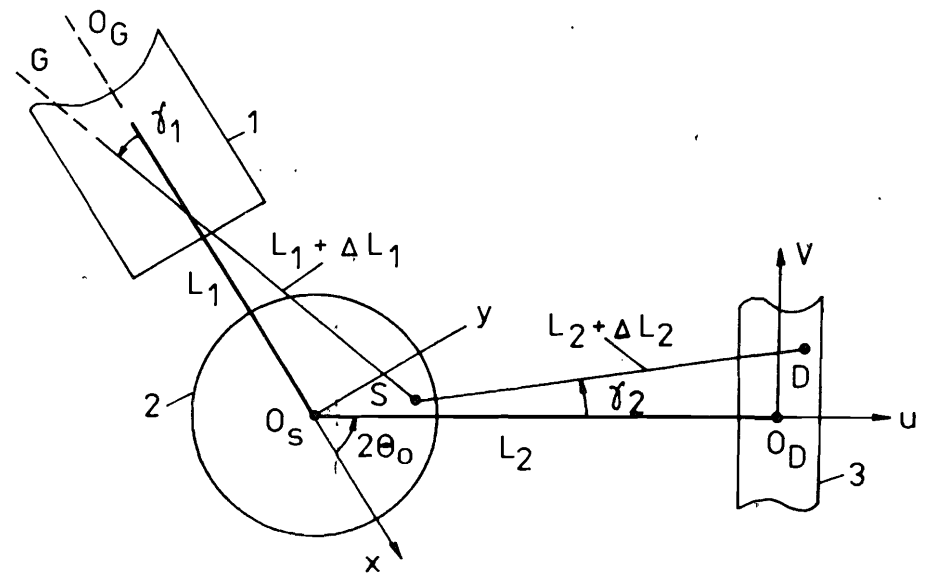


Рис. 2. Схема рассеяния нейтронов для дифрактометра ДН-2. 1 - обреза нейтроновода, 2 - образец, 3 - детектор. $O_G O_S O_D$ - средний путь нейтронов, GSD - один из возможных /случайных/ путей.

осью z , расположенной вертикально, и с осью x , лежащей вдоль среднего направления первичного пучка /это направление, как и среднее пролетное расстояние, определяется только после уточнения по методу наименьших квадратов положений брэгговских пиков от стандартного образца/. Обозначим $\Phi_m(\lambda)$ поток нейтронов из замедлителя, а $\Phi_s(\lambda, y, z, \gamma_1, \delta_1)$ распределение потока на образце. Пусть $\Omega_1 \omega(\lambda, y, z) \Phi_m(\lambda)$ есть интеграл от Φ_s по $d\gamma_1 d\delta_1$, причем Ω_1 - коэффициент, учитывающий геометрию нейтронвода /отношение сечения к квадрату длины/. Тогда, учитывая, что распределения по γ_1 и δ_1 не зависят одно от другого, Φ_s можно записать в виде

$$\Phi_s(\lambda, y, z, \gamma_1, \delta_1) = \Phi_m(\lambda) \Omega_1 \omega(\lambda, y, z) \Phi(\lambda, y, z, \gamma_1) \Psi(\lambda, y, z, \delta_1), \quad /19/$$

где функции Φ и Ψ нормированы на единицу по переменным γ_1 и δ_1 . Произведение $\Omega_1 \omega \Phi \Psi$ можно рассматривать как функцию пропускания нейтронвода. На практике для нормирования нейтронограмм используется не поток из замедлителя Φ_m , а эффективный поток Φ_0 , определяемый в измерениях со стандартным образцом /9/. Обозначая через $\epsilon(\lambda)$ эффективность детектора и $a(\lambda)$ - поглощение нейтронов на пути от замедлителя до детектора /кроме пути в образце/, можно записать

$$\begin{aligned} \Phi_0(\lambda) &= \epsilon(\lambda) a(\lambda) \Omega_1^{-1} S_0^{-1} \int_{S_0} \Phi_s(\lambda, y, z, \gamma_1, \delta_1) dy dz d\gamma_1 d\delta_1 = \\ &= \epsilon(\lambda) a(\lambda) S_0^{-1} \int_{S_0} \omega(\lambda, y, z) dy dz, \end{aligned} \quad /20/$$

где S_0 - сечение стандартного /ванадиевого/ образца в плоскости $x = 0$. Если Φ_0 используется вместо Φ_m , то функция пропускания должна быть переопределена,

$$\begin{aligned} T_G(\lambda, y, z, \gamma_1, \delta_1) &= \epsilon^{-1}(\lambda) a^{-1}(\lambda) \Omega_1 g(\lambda, y, z) \times \\ &\times \Phi(\lambda, y, z, \gamma_1) \Psi(\lambda, y, z, \delta_1), \end{aligned} \quad /21a/$$

где

$$g(\lambda, y, z) = \omega(\lambda, y, z) [S_0^{-1} \int_{S_0} \omega(\lambda, y, z) dy dz]^{-1}. \quad /21б/$$

В принципе после измерения Φ_s можно найти T_G . Но, действуя таким образом, невозможно найти распределение пролетного рас-

стояния от замедлителя до образца. Однако эта неопределенность вносит лишь незначительный вклад в разрешение ДН-2. Действительно, если T_0 - полное номинальное время пролета нейтроном с длиной волны λ_0 номинального /среднего/ пути $L = L_1 + L_2$, то неопределенность

$$\Delta T_0 = t + T_0 (\Delta L_1 + \Delta L_2) / L + T_0 \Delta \lambda / \lambda_0, \quad /22/$$

где t - разброс во времени вылета из замедлителя. Зная для ДН-2 $L = 25$ м и принимая, что неопределенность в полной пролетной базе не превышает 5 см, получаем, что второе слагаемое в /22/ составляет 12 мкс при $\lambda = 1 \text{ \AA}$ и 120 мкс при $\lambda = 10 \text{ \AA}$. Это существенно меньше ширины распределения $P(\lambda, t)$ для переменной t , которая для этих длин волн равна 305 мкс и 320 мкс соответственно /6/. Малый вклад в разрешение дают неопределенность регистрации нейтрона в детекторе / $\phi = 3$ см/ и учет размеров образца, если его толщина не превышает 5 см. Таким образом, вторым членом в /22/ можно пренебречь. Пространственными неопределенностями, связанными с размерами образца и детектора, нельзя, однако, пренебрегать, если речь идет о неопределенности величин, обратно пропорциональных L_2 , а не L /или L_1 /см. ниже/.

Функция пропускания образца, очевидно, может быть записана в виде

$$T_S(\lambda, x, y, z) = A^{-1}(\mu_s) \exp[-\mu_s(\ell_1 + \ell_2)], \quad /23/$$

для (x, y, z) внутри образца, вне образца $T_S(\lambda, x, y, z) = 0$. Здесь μ_s - линейный коэффициент поглощения нейтронов /зависящий от λ /, ℓ_1 и ℓ_2 - пути в образце до и после рассеяния, $A(\mu_s)$ - обычный фактор поглощения ($A(\mu_s) = V^{-1} \int dv \exp[-\mu_s(\ell_1 + \ell_2)]$). Традиционно $A(\mu_s)$ входит множителем в формулу для интенсивности, поэтому в /23/ введен фактор A^{-1} .

В качестве детектора на дифрактометре ДН-2 применен однокоординатный позиционно-чувствительный цилиндрический счетчик. Его ось лежит в горизонтальной плоскости и перпендикулярна направлению от образца на детектор. Введем ортонормированную систему координат (u, v, w) с началом на среднем направлении рассеянного пучка /см. рис. 2/, ось u вдоль этого направления и вертикальной осью w . Если среднее направление рассеянного пучка не идет точно по плечу дифрактометра, то ось v наклонена относительно оси детектора. Далее это не будет учитываться, т.к. эффекты обычно пренебрежимо малы. Функция пропускания детектора /т.е. вероятность регистрации им нейтрона/ зависит от $/u, v, w/$, но от u зависит только ΔL_2 , и этим можно пренебречь /см. выше/. Интегрируя по u , получаем

$$T_D(\lambda, v, w) = v_0 w_0 \epsilon(\lambda) D(v) E(\lambda, v), \quad /24/$$

где v_0 - ширина позиционной группы /в см/, w_0 - диаметр детектора. Функцию D можно найти экспериментально, а E выразить аналитически:

$$E(\lambda, w) = w_0^{-1} \epsilon^{-1}(\lambda) [1 - e^{-2\mu_D(w_0^2/4 - w^2)^{1/2}}]; \quad /25/$$

μ_D - линейный коэффициент поглощения нейтронов в детекторе. Переменные v и w коррелируют с $x, y, z, \gamma_2, \delta_2$:

$$v = -x \sin 2\theta_0 + y \cos 2\theta_0 + L_2 \gamma_2, \quad /26a/$$

$$w = t + L_2 \delta_2. \quad /26b/$$

Последняя "функция пропускания", которую необходимо ввести, - это функция, связанная с шириной канала временного анализатора. Обозначая ширину канала через τ , получаем

$$T_C(\Delta T) = \tau C(\Delta T), \quad /27a/$$

$$\text{где } C(\Delta T) = 1/\tau, \text{ если } -\tau/2 \leq \Delta T \leq \tau/2, \quad /27b/$$

и равна нулю вне этого интервала. Функцию $C(\Delta T)$ можно рассматривать как δ -функцию, если τ много меньше, чем ширина $P(\lambda, t)$ -распределения во времени первичного пучка / P нормирована на единицу/.

Теперь можно записать среднюю функцию пропускания, интегрируя промежуточные функции по случайным переменным и принимая во внимание корреляции:

$$\begin{aligned} T(\Delta\lambda/\lambda_0, \gamma_1, \delta_1, \gamma_2, \delta_2) &= a(\lambda_0) \int dt P(t) V^{-1} \iiint_V dx dy dz \times \\ &\times T_G(\lambda_0, y, z, \gamma_1, \delta_1) T_S(\lambda_0, x, y, z) \iint dv dw T_D(\lambda_0, v, w) \times \\ &\times \delta(v + x \sin 2\theta_0 - y \cos 2\theta_0 - L_2 \gamma_2) \delta(w - z - L_2 \delta_2) \times \\ &\times \int d(\Delta T) T_C(\Delta T) \delta(\Delta T - t - T_0 \Delta\lambda/\lambda_0). \end{aligned} \quad /28/$$

Обозначая $P_\tau(t)$ свертку P и C , получим из /28/:

$$T(\Delta\lambda/\lambda_0, \gamma_1, \delta_1, \gamma_2, \delta_2) = \Omega_1 v_0 w_0 \tau (VA)^{-1} \iiint_V dv e^{-\mu_s(\ell_1 + \ell_2)} \times \quad /29/$$

$$\begin{aligned} &\times g(\lambda_0, y, z) \Phi(\lambda_0, y, z, \gamma_1) \Psi(\lambda_0, y, z, \delta_1) D(-x \sin 2\theta_0 + y \cos 2\theta_0 + L_2 \gamma_2) \times \\ &\times E(\lambda_0, z + L_2 \delta_2) P_\tau(-T_0 \Delta\lambda/\lambda_0). \end{aligned}$$

Светосила дифрактометра

$$\mathcal{L} = \Omega_1 v_0 w_0 \tau \lambda_0 / T_0 L_2^2 (AV)^{-1} \iiint_V dv e^{-\mu_s(\ell_1 + \ell_2)} g(\lambda_0, y, z). \quad /30/$$

Для небольших по размеру образцов $(AV)^{-1} e^{-\mu_s(\ell_1 + \ell_2)} = \delta(x) \delta(y) \delta(z)$, соответственно

$$\mathcal{L} = \Omega_1 v_0 w_0 \tau \lambda_0 / T_0 L_2^2 \cdot g(\lambda_0, 0, 0) \quad /31/$$

и нормированная функция пропускания

$$\begin{aligned} T_N(\Delta\lambda/\lambda_0, \gamma_1, \delta_1, \gamma_2, \delta_2) &= L_2^2 T_0 / \lambda_0 \times P_\tau(-T_0 \Delta\lambda/\lambda_0) \times \\ &\times \Phi(\gamma_1) D(L_2 \gamma_2) \Psi(\delta_1) E(L_2 \delta_2). \end{aligned} \quad /32/$$

В /31/ $g(\lambda, 0, 0)$ можно положить равной единице, если образец, который применялся для определения Φ_0 , также мал. При обработке нейтронограмм, измеренных на больших образцах, необходима осторожность с учетом Φ_0 . Из /30/ видно, что светосила может сильно зависеть от длины волны из-за пространственной неоднородности первичного пучка на образце.

3. ДЕКОНВОЛЮЦИЯ ПРОФИЛЯ ДИФРАКЦИОННЫХ ПИКОВ

Можно предложить два метода использования знания профиля функции разрешения. А/ Задается параметризованная модель сечения рассеяния. Из сравнения результирующего профиля, т.е. свертки сечения рассеяния с функцией разрешения, с измеренным /с помощью метода наименьших квадратов/ определяются параметры модели. Этот путь известен как метод Ритвельда. Б/ Сечение рассеяния /или какая-то непосредственно связанная с ним функция/ находится из измеренного профиля методом деконволюции. Существует несколько алгоритмов для этого, один из наиболее эффективных предложен Ричардсоном /10, 11/. Интеграл /11/ можно заменить суммой

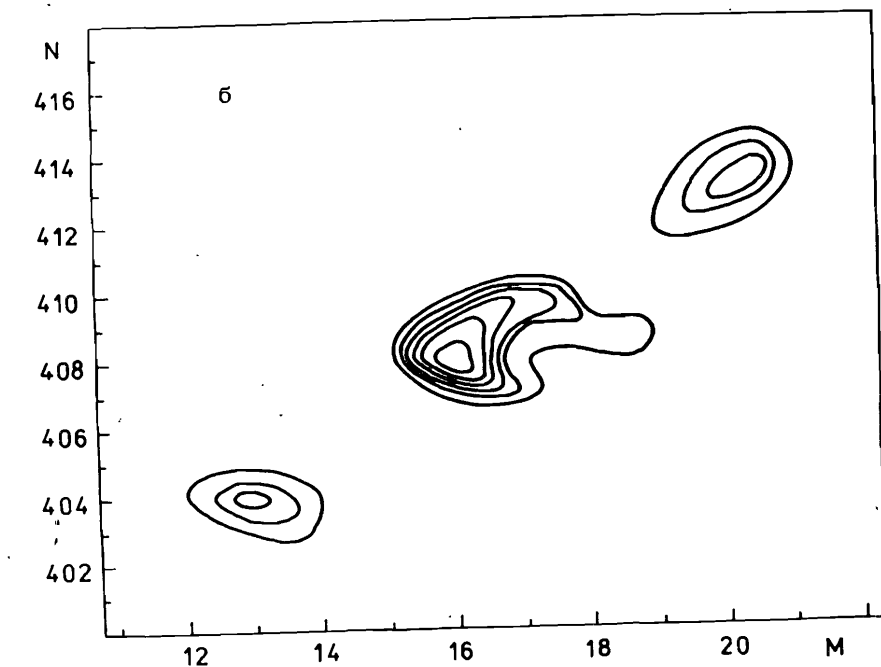
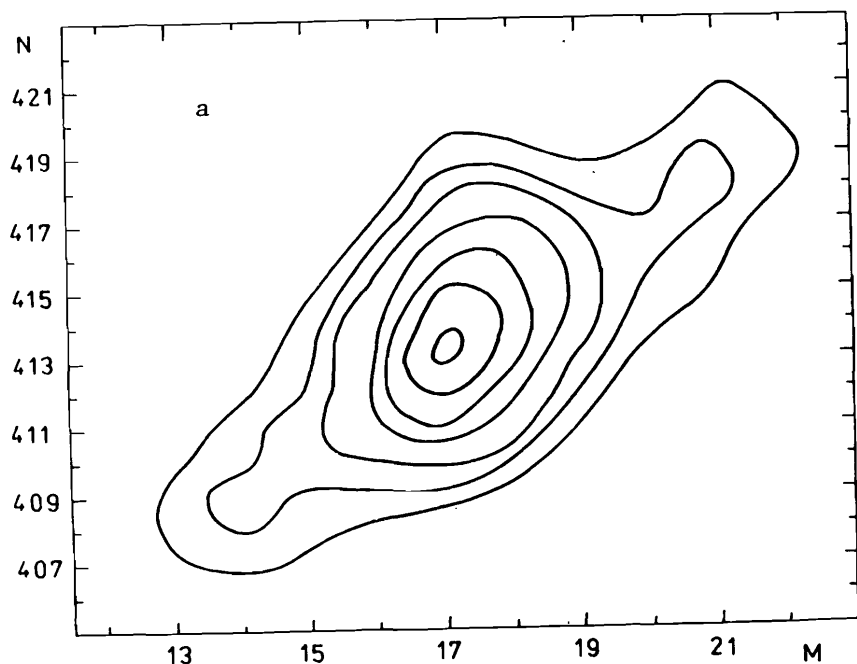
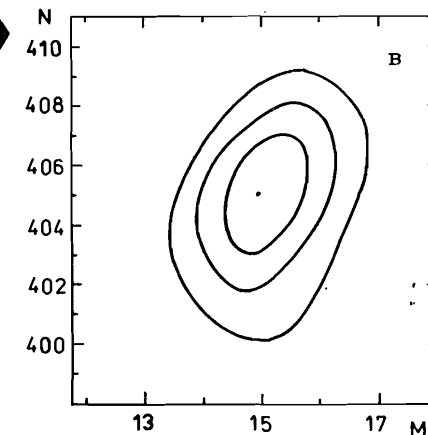


Рис. 3. Результат сканирования /интенсивность в зависимости от $\Delta 2\theta_0, \Delta T_0$ / дифракционного пика /100/ кристалла KD_2PO_4 , находящегося в сегнетоэлектрической фазе. Цифры по горизонтали - номер позиционной группы детектора, цифры слева - номер канала временного анализатора. а - Распределение, измеренное на ДН-2. б - После деконволюции. в - Функция разрешения. Уровни равной интенсивности соответствуют: а - (1; 1,5; 2; 3; 4; 5; 6)х100; б - (0,5; 1; 1,5; 3; 4; 5; 6)х700; в - (0,25; 0,50; 0,75).



$$I_k = \sum_i R_{ki} \sigma_i \quad /33/$$

Как показал Ричардсон,

$$\sigma_i^{(n+1)} = \sigma_i^{(n)} \sum_k R_{ki} \left[I_k / \sum_j R_{kj} \sigma_j^{(n)} \right], \quad /34/$$

где n - номер итерации.

На рис. 3а приведен результат двумерного сканирования $/\Delta 2\theta_0, \Delta T_0$ / обратного пространства в районе узла /100/, полученный на ДН-2 при измерении рассеяния на кристалле KD_2PO_4 , находящемся в сегнетоэлектрическом состоянии. В этом состоянии кристалл дает дифракционные пики, расщепленные на несколько компонент, но разрешение дифрактометра /рис. 3в/ недостаточно для их хорошего наблюдения, кажется, что это один широкий максимум. Результат применения процедуры деконволюции показан на рис. 3б /после 5000 итераций/. Теперь видны три узких, хорошо разрешенных пика.

Приведенный пример является веским аргументом в пользу применения деконволюции для решения многих задач нейтронной дифракции, а следовательно, и аргументом, показывающим необходимость точного знания функции разрешения дифрактометра.

Автор благодарен А.М.Балагурову за обсуждения и помощь в подготовке рукописи и Б.Н.Савенко за предоставление экспериментальных данных по кристаллу KD_2PO_4 .

ЛИТЕРАТУРА

1. Cooper M.J., Nathans R. - Acta Cryst., 1968, A24, p.481.
2. Stoica A.D. - Acta Cryst., 1975, A31, p.189.
3. Александров Ю.А., Шарапов Э.И., Чер Л. Дифракционные методы в нейтронной физике. М.: Энергоиздат, 1981.
4. Porovici M., Stoica A.D., Bajorek A. - Acta Cryst., 1975, A31, p.197.
5. Гундорин Н.А., Назаров В.М. ОИЯИ, РЗ-80-721, Дубна, 1980.
6. Мюле Э., Попа Н., Попеску М. ОИЯИ, РЗ-85-279, Дубна, 1985.
7. Cole I., Windsor C.G. - Nucl.Instr.& Meth., 1980, 171, p.107.
8. Балагуров А.М. и др. ОИЯИ, З-84-291, Дубна, 1984.
9. Балагуров А.М., Бескровный А.И., Попа Н. ОИЯИ, РЗ-84-765, Дубна, 1984.
10. Richardson W.H. - J.Opt.Soc.Am., 1972, 62, p.55.
11. Kennett T.J., Prestwich W.V., Robertson A. - Nucl.Instr.& Meth., 1978, 151, p.285.

Рукопись поступила в издательский отдел
27 апреля 1987 года.

Попа Н.

P14-87-293

Функция разрешения в нейтронной
дифрактометрии

На основе обобщения понятий, сформулированных первоначально для двухосевого нейтронного спектрометра, определена функция разрешения в нейтронной дифрактометрии. Критически проанализированы способы расчета этой функции, существующие в литературе. Конкретизация вида функции разрешения проведена для нейтронного дифрактометра по времени пролета ДН-2, действующего на импульсном реакторе ИБР-2.

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1987

Перевод О.С.Виноградовой

Popa N.

P14-87-293

Resolution Function in Neutron
Diffractometry

The resolution function in the neutron diffractometry is defined, generating the resolution formerly written for the double axis spectrometer. A polemical discussion is raised concerning an approach to this function existent in literature. The actual approach is concretized for the time-of-flight diffractometer DN-2 installed at the IBR-2 reactor.

The investigation has been performed at the Laboratory of Neutron Physics, JINR.

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1987