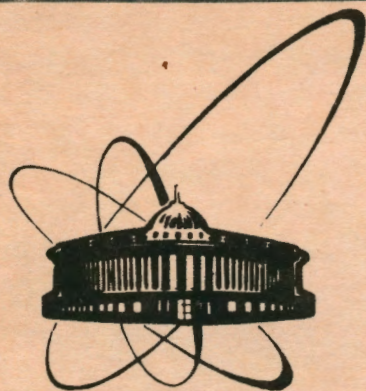


92-180



ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

18-92-180

Ю. В. Заневский, Д. Е. Донец, А. Б. Иванов,
С. А. Мовчан, А. И. Островной, С. П. Черненко,
Д. М. Хейкер*, М. Е. Андрианова*, А. Н. Попов*,
С. Н. Сульянов*

ДВУМЕРНЫЙ МНОГОПРОВОЛОЧНЫЙ ДЕТЕКТОР
ВЫСОКОГО РАЗРЕШЕНИЯ ДЛЯ РЕНТГЕНОВСКОГО
ДИФРАКТОМЕТРА

Направлено в журнал "Кристаллография"

*Институт кристаллографии РАН, г. Москва.

1992

1. ВВЕДЕНИЕ

В последние десять лет для рентгеноструктурных исследований все большее применение находят автоматические рентгеновские дифрактометры с двумерными детекторами [1,2]. В Лаборатории высоких энергий ОИЯИ (г. Дубна) совместно с Институтом кристаллографии АН СССР в 1980г. был создан двумерный детектор АРД-1 [3] на базе плоской многопроволочной пропорциональной камеры (МПК) высокого разрешения со съемом координатной информации с помощью быстрых линий задержки (ЛЗ). В 1981 г. и в 1984 г. в ИКАН, его СКБ, и ЛВЭ ОИЯИ на основе этой камеры, двукружного (μ, ω) и пятикружного $(\varphi, \chi, \omega, \gamma, \mu)$ гониометров и управляющей ЭВМ СМ-2 были созданы координатные дифрактометры КАРД-3 [4] и КАРД-4 [5]. С помощью этих дифрактометров были получены полные наборы интегральных интенсивностей от монокристаллов белков [6], вирусов [7], исследованы структурные превращения в полимерах [8], жидких кристаллах [9], за время в 50-100 раз меньшее, чем в обычных одноканальных дифрактометрах. Особенности конструкции детектора АРД-1 заключались в наличии плоского дрейфового промежутка между входным окном из алюминизированного майлара и первым катодом, что обеспечивало высокую эффективность регистрации излучения; в использовании

одинакового метода съема обеих координат (с катодных плоскостей с помощью быстрых ЛЗ) и в применении быстродействующей ($T_{\text{МВ}} \approx 0$) электроники регистрации; большом числе элементов пространственного разрешения (250x250) при размерах входного окна 320x320 мм².

Преимущества дифрактометров с плоской пропорциональной камерой с ЛЗ - относительные простота, надежность и невысокая стоимость. Недостаток - ухудшение пространственного разрешения при наклонном падении пучков. В новой МПК относительная толщина конверсионного слоя t/L (где L - размер входного окна) составляет 8/320 вместо 10/320, т.е. на 20% меньше. В том же отношении уменьшается размытие регистрируемого пучка из-за наклонного падения и соответственно увеличивается предельная величина периода решетки кристалла, доступная для исследования при фиксированном разрешении съемки. Эффективность регистрации CuK_{α} -излучения (8 кэВ) уменьшается всего на 5% и составляет 65%. Неоднородность эффективности детектора по площади после введения поправки равна 0.6%.

Модернизация детектора АРД-1 проводилась в рамках дальнейшего развития в ЛВЭ ОИЯИ методики детекторов изображения [10 ÷ 12]. Шаг намотки анодных проволочек в новом детекторе согласован с шагом дискретизации поперечной координаты, благодаря чему неоднородность ширины каналов (после регулировки частоты и введения поправок) уменьшается и составляет (0.5 ÷ 0.7)%. Интегральная нелинейность после введения поправки составляет 0.25 ÷ 0.4мм. В АРД-1М управляющая двухпроцессорная ЭВМ СМ-2 заменена на 1ВМ РС/АТ-386 и блок гистограммируемой памяти (64К 16 - разрядных слов), выполненной в стандарте КАМАК. При этом в 1,3 раза увеличивается предельное быстродействие детектора, до 330000 событий в секунду. Полутонный телевизионный монитор с аналоговой памятью заменен дисплеем ПЭВМ (256x256 точек, 16 цветов). Улучшение конструктивных и схемотехнических параметров детектора АРД-1М сочетается с введением программных поправок, полученных при использовании

рентгеновской трубки в гониометре с наклоном и поворотом первичного пучка. Все это не только позволяет улучшить основные характеристики детектора, но и расширить область применения координатного дифрактометра.

2. КОНСТРУКЦИЯ ДЕТЕКТОРА

МПК установки АРД-1М представляет собой трехэлектродную камеру с двумя плоскими дрейфовыми промежутками. Чувствительная площадь детектора - 320x320мм². Шаг анодных проволочек из вольфрам-рениевой золоченой проволоки - $1,3^{+0,005}$ мм, $\varnothing = 15$ мкм. Шаг катодных проволочек из золоченой вольфрамовой проволоки - $0,5^{+0,005}$ мм, $\varnothing = 20$ мкм. Последние объединены в группы ("стрипы") по 4 проволоки с шагом 2 мм. Расстояние между анодной и двумя катодными плоскостями - по 3 мм. Напряжение на аноде составляет +3,2 кВ, величина плато - 200 В. Передний дрейфовый промежуток толщиной 2 мм образован входным окном из майлара толщиной 50 мкм, покрытого 1 мкм слоем алюминия, и первой катодной плоскостью. На этот дрейфовый промежуток подается напряжение (-400)В, что увеличивает толщину конверсионного слоя до 8 мм. На задний дрейфовый промежуток толщиной 4 мм, образованный второй катодной плоскостью и фольгированным стеклотекстолитом, подается напряжение +400 В, и он, соответственно, не участвует в конверсии квантов. На катодных плоскостях установлены электромагнитные ЛЗ с рабочей длиной 320 мм и погонной задержкой ~1,5 нс/мм. Детектор продувается газовой смесью $\text{Xe} + 20\% \text{CH}_4 + 3\% \text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$. Минимальная скорость продува - 10 см³/мин.

3. ЭЛЕКТРОННАЯ РЕГИСТРИРУЮЩАЯ АППАРАТУРА

Используемые электронные блоки регистрации, накопления и сопряжения с ЭВМ разработаны в ЛВЭ ОИЯИ для создания одно- и двумерных детекторов. Электронная аппаратура детектора АРД-1М выполнена в стандарте КАМАК и размещена в одном кейсте. Предусилители размещены непосредственно на детекторе. Съем сигналов производится с обеих концов ЛЗ, имеющих

гальваническую связь с соответствующими катодными плоскостями. Усиленные предусилителями и усилителями сигналы поступают на дискриминаторы точной временной привязки. Собственное разрешение этой электроники считывания - 1,4 нс (ПШПВ).

Кодирование временных интервалов между сигналами с разных концов ЛЗ производится время-цифровыми преобразователями (ВЦП-306), выполненными по методу интерполяции периода основной тактовой частоты. Базовый генератор стабилизирован кварцевым резонатором и имеет частоту $F = 125$ МГц. Кроме этого, ВЦП имеет перестраиваемый в пределах $F \pm 20\%$ генератор с параметрической стабилизацией. Путем регулировки опорной частоты шаг дискретизации ($\cong 4$ нс) в направлении, поперечном анодным проволочкам, установлен равным точно шагу их намотки (1,3 мм). В результате получена однородность ширины каналов такая же, как вдоль анодных проволочек (по всей площади детектора). Благодаря наличию в ВЦП двух интерполяторов СТАРТ и СТОП, а также схемы статистического выравнивания ширины каналов, перестройка интерполяторов после изменения опорной частоты не требовалась. ВЦП содержит также схемы отбора полезных событий и разравнивающую память (3 регистра), регулируемую поток событий перед занесением их в буферную память. Собственное мертвое время ВЦП - 50нс. Данные с различных узлов ВЦП обрабатываются встроенным быстрым арифметическим процессором и на выходе блока присутствует обычный двоичный код. Двумерная дифракционная картина накапливается в гистограммируемой памяти (БП64-16) в виде матрицы $256 \times 256 \times 2^{16}$ чисел. Время инкрементации ~ 3 мкс. Дифракционная картина из памяти считывается массивом по шинам КАМАК и передается в память ЭВМ по каналу прямого доступа за время 0,25 с.

Электронная аппаратура сопряжения с IBM PC/AT-386 состоит из контроллера крейта КАМАК и карты адаптера, устанавливаемой на магистраль ЭВМ. Скорость передачи данных в режиме канала прямого доступа ≈ 4 мкс/16-разрядное слово.

Отбор анодных сигналов по амплитуде осуществляется при помощи дифференциального дискриминатора, задание времени экспозиции выполняется с помощью программируемого таймера. Для оперативного визуального контроля за работой установки используется 4-х каналный десятичный счетчик импульсов с индикацией.

4. ПРОГРАММНОЕ ОБЕСПЕЧЕНИЕ

Для проведения структурных исследований с помощью двумерного детектора и определения основных его характеристик создан комплекс программ, который выполняет следующие функции.

1) Управление аппаратурой КАМАК.

Блоки КАМАК программно можно настроить на требуемую конфигурацию при помощи соответствующей процедуры из предлагаемого списка. К таким программно-управляемым блокам относятся: блок гистограммируемой памяти, счетчик анодных сигналов и программируемый таймер. Кроме того, данная процедура задает нужный режим работы контроллера крейта и канала КПЦП.

2) Получение дифракционной картины.

Процедура включает режим накопления данных в памяти за время t_{exp} (от секунды до часов). Мода работы (инкрементация) БП64-16 и время t_{exp} задаются предварительно.

3) Передача дифракционной картины в память (ОЗУ) ЭВМ.

4) Запись/чтение накопленной картины на/с твердый диск.

5) Вывод двумерной гистограммы (картины) на дисплей. Выводятся 256×256 точек в 16 цветах, соответствующих интенсивностям, зарегистрированным в каналах. Гистограмму можно выводить в двух режимах: 1) с заданным нижним и верхним порогом интенсивности; 2) с автоматическим нормированием по минимуму и максимуму интенсивностей в каналах. В автоматическом режиме время считывания из памяти и вывода на экран составляет 7 с.

6) Выбор и представление одномерных сечений двумерной гистограммы либо по номеру канала (на оси X или Z), либо по

брегговскому углу θ . Угол наклона, ширина и расположение сечений произвольны.

7) Статистическая обработка выбранных сечений.

8) Вывод на дисплей содержимого каналов (в виде матрицы чисел), "центра тяжести" и суммарной интенсивности в заданной зоне МПК; размер зоны до 15x15 каналов.

5. ОСНОВНЫЕ ПАРАМЕТРЫ И ВВОД ПОПРАВКИ

5.1. Пространственное разрешение

Пространственное разрешение измеряли, перемещая камеру с шагом 0,2мм перпендикулярно направлению регистрируемого узкого пучка. Размер пучка на входном окне камеры (проекция) не превышал 0,15 мм (ПШПВ). Зависимость регистрируемой интенсивности в канале от величины перемещения для центральной части камеры представлена на рис. 1 и 2. Ширина канала по оси z на уровне половины максимума составляет 1,3 мм, на уровне 5% максимума - 2,2 мм. Ширина канала по оси x на уровне половины максимума составляет 1,3 мм, на уровне 5% максимума - 2,4 мм. На рис.3 приведены "кривые пространственного разрешения" по оси z при наклонном падении пучка, перпендикулярного оси x, под углом $\mu = 20^\circ$. Ширина кривой на уровне половины максимума составляет 2,75 мм, на уровне 5% максимума - 4,75 мм (3,65 канала) вместо 6,0мм для АРД-1. Таким образом, на краю МПК ($\alpha = 20^\circ$), удаленной на 440 мм от центра гониометра, будут отдельно зарегистрированы отражения на расстоянии 5,2мм (4,0 канала). При регистрации отражения в 4x4 каналах максимальный период решетки

$$a_{\max} = R\lambda / (\cos\alpha \cdot 5.2) = 150 \text{ \AA}$$

Для детектора АРД-1 при регистрации интенсивностей в 5x5 каналах

$$a_{\max} = 116 \text{ \AA} \quad (14)$$

При повернутой на 20° МПК и расстоянии кристалл-камера 440мм разрешение съемки составляет 2,3 \AA.

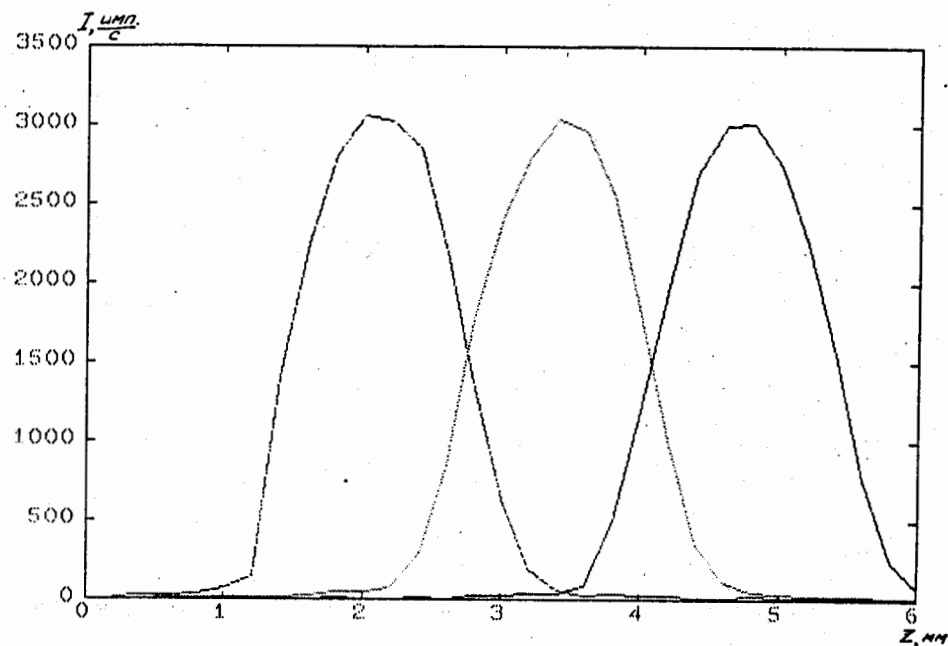


Рис. 1. Кривые пространственного разрешения при нормальном падении лучей по оси z.

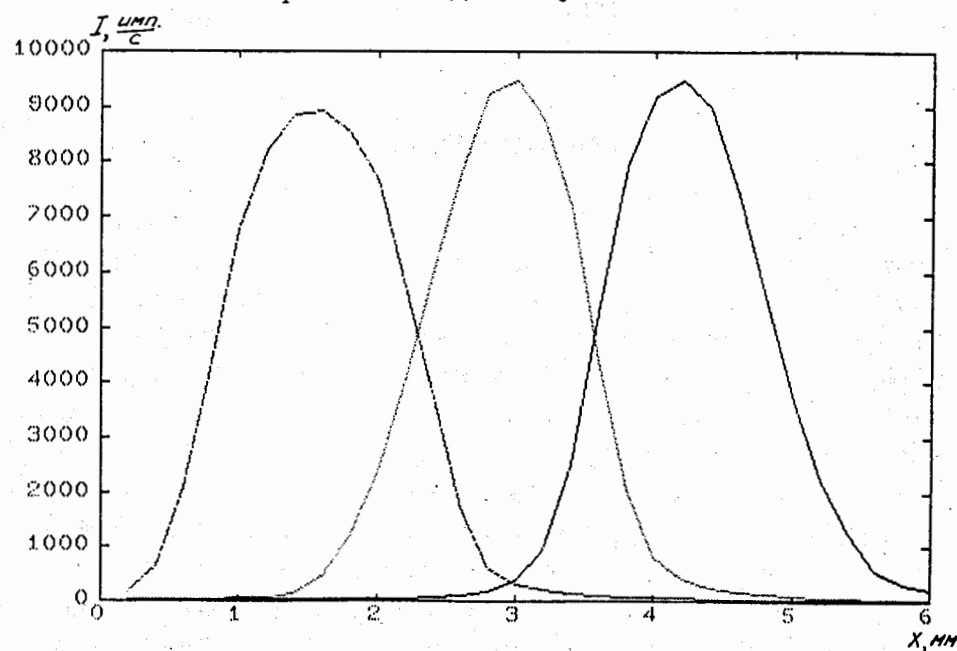


Рис. 2. Кривые пространственного разрешения при нормальном падении лучей по оси x.

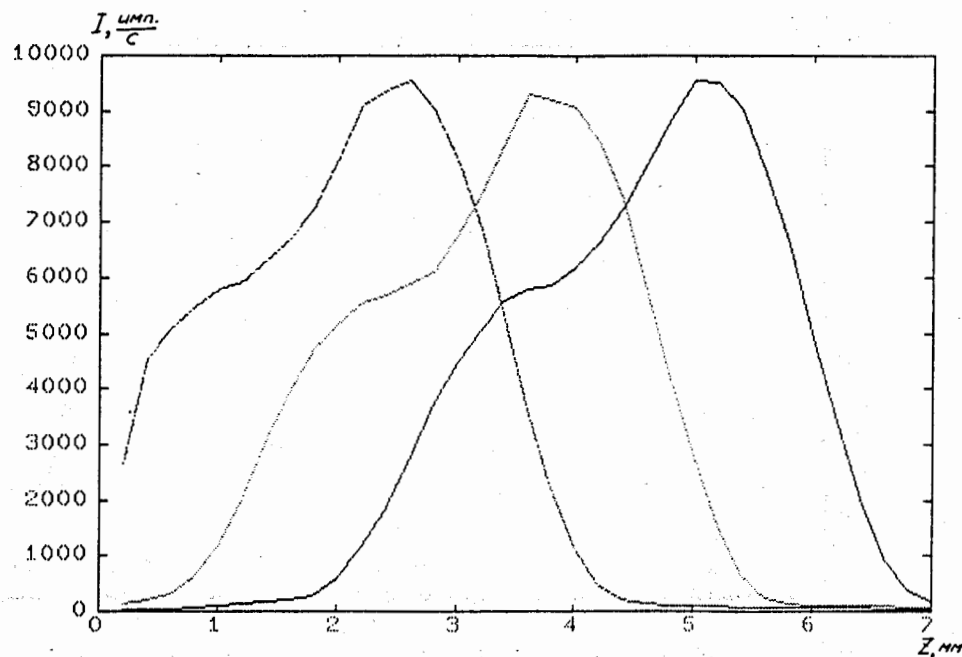


Рис. 3. Кривые пространственного разрешения при падении лучей под углом $\nu = 20^\circ$ по оси Z .

5.2. НЕОДНОРОДНОСТЬ ЭФФЕКТИВНОСТИ РЕГИСТРАЦИИ ПО ПЛОЩАДИ МПК

При падении рентгеновского пучка на поверхность детектора регистрируемая интенсивность изменяется в соответствии с длиной пути лучей в рабочей газовой смеси (зависящей от угла падения и толщины рабочего объема в данной точке) и длиной пути пучка в воздухе, определяемом геометрией съемки. Если перемещать (см. рис. 4) рентгеновский пучок (размером 7×7 каналов) по всей камере, поворачивая его с малым шагом вокруг осей μ и γ , то регистрируемая интенсивность плавно убывает от центра к краям камеры. Максимальное падение составляет 14%. Эту зависимость можно представить в виде гладкой поверхности — двумерной функции координат x и z . Коэффициенты, характеризующие неоднородность, равны отношению измеренных интенсивностей к максимуму функции [13].

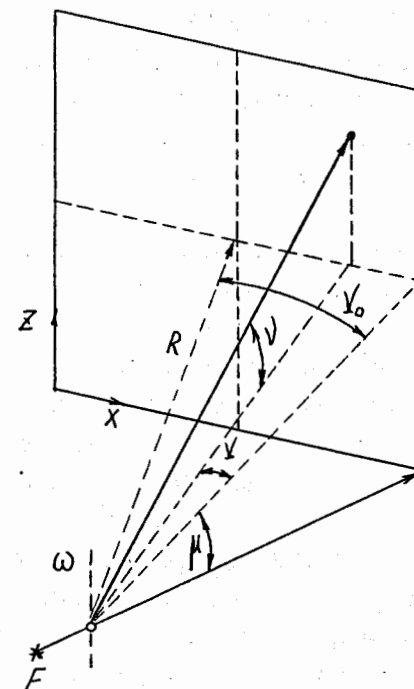


Рис. 4. Схема съемки в координатном дифрактометре.

Для вычисления поправочных (обратных) коэффициентов была разработана следующая методика. Перед началом работы снимают три зависимости интенсивности от координаты z (3 сечения): для $x=30$, $x=128$ и $x=220$, которые интерполируют квадратичными параболой. Далее проводят нормировку путем деления всех коэффициентов парабол на максимальное значение центральной параболы. Через три точки этих парабол, имеющие координату z такую же, как в точке, в которой вводится поправка, проводят квадратичную параболу. Тогда поправочный коэффициент равен обратному значению этой параболы в точке x . После введения поправок среднеквадратичное отклонение по всей камере составило 0,6%. Максимальное отклонение интенсивности после введения поправки для пучка, измеренного возле края камеры, составило немногим более 1%. Время расчета поправки в одной точке $\approx 4 \times 10^{-4}$ с.

5.3. НЕОДНОРОДНОСТЬ ШИРИНЫ КАНАЛОВ (ДИФФЕРЕНЦИАЛЬНАЯ НЕЛИНЕЙНОСТЬ)

Неоднородность ширины каналов в основном определяется неравномерностью ЛЗ, а по оси Z — также неоднородностью шага анодных нитей и его несогласованностью с шагом дискретизации ВПП.

Если облучить МПК так, чтобы интенсивность плавно изменялась по площади камеры, то полученные после суммирования данных по строкам и столбцам зависимости можно описать гладкими аналитическими функциями и вычислить коэффициенты, равные отношению содержимого каналов к значениям этих функций в соответствующих точках. При таком подходе измеряется практически только дифференциальная нелинейность [13].

Такую "засветку" МПК проводили, регистрируя дифракционную картину, возникающую при облучении стекла. Среднеквадратичное отклонение по оси Z составило $\varepsilon_z = 1,5\%$; по оси x — $\varepsilon_x = 1,2\%$. После введения поправок — $\varepsilon_z = 0,7\%$, $\varepsilon_x = 0,5\%$. Время, требуемое для введения поправок по всей площади детектора, составляет 2 с.

5.4. ГЕОМЕТРИЧЕСКАЯ (ИНТЕГРАЛЬНАЯ) НЕЛИНЕЙНОСТЬ

Под геометрической нелинейностью детектора понимают отклонения измеренных "центров тяжести" дифракционных пятен от координат, рассчитанных по углам ν и γ , под которыми направлен пучок. Геометрическая нелинейность камеры в основном связана с неоднородностью ЛЗ и краевыми эффектами [15].

Для уточнения координат рефлексов разработана методика введения поправок. При этом сделано предположение, что геометрическая нелинейность не меняется со временем и отсутствует взаимная зависимость нелинейностей по осям x и Z . Зависимость от расстояния кристалл — детектор допускается.

Для определения поправок проводили следующие процедуры. Перемещая пучок, который при нормальном падении умещался в квадрате 7×7 каналов, при $\mu = 0$ снимали сечение по x с шагом $\Delta y = 1^0$ и при $\gamma = 0$ — сечение по Z с шагом $\Delta \mu = 1^0$. Если R_x и R_z

— расстояние до камеры, выраженное в числе каналов по x и по Z , то должны выполняться соотношения:

$$x_i = x_0 + R_x \cdot \operatorname{tg}(\gamma_i), \quad (1)$$

$$z_i = z_0 + R_z \cdot \operatorname{tg}(\mu_i). \quad (2)$$

Для обоих наборов экспериментальных точек проводили интерполяцию прямыми. Максимальное отклонение по оси Z — не более 1 канала, по оси x — не более 1,4 канала. Значения в точках 20, 30, 40, ..., 240 (крайние 15 каналов при измерениях обычно не рассматривают) были протабулированы. При вычислении центра тяжести рефлекса добавляется поправка, полученная путем линейной интерполяции по двум точкам, между которыми попадает значение координаты Z или x .

Для проверки эффективности введения поправок при новой установке камеры сначала определяли R_x и R_z , решая уравнения (1) и (2) методом интерполяции прямыми. Далее при перемещении пучка по диагоналям камеры (максимально "неблагоприятный" для действия поправок вариант) для этих R_x и R_z , уже с учетом ранее полученных поправок, снова проводили интерполяцию. Среднеквадратичные отклонения по Z при интерполяции до введения поправок составили $\Delta_1 = 0,5$, $\Delta_2 = 0,4$ канала. Соответственно, после введения поправок — $\Delta_1^{\text{II}} = 0,1$, $\Delta_2^{\text{II}} = 0,2$ канала. Среднеквадратичные отклонения по оси x до введения поправок составили $\Delta_1 = 0,4$, $\Delta_2 = 0,5$ канала. После введения поправок — $\Delta_1^{\text{II}} = 0,3$, $\Delta_2^{\text{II}} = 0,3$ канала. Время введения поправок в одной точке составляет около 10^{-4} с.

5.5. ПОТЕРИ СЧЕТА ПРИ ОБЛУЧЕНИИ ВСЕЙ ПЛОЩАДИ МПК.

Потери счета в исследуемом детекторе определяются временными характеристиками ЛЗ. При передаче данных по инкрементному каналу потери счета практически отсутствуют. Потери счета $\delta(n, \tau) = (n - u)/n$, обусловленные мертвым временем τ , можно определить по формуле [13]:

$$\delta(n, \tau) = 1 - \exp(-n\tau) / (1 + n\tau). \quad (3)$$

Здесь n — интенсивность, которая была бы зарегистрирована без потерь, u — измеренная интенсивность. Значение n определяли по анодному сигналу с корректировкой по методу "одной фольги".

Значение τ находили, определяя по МНК минимум функции

$$f(\tau) = \sum_{i=1}^N (\delta(n_i, \tau) - (1 - u_i/n_i))^2,$$

где N - число измерений.

Получено значение $\tau = 1,11 \pm 0,01$ мкс. Отклонение экспериментальных точек от зависимости (3) не превышало ошибок статистики счета вплоть до загрузки 2×10^5 имп./с, что соответствует потерям счета 37%. Для двойного комплекта ВЦП $\tau = 0,56$ мкс и потери счета для предельной загрузки 330кГц составят 30% [15].

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Относительно малая толщина конверсионного слоя, высокое пространственное разрешение, большое число каналов (250x250), высокие однородность эффективности регистрации и ширины

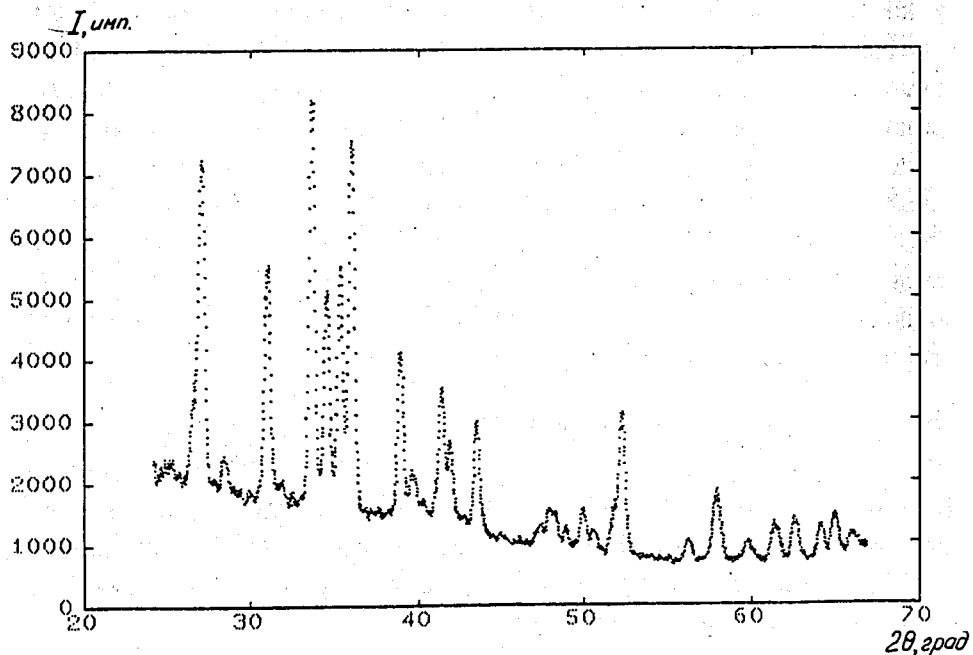


Рис. 5. Дифрактограмма Si_3N_4 , полученная при расчете по всей площади детектора.

каналов, геометрическая линейность, высокое быстродействие, простота корректировки указанных параметров и скорости счета, использование ЭВМ IBM PC/AT-386 делают описанный детектор удобным для решения самого широкого спектра задач рентгеноструктурного анализа. В качестве примера использования детектора для исследования поликристаллов на рис. 5 приведена дифрактограмма Si_3N_4 , полученная за 1 минуту экспозиции.

В таблице 1 приведены основные параметры детектора.

Таблица 1

Основные параметры двумерного детектора АРД-1М

1. Эффективный объем детектора, мм ³	320x320x8
2. Пространственное разрешение по осям x и z, мм	1,3
3. Число элементов пространственного разрешения	246x246
4. Число каналов в гистограммной памяти	256x256
5. Эффективность регистрации для SiK_{α} -излучения, %	65
6. Неоднородность эффективности после введения поправки, %	0,6
7. Неоднородность ширины каналов (среднеквадратичное отклонение)	
до введения поправки, %	по x 1,2
	по z 1,5
после введения поправки, %	по x 0,5
	по z 0,7
8. Геометрическая нелинейность (среднеквадратичное отклонение), после введения поправки, мм	по x 0,4
	по z 0,25
9. Предельная скорость счета при потерях $\leq 30\%$, имп/с (в случае двойного комплекта ВЦП)	$3,3 \times 10^5$
10. Энергетическое разрешение (SiK_{α}), ПШПВ, %	30
11. Собственный фон детектора, имп/с	40
12. Расход газовой смеси $He + 20\% CH_4 + 3\% C_2H_5OH$, см ³ /мин	10

Список литературы

1. Xuong N.H. et al//Acta Cryst., 1978, A34, p.289.
2. Arndt V.W., Gilmore D.I. //J.Appl.Cryst.,1979, v.12, p.1.
3. Anisimov Yu.S. et al//Nuclear Instrum. and Meth. 1981, 179, p. 503.
4. Andrianova M.E. et al//J.Appl.Cryst.,1982, v.15, p.626.
5. Андрианова М.Е., Попов А.Н., Хейкер Д.М. и др.//Кристаллография. 1988. т.33, № 6, с.1509.
Авт. св.№ 1004834, Бюллетень изобретений, 1983, № 10.
6. Андрианова М.Е., Попов А.Н., Хейкер Д.М. и др.//Докл. АН СССР, 1986, т.288. № 1, с. 122.
7. Моргунова Е.Ю. и др. //Молекулярная генетика, микробиология и вирусология, 1989, № 3, с.29.
8. Chalych A.E., Popova Ye.D., Popov A.N., Kheiker D.M. //Polymer Bull., 1986, v.16, p.215.
9. Новомлинский Л.А., Шмытько И.М., Шехтман В.Ш. и др.//Кристаллография, 1987, т.32, № 4, с.911.
10. Zanevsky Yu. V. et al. // JINR, D13-88-602, Dubna, 1988.
11. Zanevsky Yu. V. et al// Nuclear Instr. and Meth. Ph. Res. A301 (1991), p. 362-365.
12. Zanevsky Yu. V. et al.// Physica Medica. vol.V111, N.1, Jan. - March, 1992.
13. Попов А.Н., Сульянов С.Н., Хейкер Д.М. "Коррекция измерений интенсивности и координат в дифрактометре с двумерным детектором". //Кристаллография, 1992, т.37, №4.
14. Заневский Ю.В., Попов А.Н., Хейкер Д.М., Черненко С.П. Препринт ОИЯИ, 18-83-109, Дубна, 1983, с.14.
15. Заневский Ю.В., Попов А.Н., Хейкер Д.М., Черненко С.П. Препринт ОИЯИ, P13-83-121, Дубна, 1983, с.12.

Рукопись поступила в издательский отдел
20 июня 1992 года.