

М-193

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна



РЗ - 3377

ЛАБОРАТОРИЯ НЕЙТРОННОЙ ФИЗИКИ

Э. Малишевски, Т.А. Мачехина, Пак Гван О,
С. Шафран

МНОГОКРАТНОЕ БРЭГГОВСКОЕ РАССЕЯНИЕ
В МОНОКРИСТАЛЛАХ, НАБЛЮДАЕМОЕ МЕТОДОМ
ВРЕМЕНИ ПРОЛЕТА НЕЙТРОНОВ

1967.

РЗ - 3377

5202/3 мр.

Э. Малишевски, Т.А. Мачехина, Пак Гван О,
С. Шафран

МНОГОКРАТНОЕ БРЭГГОВСКОЕ РАССЕЯНИЕ
В МОНОКРИСТАЛЛАХ, НАБЛЮДАЕМОЕ МЕТОДОМ
ВРЕМЕНИ ПРОЛЕТА НЕЙТРОНОВ

Объединенный институт
ядерных исследований
БИБЛИОТЕКА

В в е д е н и е

При рассеянии нейтронов или рентгеновских лучей в монокристаллах при некоторых определенных углах рассеяния и ориентациях образца могут возникать ситуации, при которых на сфере отражения находится два или более узлов обратной решетки, т.е. нейтроны данной энергии отражаются в соответствии с условием Вульфа-Брэгга от комбинации нескольких типов плоскостей. Такое рассеяние называется многократным брэгговским рассеянием.

На рис. 1 в пространстве обратной решетки представлена схема двойного брэгговского отражения. Помимо основного отражения $\vec{k}_0 \rightarrow \vec{k}_1$ от плоскости \vec{r}_1 , осуществляются отражения от плоскостей \vec{r}_1 и $(\vec{r}_1 - \vec{r}_1')$, а именно $\vec{k}_0 \rightarrow \vec{k}_1$, $\vec{k}_1 \rightarrow \vec{k}_1$ и $\vec{k}_1 \rightarrow \vec{k}_1$. В зависимости от относительной вероятности перечисленных процессов происходит усиление или ослабление пучка в направлении \vec{k}_1 . Как нетрудно видеть, если даже структурный фактор рассеяния $\vec{k}_0 \rightarrow \vec{k}_1$ плоскостью \vec{r}_1 равен нулю, может возникнуть рассеяние нейтронов в направлении \vec{k}_1 за счёт двойного отражения $\vec{k}_0 \rightarrow \vec{k}_1 \rightarrow \vec{k}_1$ от плоскостей, сумма индексов которых равна индексам плоскости \vec{r}_1 . Последнее явление носит название эффекта Ренингера /1/.

В последнее время появился ряд работ, посвященных экспериментальному и теоретическому исследованию многократного рассеяния /2-6/. Оказывается, этот эффект проявляется значительно чаще, чем предполагалось ранее, и учёт его может существенно изменить интерпретацию некоторых результатов, получаемых при исследовании монокристаллов. Поправка на экстинкцию,

например, может измениться в некоторых случаях до нескольких десятков процентов за счёт многократного рассеяния^{/4/}. Учёт экстинкции при этом, конечно, существенно усложняется.

Как выяснилось в наших измерениях, при работе с монокристаллическим образцом по методу времени пролета с "белым" пучком нейтронов легко осуществить многократное рассеяние и поэтому оно может создать немалые трудности при исследовании монокристаллов. В этой работе представлены некоторые результаты проявления многократного отражения и дана их интерпретация.

2. Постановка опытов и результаты

На рис. 2 показана принципиальная схема опытов. В качестве источника нейтронов использовался реактор ИБР (1)^{/7/}. Нейтроны после замедления в слое воды (2) в 40 мм и пролета расстояния L_1 рассеивались на монокристалле (4), установленном в брэгговское положение, и регистрировались сцинтиляционным детектором (6,7). В прямом и рассеянном пучках помещались щелевые коллиматоры (3,5) с расходимостью α . Вертикальная расходимость падающего и рассеянного пучков составляла $\sim 1^\circ$. Импульсы с детектора поступали на многоканальный временной анализатор, с помощью которого получалось распределение нейтронов по времени пролета, а, следовательно, и по длине волны.

Отметим, что представленные здесь результаты получены без какой-либо специально выбранной геометрии опыта, при произвольно взятых расстояниях и углах рассеяния. В наших условиях случаи, когда обсуждаемые ниже эффекты не проявлялись, были довольно редкими.

На рис. 3 представлены нейтронограммы, полученные в одинаковых геометрических условиях с монокристаллом цинка (высотой 70 мм, диаметром 50 мм) при комнатной температуре и температуре жидкого азота. Кристалл был ориентирован в брэгговское положение относительно плоскости (0002), плоскость ($\bar{2}110$) была наклонена приблизительно на $2^\circ 20'$ относительно плоскости рассеяния. При этом угол рассеяния 2θ составлял $69^\circ 20'$, $L_1 = 18,05$ м, $L_2 = 5,75$ м, $\alpha_1 = 20^\circ$, $\alpha_2 = 1^\circ$. Помимо основных пиков первого, второго и т.д. порядков от плоскости (0002) появились пики вблизи положений "запрещенных" отражений (0003), (0005)

и т.д., составляющие в некоторых случаях до 10% величины ближайших пиков с чётными индексами.

На рис. 4 показана нейтронограмма, полученная с монокристаллом алюминия, ориентированным относительно (002); плоскость (110) была параллельна плоскости рассеяния. В этом случае $2\theta = 36^{\circ}50'$, $L_1 = 17,05$ м, $L_2 = 1,85$ м, $\alpha_1 = 20'$, $\alpha_2 = 20'$; образец имел аналогичную форму и размеры. Как видно, на пике (002) появилось глубокое "выедание", которое привело к резкому спаду заднего фронта отражения.

На рис. 5 представлена нейтронограмма с того же образца алюминия, полученная при значениях $2\theta = 123^{\circ}$, $L_1 = 17,17$ м, $L_2 = 1,60$ м, $\alpha_2 = 20'$; коллиматор в падающем пучке отсутствовал, и горизонтальная расходимость этого пучка, как и вертикальная, составляла около 1° . При этом поверхность замедлителя составляла угол 60° с падающим пучком. Кристалл был ориентирован в положение брэгговского отражения от плоскости (002), плоскость (110) была приблизительно параллельна плоскости рассеяния.

На месте однократных рассеяний (004) и (006) появилось по несколько пиков меньшей интенсивности, из которых первые два имеют меньшую ширину, чем должно быть при однократном рассеянии. Кроме того, пик (008) имеет "неправильную" для однократного рассеяния форму спада.

Здесь приведены лишь некоторые, наиболее типичные случаи дифракции "белого" пучка нейтронов на монокристаллах. Некоторое изменение ориентации образца приводило чаще всего к постепенному изменению относительного положения и интенсивности аномалий с постепенным исчезновением одних и появлением новых.

3. Интерпретация результатов

Несложный анализ экспериментов в пространстве обратной решетки обычно позволяет в каждом случае определить плоскости, ответственные за появление аномалий в спектрах.

На рис. 6 показана диаграмма обратной решетки для плоскости ($\bar{2}110$) цинка, соответствующая нейтронограмме, представленной на рис. 3, со следами пересечения этой плоскости сферами отражения, проходящими через узлы (0002), (0003), (0004) и (0005). В действительности, сферы отражения, а,

следовательно, и их сечения плоскостью ($\bar{2}110$) размазаны из-за конечной величины коллимации падающего и рассеянного пучка и мозаичности кристалла.

На рисунке схематически показано уменьшение длины волны (на $0,025 \text{ \AA}$) рассеиваемых нейтронов, а, следовательно и соответствующие увеличения диаметра сферы отражения, проходящей через (0003), вследствие уменьшения угла падения на $0,5^\circ$.

Для точной идентификации аномальных пиков для цинка остается лишь начертить, воспользовавшись диаграммой, представленной на рис. 6, все сечения размытой сферы отражения плоскостями (000 l) вместе с попадающими в эти сечения узлами обратной решетки. При этом следует исходить из фактической в каждом случае коллимации пучков. На рис. 7а и 7б представлены такие сечения для сферы отражения, проходящей через узел (0003) и (0005); из рис. 7а видно, что пики вблизи "запрещенного" отражения (0003) обусловлены первичным отражением от плоскостей ($02\bar{2}0$), ($02\bar{2}3$), ($\bar{1}100$), ($\bar{1}103$) с последующим вторичным отражением от плоскостей ($0\bar{2}23$), ($0\bar{2}20$), ($\bar{1}\bar{1}03$), ($\bar{1}\bar{1}00$) соответственно. Остальные узлы, попадающие на сферу отражения, вклада в рассеяние в направлении \vec{k}_1 не дают, так как в этих случаях структурные факторы равны нулю для плоскости \vec{r}_1 или $(\vec{r}_1 - \vec{r}_1)$.

Подобный этому анализ позволил идентифицировать пик в области (0005) для цинка (рис.3) и "выедание" на пике (002) для алюминия (рис.4). Принципиальное различие между результатами для цинка и для алюминия заключается в том, что в первом случае однократное рассеяние для (000 l) с нечетным l запрещено, и мы имеем, по существу, эффект Ренингера, а во втором случае для какого-то определенного узкого интервала углов падения (в пределах коллимации) суммарная вероятность брэгговского отражения от плоскостей ($\bar{3}51$), ($\bar{5}31$), ($\bar{2}24$) и ($\bar{2}2\bar{2}$) значительно больше, чем от (002). Такая форма пика с "выеданием" была предусмотрена в работе Муна и Шелла^{16/}.

Детального анализа спектра, представленного на рис. 5, не производилось, но сама форма спектра дает основания полагать, что в этом случае проявляются как эффект "выедания", так и появление дополнительных пиков из-за многократного рассеяния. По-видимому, произошло некоторое увеличение числа аномалий, связанное с мозаичностью кристалла и с увеличением

расходимости падающего пучка, а перекося замедлителя, приводящий к различию пролетных расстояний для нейтронов, падающих на образец под разными углами (см. рис. 2), позволил лучше разделить между собой аномалии.

4. Обсуждение

Следует обратить внимание на то, что при работе с падающим пучком, имеющим "белый" спектр, интервал длин волн нейтронов, участвующих в двойном, тройном и т.д. отражении и попадающих в детектор, вообще говоря, меньше, чем при однократном рассеянии. При двукратном отражении рассеивают только мозаичные блоки, соответственно наклоненные. Поэтому ширина "выеданий" и добавочных пиков в спектре по времени пролета, как это видно и из рисунков 3,4,5, меньше ширины основных пиков.

Мы убедились в том, что многократное брегговское отражение может существенно усложнять некоторые работы на монокристаллах, например, исследование всякого рода сверхструктур. По-видимому, многократное отражение может оказаться вредным при получении монохроматических пучков отражением от монокристалла. Так как метод времени пролета, как показал Б.Бурас^{/8,9,10/}, находит широкое применение в исследовании монокристаллов, следует принимать специальные меры, чтобы избежать многократных отражений или создавать условия, при которых они в наименьшей степени сказываются на результатах.

В заключение добавим, что многократное отражение, возможно, окажется полезным в некоторых случаях. Например, можно ориентировать монохроматор так, чтобы происходило "выедание" хвоста получаемого пика благодаря преобладанию рассеяния нейтронов на другой плоскости. При этом получается узкий (по времени) монохроматический пучок, обеспечивающий лучшее разрешение. В сущности, такой случай представлен на рис. 4. В принципе возможно подобрать такую геометрию рассеяния, чтобы устранить или существенно ослабить пик, остающийся и справа от "выедания".

Авторы благодарят профессора Б.Бураса за полезные обсуждения и профессора Ф.Л.Шапиро за большое внимание.

ЛИТЕРАТУРА

1. M.Reninger, Z.Phys. 106, 141 (1937).
2. M.Reninger, Acta Cryst. 8, 606 (1955).
3. H.Cole et al. Acta Cryst. 15, 138 (1962).
4. W.H.Zachariasen, Acta Cryst. 18, 705 (1965).
5. R.D.Burbank, Acta Cryst. 19, 957 (1965).
6. R.Moon, C.Shull, Acta Cryst. 17, 805 (1964).
7. Г.Е.Блохин и др. Атомная энергия 10, 437 (1961).
8. B.Buras et al., Phys. Stat.Sol. 11, 567 (1965).
9. B.Buras, Panel on Research Applications of Repetitively Pulsed ,
Reactors and Boosters, Dubna, IAEA 1966, paper N 2 (in print).
10. B.Buras, A.Holas, VII Int.Congr. on Cryst., Moscow 1966, paper 13-10.

Рукопись поступила в издательский отдел
8 июня 1967 года .

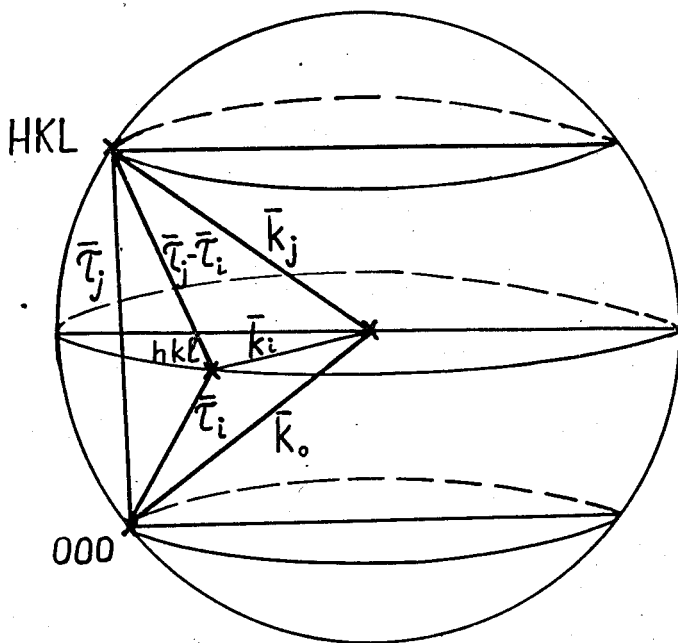


Рис. 1 Сфера Эвальда в обратной решетке, дающая геометрическое представление одновременных брэгговских отражений от точек hkl и HKL .

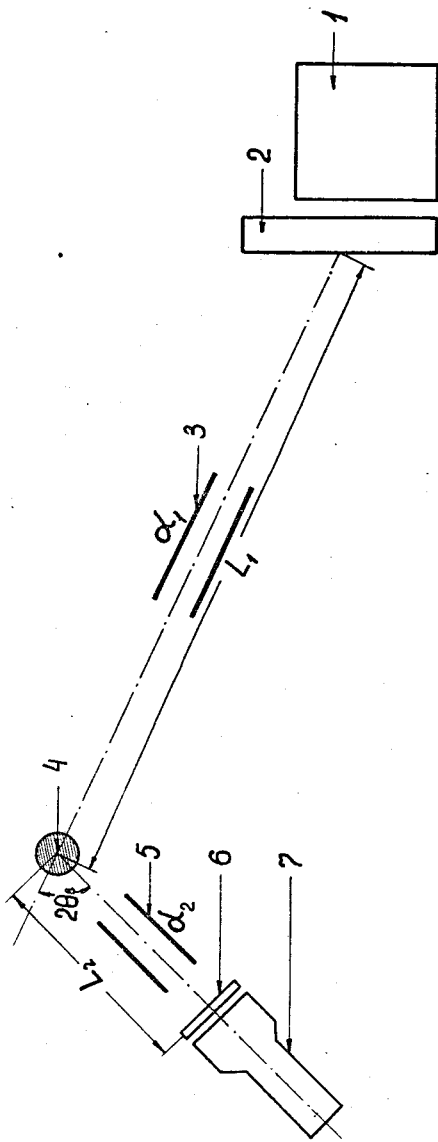


Рис. 2 Принципиальная схема эксперимента.
 1. Активная зона реактора.
 2. Замедлитель.
 3, 5. Соллеровские коллиматоры.
 4. Образец.
 6, 7. Сцинтилляционный детектор.

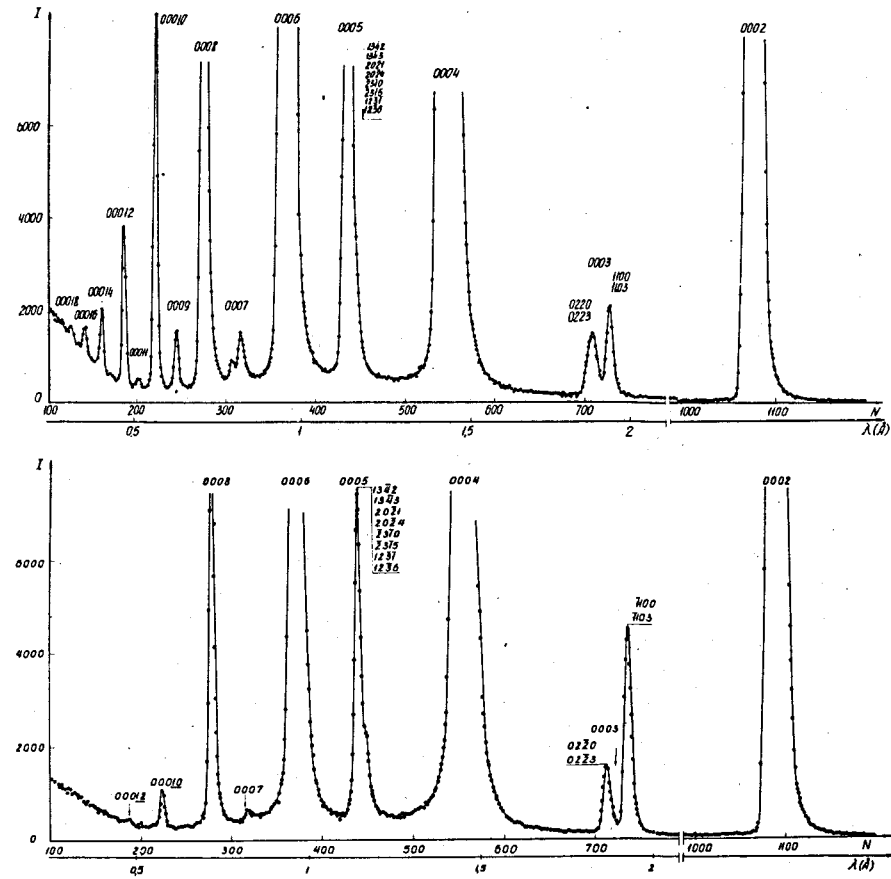


Рис. 3 Нейтронограмма монокристалла ${}^7\text{Li}$ для случая, когда плоскость (0002) удовлетворяла условию Брэгга ($\theta \approx 34^\circ 40'$), волновой вектор падающих нейтронов составлял с плоскостью (2110) угол около $2^\circ 20'$; нижняя нейтронограмма снята при комнатной температуре, верхняя — при азотной. На нейтронограмме указаны индексы плоскостей, участвующих в многократном рассеянии для 3-го и 5-го порядков отражений от плоскости (0002).

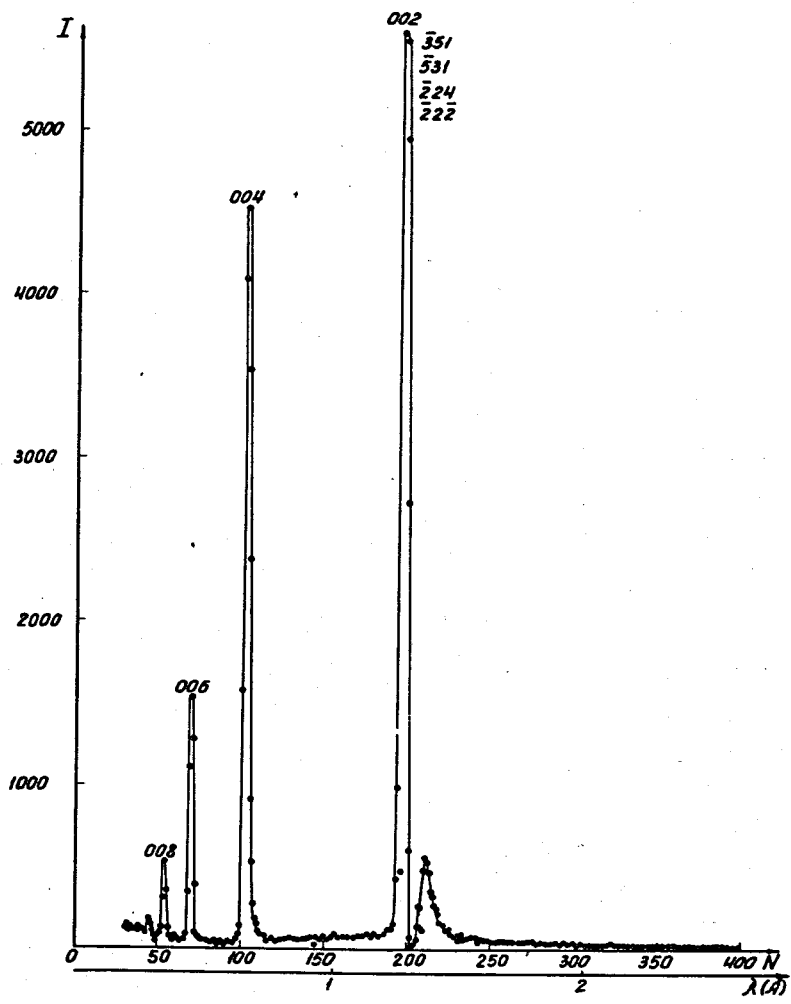


Рис. 4 Нейтронограмма с "отрицательным крылом" для монокристалла Al , установленного на отражение от плоскости (002) при угле $2\theta = 18^\circ 25'$. Указаны индексы плоскостей, "выедающих" пучок, отраженный от плоскости (002) .

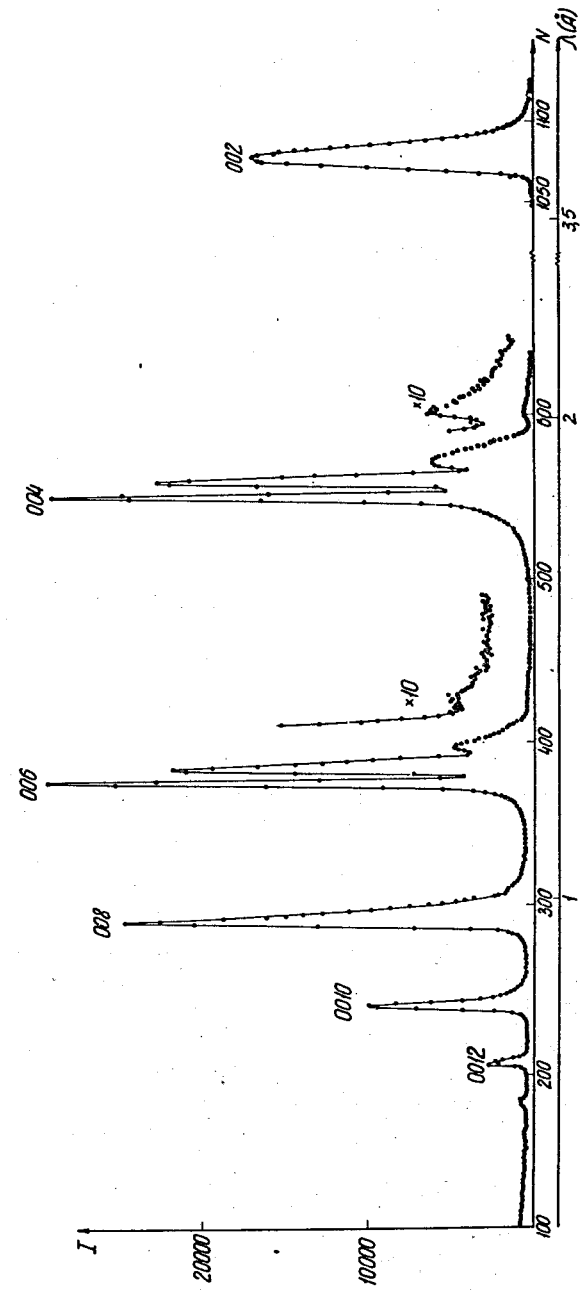


Рис. 5 Нейтронограмма, демонстрирующая многократное рассеяние для монокристалла Al , установленного на отражение от плоскости (002) при угле $2\theta = 123^\circ$.

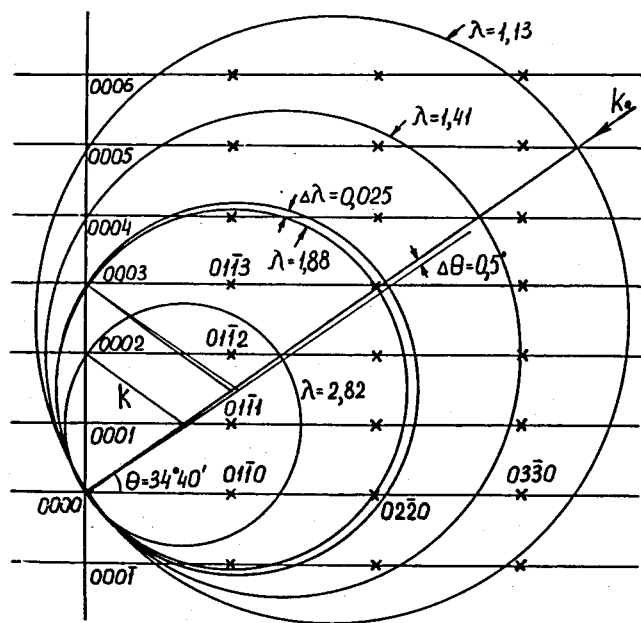


Рис. 6 Диаграмма обратной решетки для плоскости $(\bar{2}110)$ с указанием сечений сфер Эвальда для разных порядков отражений. При третьем порядке отражения указано поведение сферы Эвальда для конечного разрешения по углу и волновому вектору.

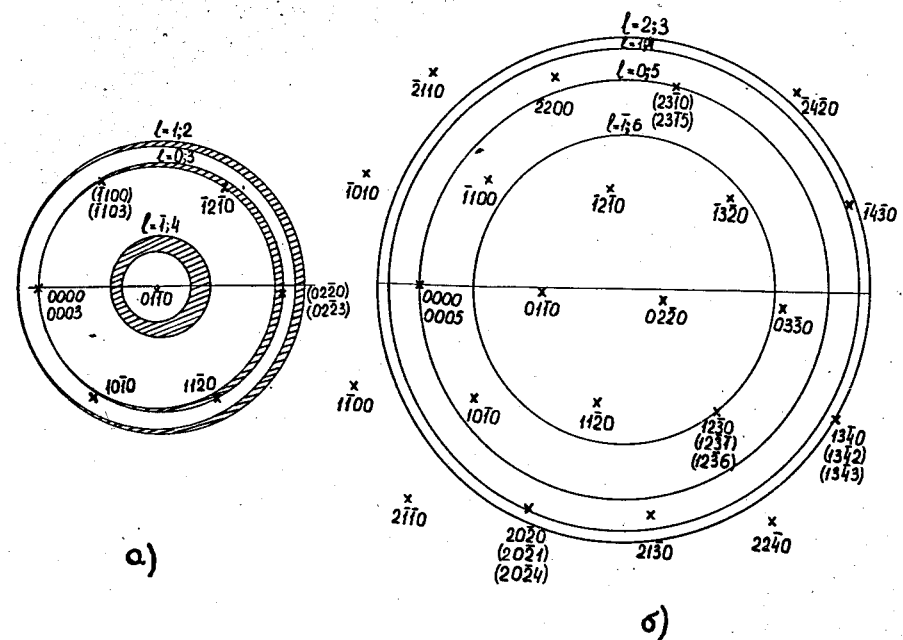


Рис. 7 Сечения сфер Эвальда в плоскостях $(000l)$, перпендикулярных к плоскости рассеяния $(\bar{2}110)$, указывающие точки обратной решетки, дающие одновременные брэгговские отражения (на рис. точки в скобках). Для ненулевых слоев указаны только точки, дающие одновременные отражения. Проекция волнового вектора k_0 на нулевой слой, как видно на этом сечении, составляет угол $2^{\circ}20'$ с вектором обратной решетки r_{0110} . Заштрихованные поверхности показывают эффект конечного разрешения для многократного одновременного рассеяния.