8589

СООБЩЕНИЯ
ОБЪЕДИНЕННОГО
ИНСТИТУТА
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

ДУБНА

8589

Р3 - 8589

И.Гладких, Ю.М.Останевич, Л.Чер

СПЕКТРОМЕТР ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ МАЛОУГЛОВОГО РАССЕЯНИЯ НЕЙТРОНОВ ПО МЕТОДУ ВРЕМЕНИ ПРОЛЕТА (ТЕОРИЯ)

1975

Р3 - 8589

И.Гладких, Ю.М.Останевич, Л.Чер

СПЕКТРОМЕТР ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ МАЛОУГЛОВОГО РАССЕЯНИЯ НЕЙТРОНОВ ПО МЕТОДУ ВРЕМЕНИ ПРОЛЕТА (ТЕОРИЯ)

В нашей предыдущей публикации [1] мы показали, что исследование малоуглового рассеяния нейтронов методом времени пролета/МВП/на белом пучке должно обладать рядом достоинств по сравнению с традиционным методом, использующим монохроматизацию падающего пучка. В данной работе мы получаем основные соотношения, описывающие разрешающую способность установки, ее светосилу и функцию разрешения.

Геометрия Мы рассматриваем подробно так называемую щелевую геометрию. Спектрометр содержит следующие основные элементы /*рис. 1*/: источник нейтронов /замедлитель/, две щели, коллимирующие пучок перед образцом, и детектор рассеянных нейтронов. Поскольку размеры замедлителя обычно существенно превышают размеры первой коллимирующей щели, мы будем представлять себе источник нейтронов в виде бесконечной плоскости, обладающей интегральной светимостью S, *нейтрон/см^2 сек*. Размеры щелей к детектора обозначим через h_{x_i}, h_{y_i}, координаты точек в плоскостях щелей и детектора - x_i, y_i $(i=1,2,3)$.

Основные соотношения Целью эксперимента является измерение зависимости упругого дифференциального сечения рассеяния $d\sigma(\kappa)/d\Omega$, где $\kappa = 2k_0 \sin(\theta/2) \approx k_0\theta$; $\theta \ll 1$; $k_0 = 2\pi\lambda^{-1}$; θ - угол рассеяния, λ - длина волны нейтрона, κ - переданный импульс.

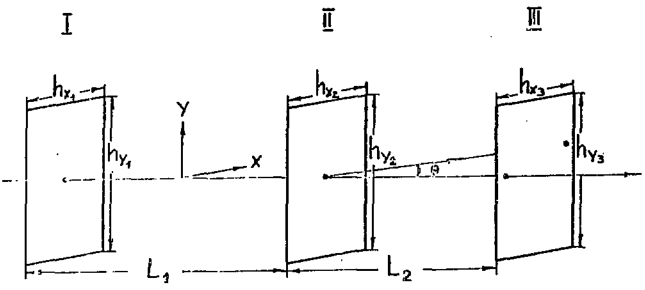


Рис. 1. Геометрия спектрометра.

Это сечение, отнесенное к одному рассеивающему объекту /например, макромолекуле в растворе/, связано определенным образом с размерами, формой и рассеивающей способностью объекта /2/:

$$\frac{d\sigma(\kappa)}{d\Omega} = V^2(\rho_x - \rho_s)^2 |F(\kappa,R)|^2 P(\kappa,R), \qquad /1/$$

где V - объем рассеивающего объекта; ρ_x и ρ_s - рассеивающая способность растворенного объекта и растворителя; $\rho = \frac{\sum_i b_i}{V}$; b_i - амплитуда когерентного рассеяния i-го ядра /суммирование ведется по всем ядрам в объеме V/; $|F(\kappa,R)|^2$ - формфактор, определяемый формой и внутренним строением объекта; R - некий характерный размер рассеивающего объекта; $P(\kappa,R)$ - функция, учитывающая корреляцию в расположении отдельных частиц.

Интенсивность нейтронов, рассеянных в детектор, может быть записана в следующем виде:

$$J(\kappa) = \int \ldots \int N(\lambda ')R_{\lambda}(\lambda-\lambda ')Dn_x \exp(-\Sigma_t D)\frac{d\sigma(\kappa ')}{d\Omega} dx_1 dy_1 d\Omega_2 d\Omega_3 d\lambda \times$$

$$\times \delta(\kappa - \kappa '), \qquad /2/$$

где $N(\lambda)$ - спектральная плотность источника нейтронов $\int N(\lambda)d\lambda = S$, $R_{\lambda}(\lambda-\lambda ')$ - функция разрешения по λ в МВП. D - толщина образца; n_x - плотность исследуемых частиц в образце /$см^{-3}$/; Σ_t - полное макроскопическое сечение ослабления пучка образцом /$см^{-1}$/; $\hbar\kappa '$ - значение переданного импульса при каких-либо значениях всех 7 подынтегральных переменных:

$$\kappa'^2 = [(\frac{x_1-x_2}{L_1} + \frac{x_3-x_2}{L_2})^2 + (\frac{y_1-y_2}{L_1} + \frac{y_3-y_2}{L_2})^2](\frac{2\pi}{\lambda '})^2 = \theta^2 k_0^2 \qquad /3/$$

dx_1dy_1 - элемент площади источника нейтронов; $d\Omega_2 = dx_2dy_2/4\pi L_1^2$ - элемент телесного угла от источника на образец; $d\Omega_3 = dx_3dy_3/4\pi L_2^2$ - элемент телесного угла от образца на детектор; L_1 и L_2 - первая и вторая коллимирующие базы /*рис. 1*/.

Разрешающая способность Разрешающая способность в опыте по малоугловому рассеянию определяется угловым и энергетическим разрешением установки. Одним из достоинств метода времени пролета является превосходное энергетическое разрешение. Поэтому при рассмотрении меры разрешающей способности - дисперсии κ

$$\sigma_{\kappa}^2 = k_0^2\sigma_{\theta}^2 + \theta^2\sigma_{k_0}^2 \qquad /4/$$

вторым слагаемым пренебрегаем. Чтобы найти σ_{θ}^2 , воспользуемся тем, что θ -функция 6 независимых случайных переменных /см. /3//, каждая из которых распределена равномерно в пределах

$$\bar{x}_i \pm \frac{1}{2}h_{x_i} \quad ; \quad \bar{y}_i \pm \frac{1}{2}h_{y_i} \quad ; i=1,2,3.$$

Вычисления упрощаются, если заметить, что $\kappa^2 = \kappa_x^2 + \kappa_y^2$, причем оба слагаемых однотипны и статистически независимы. Выполняя усреднение, для x-компоненты получим:

$$\overline{\kappa_x^2} = \overline{\left(\frac{x_1 - x_2}{L_1} + \frac{x_3 - x_2}{L_2}\right)^2} k_0^2 =$$

$$= \left[\frac{1}{12}\left(\frac{h_{x_1}^2}{L_1^2} + \frac{h_{x_3}^2}{L_2^2} + h_{x_2}^2\left(\frac{1}{L_1} + \frac{1}{L_2}\right)^2\right) + \left(\frac{\bar{x}_3}{L_2}\right)^2\right] k_0^2 .$$

/При выводе принималось: $\bar{x}_1 = \bar{x}_2 = 0$; $\overline{x_i x_k} = \bar{x}_i \cdot \bar{x}_k$; $\overline{x_i^2} = \frac{1}{12} h_i^2 + \bar{x}_i^2$;).

Последнее слагаемое, очевидно, есть $\bar{\kappa}_x^2$, так что выражение для дисперсии $\sigma_{\kappa_x}^2 = \overline{\kappa_x^2} - \bar{\kappa}_x^2$ может быть получено немедленно:

$$\sigma_{\kappa_x}^2 = \frac{k_0^2}{12}\left[\frac{h_{x_1}^2}{L_1^2} + \frac{h_{x_3}^2}{L_2^2} + h_{x_2}^2\left(\frac{1}{L_1} + \frac{1}{L_2}\right)^2\right]. \qquad /5/$$

Выражение для $\sigma_{\kappa_y}^2$ аналогично. Наконец, дисперсия κ естественно выражается через найденные

$$\sigma_\kappa^2 = \frac{1}{\kappa^2}\left(\kappa_x^2 \sigma_{\kappa_x}^2 + \kappa_y^2 \sigma_{\kappa_y}^2\right). \qquad /5a/$$

Последнее выражение представляет мало ценности в щелевой геометрии, т.к. разрешение по κ_y здесь всегда плохое. Однако оно вполне пригодно для так называемой "точечной" геометрии, в которой $\sigma_{\kappa_x}^2 \simeq \sigma_{\kappa_y}^2$.

Оптимальная геометрия Для оптимизации геометрических характеристик спектрометра нам достаточно выражений /2/ и /5/. Отбрасывая несущественные для дальнейшего множители и заменяя их тегралы на некоторое среднее от подынтегральной функции, для интенсивности мы получим:

$$J \simeq \frac{1}{L_1^2 L_2^2} h_{x_1} h_{x_2} h_{x_3} h_{y_1} h_{y_2} h_{y_3} n_x \frac{d\bar{\sigma}(\kappa)}{d\Omega}. \qquad /6/$$

При заданных $\sigma^2_{\kappa_x}$ и $\sigma^2_{\kappa_y}$ необходимо найти такие L_j и h_i, чтобы J имело максимальное значение. Результатом такой оптимизации являются следующие соотношения:

$$h_{x_1}/L_1 = h_{x_3}/L_2 = h_{x_2}/\left(\frac{1}{L_1}+\frac{1}{L_2}\right) = 2\sigma_{\kappa_x}/k_0 \qquad /7/$$

$$L_1 = L_2;\quad L_1 + L_2 = L \to \infty\ . \qquad /8/$$

Для переменных "y" соотношения аналогичны.

/7/ и /8/ устанавливают оптимальные соотношения между размерами щелей и пролетными базами, выражение /8/, кроме того, требует максимального увеличения длины пролетных баз. Последний результат является естественным для бесконечного источника и остается справедливым, пока видимый размер источника не достигнет размеров замедлителя.

Довольно просто получить выражение для интенсивности при исследовании рассеивающего объекта размером R с некоторой точностью

$$\eta_x = \sigma_{\kappa_x} R;\quad \eta_y = \sigma_{\kappa_y} R; \qquad /9/$$

$$J_{опт} \simeq S L^2\ \eta_x^3 \eta_y^3 (k_0 R)^{-6} \frac{d\sigma(\kappa)}{d\Omega}. \qquad /10/$$

Последнее выражение любопытно в двух отношениях. При заданном уровне коллимационных искажений η_x, η_y интенсивность пропорциональна $R^{-3} \sim 1/V$, где V - объем исследуемого объекта. Хотя $d\sigma/d\Omega \sim V^2$, произведение $n_x V$ приходится выбирать умеренным /обычно $\lesssim 0{,}1$/, для того чтобы не превышать допустимого уровня корреляций в расположении отдельных частиц. Соответственно, $n_x \cdot d\sigma/d\Omega \sim V$.

Второй интересный аспект - зависимость интенсивности от температуры замедлителя T. Пусть спектр нейтронов, покидающих замедлитель, описывается распределением Максвелла

$$N(\lambda)d\lambda = 2S\exp(-\lambda_T/\lambda)^2 (\lambda_T/\lambda)^4 d\lambda/\lambda. \qquad /11/$$

Очевидно, условие /9/ выполняется для какого-либо одного значения λ_0. Для оценок примем, что $\lambda_0 = \sqrt{2/5}\lambda_T$, что соответствует максимуму спектральной плотности. Грубо говоря, это означает, что для половины используемого спектра ($\lambda > \lambda_0$) разрешающая способность лучше заданной, для другой половины ($\lambda < \lambda_0$) - хуже. При этом

$$J(\lambda_0) \simeq 2SL^2 \eta_x^3 \eta_y^3 \exp(-5/2)\cdot(\frac{5}{2})^2 \lambda_0^5 (2\pi R)^6 \frac{d\sigma}{d\Omega}.$$

Поскольку $\lambda_0^2 \sim \lambda_T^2 \sim 1/T$ - в целом светосила спектрометра,

$$J(\lambda_0) \sim T^{-2,5}. \qquad /12/$$

Сильная зависимость светосилы от температуры замедлителя /увеличение в ~ 2.10^3 раз при понижении T от 400 до 20 K/ с одной стороны, объясняет прогресс в малоугловом рассеянии нейтронов, связанный с созданием холодных замедлителей, с другой, очевидно, что проведение исследований малоуглового рассеяния нейтронов без холодного замедлителя - весьма неэффективное занятие.

Гауссовская функция разрешения

В предыдущих разделах мы пользовались мерой разрешающей способности спектрометра - дисперсиями $\sigma^2_{\kappa_x}$ и $\sigma^2_{\kappa_y}$. Однако для восстановления истинного закона рассеяния необходимо знать функцию разрешения $R(\bar{\kappa}-\kappa)$. В силу независимости κ_x и κ_y $R(\kappa) = R_x(\kappa_x)\cdot R_y(\kappa_y)$. Измеренная функция $\Phi(\bar{\kappa}_x, \bar{\kappa}_y)$ с истинным законом рассеяния $F(\kappa)$ связана известным соотношением:

$$\Phi(\bar{\kappa}_x, \bar{\kappa}_y) = \iint F(\kappa) R_x(\bar{\kappa}_x - \kappa_x) R_y(\bar{\kappa}_y - \kappa_y)\, d\kappa_x\, d\kappa_y . \qquad /13/$$

Простейший путь построения R состоит в использовании так называемого гауссовского приближения, т.е. предполагается, что R - гауссиан с дисперсией, определяемой соотношением /5/. Это приближение оправдано удобством использования аналитической функции, а также тем, что в ряде случаев оно является достаточно хорошим. В последнем разделе будет приведено точное выражение для функции разрешения, здесь мы рассмотрим свойства $\Phi(\bar{\kappa})$ в гауссовском приближении.

Пусть $F(\kappa)$ имеет форму Гинье[3]: $F(\kappa) = \exp(-\kappa^2 R^2/3)$. Тогда:

$$\Phi(\bar{\kappa}_x, \bar{\kappa}_y) = \frac{1}{2\pi\sigma_x\sigma_y} \iint e^{-\frac{(\kappa_x - \bar{\kappa}_x)^2}{2\sigma_x^2}} \cdot e^{-\frac{(\kappa_y - \bar{\kappa}_y)^2}{2\sigma_y^2}} \cdot e^{-(\kappa_x^2 + \kappa_y^2)\frac{1}{3}R^2}\, d\kappa_x\, d\kappa_y =$$

$$= \frac{1}{\sqrt{(1 + \frac{2}{3}R^2\sigma_x^2)(1 + \frac{2}{3}R^2\sigma_y^2)}}\, e^{-\frac{1/3\,\bar{\kappa}_x^2 R^2}{1 + \frac{2}{3}R^2\sigma_x^2}} \cdot e^{-\frac{1/3\,\bar{\kappa}_y^2 R^2}{1 + \frac{2}{3}R^2\sigma_y^2}} \qquad /14/$$

В щелевой геометрии обычно $\bar{y} = 0$ и $\bar{\kappa}_y = 0$, поэтому последний множитель исчезает. Для монохроматического излучения k_0^2 постоянно, поэтому предэкспоненциальный множитель - константа, не зависящая от угла рассеяния.

В координатах Гинье / $\log \Phi$ от κ^2 / результат представляется в виде прямой, из наклона которой можно определить "наблюдаемое " значение R^{*2}

$$R^{*2} = R^2 (1 + \frac{2}{3} R^2 \sigma_x^2)^{-1}$$

При условии $R^2\sigma_x^2 \ll 1$ /хорошее разрешение/ соответствующая поправка вносится достаточно просто. В обратном случае приближение Гинье для $F(\kappa)$ несправедливо, поэтому вся процедура теряет смысл.

Анализ выражения /14/ для метода времени пролета /переменное k_0 фиксированное θ / заметно сложнее. В этом случае σ_x^2 и σ_y^2 прямо пропорциональны κ^2 , и простая линеаризация вышеописанным способом возможна лишь при $\sigma_x^2 R^2 \ll 1$ и $\sigma_y^2 R^2 \ll 1$. Последнее требование заведомо неприемлемо, т.к. теряется основное достоинство щелевой геометрии - высокая светосила. Поэтому для обработки результатов, полученных МВП, приходится применять метод наименьших квадратов непосредственно к выражению /13/ или /14/. Выбор функции $F(\kappa)$ при этом диктуется модельными соображениями, а функции разрешения R_x и R_y требуется знать достаточно точно и в форме, удобной для вычислений.

Другим следствием формулы /14/ является то, что при одновременном использовании нескольких детекторов, расположенных под разными углами, зависимости $\Phi(\kappa)$ вообще говоря, будут получены с различными разрешающими способностями. Это обстоятельство можно расценивать двояко: с одной стороны, нельзя производить непосредственного объединения данных от нескольких детекторов, относящихся к одному и тому же значению κ. С другой - появляется реально измеренная зависимость экспериментальной кривой от разрешающей способности, которую можно использовать, например, для экстраполяции наблюдаемых параметров к идеальному разрешению.

Функция разрешения, точное выражение

Целью данного раздела является запись в явном виде функции разрешения для случая трех прямоугольных щелей произвольного размера. Ограничимся рассмотрением κ_x -компоненты. В приближении $\theta \ll 1$

$$\kappa_x = \left[\frac{x_1}{L_1} + \frac{x_3}{L_2} - x_2\left(\frac{1}{L_1} + \frac{1}{L_2}\right)\right] k_0 = y_1 + y_2 + y_3 ,$$

где y_i - случайные величины, равномерно распределенные в интервалах шириной $2\Delta_i$ со средними значениями $\bar{y}_i$. Искомая функция разрешения - суть свертка вида

$$W(y) = \int R_1(y_1 - \bar{y}_1) R_2(y_2 - \bar{y}_2) R_3(y_3 - \bar{y}_3) \delta(y_1 + y_2 + y_3 - y) dy_1 dy_2 dy_3 , \qquad /15/$$

где $R_{1,2,3}$ - прямоугольное распределение шириной 2Δ:

$$R(x)=\begin{cases}1/2\Delta & \text{при } \bar{x}-\Delta\le x\le\bar{x}+\Delta\\ 0 & \text{в остальных точках.}\end{cases}$$

Найдем общий вид свертки $n+1$ прямоугольных распределений. Для этого удобно воспользоваться системой "ступенчатых" функций $\delta_n(x)$, определяемых следующим образом:

$$\delta_n(x)=\begin{cases}x^n/n! & \text{при } x>0\\ 0 & \text{при } x\le 0.\end{cases} \qquad /16/$$

Эти функции относятся к классу обобщенных функций /4/ и могут быть получены из обычной дельта-функции Дирака $\delta(x)$ с помощью соотношений:

$$\delta_0(x)=\int_{-\infty}^{x}\delta(t)\,dt\;;\quad \delta_{n+1}(x)=\int_{-\infty}^{x}\delta_n(t)\,dt\,. \qquad /17/$$

В частности, $\delta_0(x)\equiv\theta(x)=\{1 \text{ при } x>0, 0 \text{ при } x\le 0\}$. Прямоугольное распределение с помощью $\delta_n(x)$ записывается следующим образом:

$$R(x)=\frac{1}{2\Delta}[\delta_0(x-\bar{x}+\Delta)-\delta_0(x-\bar{x}-\Delta)]. \qquad /18/$$

Свертка $n+1$ прямоугольных распределений имеет вид:

$$W_{n+1}(y)=\frac{1}{\prod_{i=1}^{n+1}2\Delta_i}\sum_{p_1=0}^{1}\dots\sum_{p_{n+1}=0}^{1}(-1)^{\sum_{i=1}^{n+1}p_i}\,\delta_n\Big(y-\sum_{i=1}^{n+1}[\bar{y}_i-(-1)^{p_i}\Delta_i]\Big), \qquad /19/$$

где $p_i=0,1$ - индексы суммирования.

Вывод /19/ осуществляется методом индукции с использованием свойства:

$$\int_{-\infty}^{\infty}\delta_n(a-x)\delta_0(x-b)\,dx=\delta_{n+1}(a-b). \qquad /20/$$

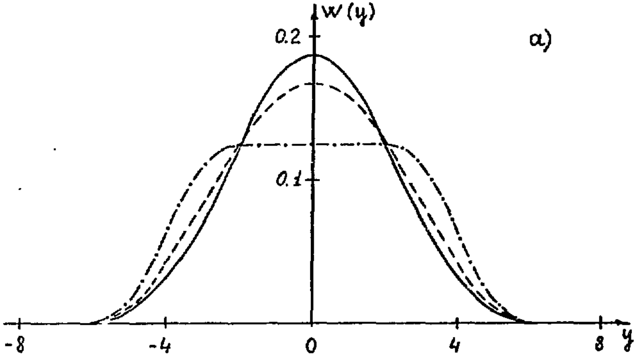


Рис. 2. Функция разрешения /19/ при

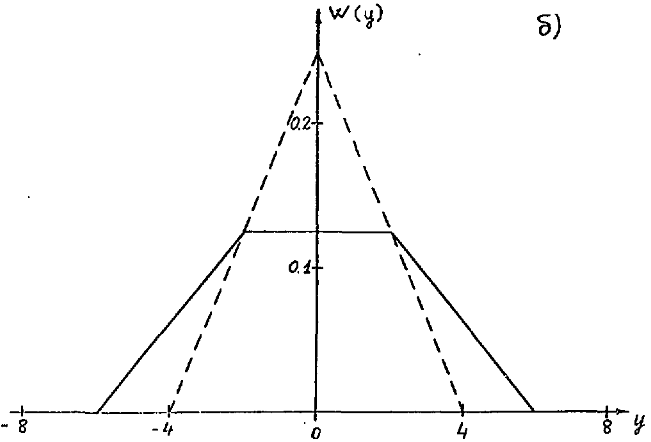
а/ $n=3$;
——————— $\Delta_1=\Delta_2=\Delta_3=2$
– – – – – – $\Delta_1=1;\ \Delta_2=2;\ \Delta_3=3$
–·–·–·–·– $\Delta_1=\Delta_2=1;\ \Delta_3=4$

В интересующем нас случае свертки трех распределений /19/ сводятся к $W_3(y)$ при следующих значениях параметров:

$$\bar{y}_1=\bar{y}_2=0;\quad \bar{y}_3=\kappa_x$$

$$\Delta_1=\frac{h_1}{L_1}\cdot\frac{\pi}{\lambda};\quad \Delta_2=h_2\left(\frac{1}{L_1}+\frac{1}{L_2}\right)\frac{\pi}{\lambda};\quad \Delta_3=h_3\frac{1}{L_2}\frac{\pi}{\lambda}. \qquad /21/$$

Достоинством /19/ по сравнению с имеющимися в литературе /например, /5/ / способами нахождения $W(y)$ являются общий вид и аналитическая форма записи. Первое позволяет его легко обобщать на более сложные виды распределения интенсивности источника и эффективности



б/ $n=2$; ———— $\Delta_1=4$; $\Delta_2=2$

– – – – – $\Delta_1=\Delta_2=2$

детектора. Например, трапецеидальное и треугольное распределения - суть $W_2(y)$ при $\Delta_1 \neq \Delta_2$ и $\Delta_1=\Delta_2$. Способ записи таков, что вычисление 2^{n+1} логических значений и соответствующих им слагаемых в /19/ легко записать в виде алгоритма для любого n. На *рис. 2* мы приводим графики $W_n(y)$ для ряда значений n и Δ_i. Интересно отметить, что $W_3(y)$ похожа на гауссиан только при $\Delta_1=\Delta_2=\Delta_3$, что соответствует оптимальным условиям /7/. Если же какое-либо из Δ_i превалирует, аппроксимация гауссианом вряд ли допустима.

Литература

1. *И.Гладких, Ж.А.Козлов, Ю.М.Остaневич, Л.Чер. ОИЯИ, 3-7655, Дубна, 1974.*
2. *W.Schmatz, T.Springer, J.Schelten, K.Ibel. J.Appl.Cryst., 7, 96 (1974).*

3. A.Guinier, G.Fournet. Small-Angle Scattering of X-Rays, N.-Y. J.Willey (1955).
4. "Функциональный анализ" под ред. С.Г.Крейна, серия "Справочная математическая библиотека", "Наука", М., 1972.
5. Б.А.Федоров. Кристаллография, 13, 763 /1968/.

Рукопись поступила в издательский отдел
7 февраля 1975 года.