СООБЩЕНИЯ
ОБЪЕДИНЕННОГО
ИНСТИТУТА
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

ДУБНА

Р3 - 8904

А.Байорек, З.Георгиу, Д.А.Корнеев, Р.Куля,
М.Попович, А.Д.Стойка

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ФУНКЦИИ РАЗРЕШЕНИЯ ДЛЯ ДИФРАКТОМЕТРА ПО ВРЕМЕНИ ПРОЛЕТА

1975

P3 - 8904

А.Байорек, З.Георгиу*, Д.А.Корнеев, Р.Куля,
М.Попович*, А.Д.Стойка*

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ФУНКЦИИ РАЗРЕШЕНИЯ ДЛЯ ДИФРАКТОМЕТРА ПО ВРЕМЕНИ ПРОЛЕТА

* Институт атомной физики, Бухарест, Румыния.

Общая постановка вопроса о разрешении нейтронного дифрактометра по времени пролета, по существу, не отличается от постановки вопроса для обычного дифрактометра [1]: функция разрешения $R(\vec{X})$, определенная в пространстве векторов рассеяния, есть функция прибора, свертка которой с сечением упругого рассеяния $\sigma(\vec{Q})$ определяет измеренную интенсивность нейтронов на детекторе $I(\vec{Q})$:

$$I(\vec{Q}) \propto \int R(\vec{X})\,\sigma(\vec{Q}+\vec{X})\,d\vec{X}. \qquad (1)$$

Такая формулировка, в которой за переменную принимается не пролетное время, а отклонение $\vec{X}=\vec{Q}'-\vec{Q}$ текущего вектора рассеяния $\vec{Q}'$ от среднего $\vec{Q}$, удобна тем, что отделяет приборную часть в сечении рассеяния от физической и позволяет рассмотреть различные виды сечения упругого (и квазиупругого) рассеяния с одинаковым подходом. В частном случае дифракции на поликристалле достаточно знания одномерной, зависящей от пролетного времени функции разрешения. В случае монокристалла нужно знать трехмерную функцию $R(\vec{X})$. Эта функция была рассчитана одним из авторов [2] с помощью развитого им метода вычисления функций разрешения в нейтронной спектрометрии [3].

В настоящей работе представлены результаты экспериментальной проверки полученных в работе [2] формул. Дается подробное описание вычислительного метода в том виде, в котором он воплотился в расчетную программу, для сравнения экспериментальных данных с теоретическими результатами.

1. Вычисление функции разрешения в нормальном приближении

Рассматривается установка для дифракции по времени пролета на импульсном реакторе в геометрии, изображенной на рис. 1. Детектор поставлен под средним углом рассеяния $2\theta_s$. Возьмем момент времени T_0 на анализаторе. При заданных средних расстояниях замедлитель – образец L_1 и образец-детектор L_2 значениям T_0 и θ_s соответствует средний вектор рассеяния $\vec{Q}=\vec{K}_{i0}-\vec{K}_{f0}$, где $\vec{K}_{i0}$ и $\vec{K}_{f0}$ – средние волновые векторы падающих и рассеянных нейтронов ($K_{i0}=K_{f0}$, $Q=2K_{i0}|\sin\theta_s|$).

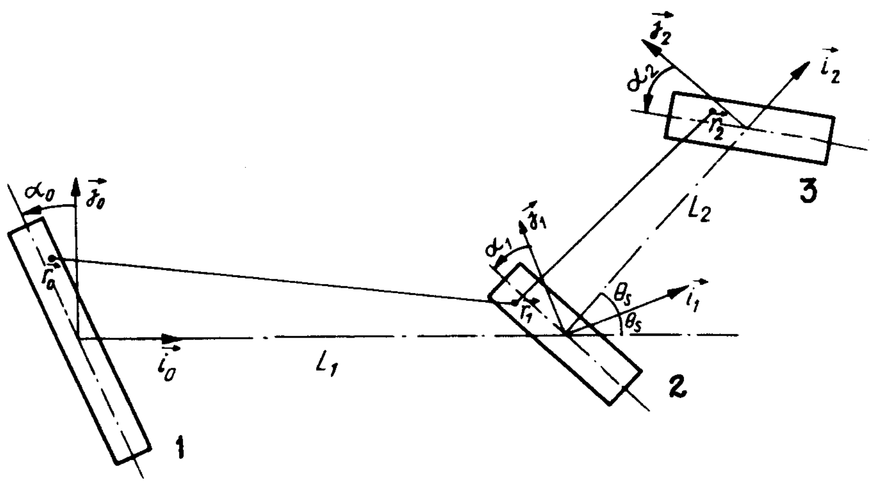

Рис. 1. Геометрия установки для дифракции по времени пролета на импульсном реакторе. Указаны системы координат, использованные при расчетах. Цифрами 1,2,3 обозначены замедлитель, образец и детектор соответственно.

Для построения функции разрешения в нормальном (гауссовом) приближении

$$R(\vec{X}) = R_0(2\pi)^{-3/2}|\{M_{ij}\}|^{1/2} e^{-\frac{1}{2}\sum_{i,j=1}^{3} M_{ij}X_iX_j} \tag{2}$$

необходимо рассчитать матрицу разрешения M. Удобнее найти сначала ее обратную, ковариационную матрицу M^{-1}, представляющую собой матрицу моментов второго порядка $\langle X_iX_j\rangle$ функции разрешения. Для этого нужно выразить $\vec{X}$ через первичные переменные, а также задать ковариационную матрицу этих переменных /2/. Первичные переменные – это текущие координаты $\vec{r}_j$ точек, в которых происходит вылет нейтрона из замедлителя ($j=0$), рассеяние на образце ($j=1$) и поглощение в детекторе ($j=2$), а также временные переменные t_0 и t_2, где t_0 – момент вылета нейтрона из замедлителя, а t_2 – отклонение времени поглощения в детекторе от среднего времени T_0. Вводится вектор $\vec{V}$, имеющий в качестве составляющих v_i эти переменные:

$$v_1=x_0;\ v_2=y_0;\ v_3=z_0;\ v_4=x_1;\ v_5=y_1;\ v_6=z_1;\ v_7=x_2;$$
$$v_8=y_2;\ v_9=z_2;\ v_{10}=t_0;\ v_{11}=t_2. \tag{3}$$

Системы координат выбраны, как показано на рис. 1. Все величины отсчитываются от нулевого среднего значения.

В линейном приближении связь между $\vec{X}$ и $\vec{V}$ выражается в виде $\vec{X}=A\vec{V}$, где A – матрица размером 3x11. Удобно ввести промежуточное преобразование $\vec{X}=C\vec{U}$, $\vec{U}=B\vec{V}$, так что $A=C\cdot B$, где вектор $\vec{U}$ имеет следующие составляющие:

$$u_1=\Delta K_i/K_{i0};\ u_2=\gamma_i;\ u_3=\delta_i;\ u_4=\gamma_f;\ u_5=\delta_f. \tag{4}$$

Здесь $\Delta K_i=K_i-K_{i0}$ – отклонение модуля текущего волнового вектора падающих нейтронов $\vec{K}_i$ от среднего значения K_{i0}; γ_i, δ_i – углы между $\vec{K}_i$ и $\vec{K}_{i0}$ в плоскости рассеяния и нормальной к ней, а γ_f, δ_f – те же углы между текущим волновым вектором $\vec{K}_f$ рассеянных нейтронов и вектором $\vec{K}_{f0}$.

Элементы матрицы **B** размером 5x11 вычисляются путем элементарного рассмотрения реальной геометрии акта рассеяния при учете того, что в момент времени **T** регистрируются те нейтроны, для которых выполняется соотношение

$$\Delta K_i/K_{i0} = (t_0 - t_2)/T + (\Delta L_i + \Delta L_f)/L_0 \,, \tag{5}$$

где $L_0 = L_1 + L_2$. Отклонения ΔL_i и ΔL_f от средних пролетных расстояний рассчитываются через координаты x_j, y_j в системах, изображенных на рис. 1. В результате получаются следующие отличные от нуля матричные элементы матрицы **B**:

$$\begin{gathered}
b_{11} = -1/L_0\,;\; b_{15} = -2\sin\theta_s/L\,;\; b_{17} = -b_{11};\; b_{1,10} = 1/T;\; b_{1,11} = b_{1,10};\\
b_{22} = -1/L_1;\; b_{24} = \sin\theta_s/L_1;\;\; b_{25} = \cos\theta_s/L_1;\\
b_{33} = b_{22};\;\; b_{36} = -b_{22};\\
b_{44} = \sin\theta_s/L_2;\;\; b_{45} = -\cos\theta_s/L_2;\;\; b_{48} = 1/L_2\,;\\
b_{56} = -b_{48}\,;\;\; b_{59} = b_{48}\,.
\end{gathered} \tag{6}$$

Элементы матрицы **C** размером 3x5 получаются из рассмотрения акта рассеяния в обратном, $\vec{Q}$ -пространстве. Выбрав систему отсчета с осью X_1 вдоль $\vec{Q}$ (рис. 2) и рассчитав составляющие вектора $\vec{X}$, получим[2] следующие отличные от нуля матричные элементы c_{ij}:

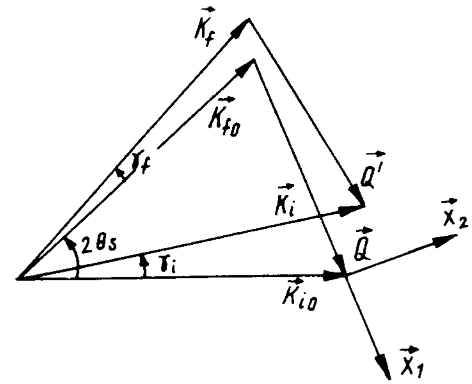

Рис. 2. Геометрия акта рассеяния в обратном пространстве. Указана система координат, в которой выражается функция разрешения.

$$\begin{gathered}
c_{11} = 2\xi K_{i0}\sin\theta_s;\;\; c_{12} = -\xi K_{i0}\cos\theta_s;\;\; c_{14} = \xi K_{i0}\cos\theta_s\,;\\
c_{22} = \xi K_{i0}\sin\theta_s\;;\;\; c_{24} = \xi K_{i0}\sin\theta_s\;;\\
c_{33} = K_{i0};\;\; c_{35} = -K_{i0}\,.
\end{gathered} \tag{7}$$

Здесь $\xi = \mathrm{sign}\,\theta_s$.

Ковариационная матрица первичных переменных S^{-1} предполагается известной. В отсутствие соллеровских коллиматоров – это клеточно-диагональная матрица

$$S^{-1} = \{P_0, P_1, P_2, \langle t_0^2\rangle, \langle t_2^2\rangle\}\,, \tag{8}$$

где P_j – ковариационные матрицы пространственных переменных x_j, y_j, $z_j\,(j = 0,1,2)$, относящихся к замедлителю, образцу и детектору соответственно, а $\langle t_0^2\rangle$ и $\langle t_2^2\rangle$ – это временные дисперсии нейтронной вспышки и ширины канала анализатора соответственно. Обозначим через $D_j = \{\sigma_{xj}^2, \sigma_{yj}^2, \sigma_{zj}^2\}$ ковариационные матрицы P_j

в диагональном представлении. Если замедлитель, образец и детектор представить в виде параллелепипедов с толщиной w_j, шириной ℓ_j и высотой h_j, то диагональные элементы равны соответственно $w_j^2/12$, $\ell_j^2/12$ и $h_j^2/12$ (для цилиндра с радиусом R_j и высотой h_j нужно написать $\sigma_{xj}^2 = \sigma_{yj}^2 = R_j^2/12$ и $\sigma_{zj}^2 = h_j^2/12$). Ориентацию замедлителя, образца и детектора можно описать поворотами вокруг осей z_j, y_j, x_j на углы ϕ, ψ, χ соответственно. Обозначив через $P_z(\phi)$, $P_y(\psi)$ и $P_x(\chi)$ матрицы этих поворотов, получаем для матриц P_j, входящих в S^{-1}, выражения

$$P_j = P_z(\phi_j)P_y(\psi_j)P_x(\chi_j)D_j P'_x(\chi_j)P'_y(\psi_j)P'_z(\phi_j). \qquad (9)$$

С помощью определенных выше матриц B, C и S^{-1} ковариационная матрица функции разрешения $M^{-1} = \{\langle X_i X_j\rangle\}$ рассчитывается через соотношение

$$M^{-1} = AS^{-1}A' = C(BS^{-1}B')C' = CS_1^{-1}C'. \qquad (10)$$

Обращением этой матрицы получается матрица разрешения M, входящая в нормальное приближение (2).

Явные выражения для матричных элементов $\langle X_i X_j\rangle$, рассчитанные по общей формуле (10) для случая без коллиматоров, приведены в работе /2/. Там же показано, что условия временной фокусировки /4/ вытекают простым образом из этих выражений. Нетрудно также показать, что для точечного монокристаллического образца и бесконечно длинного детектора (поставленного горизонтально) выражение для временной дисперсии брэгговских пиков (формула (5) работы /2/) сводится к выражению, полученному недавно в работе /5/.

2. Техника измерения функции разрешения

Для измерения функции $R(\vec X)$ удобен метод сканирования с помощью идеального монокристалла, разработанный первоначально для обычного дифрактометра /6/, который переносится без усложнений на случай дифракции по времени пролета. Так как сечение брэгговского рассеяния на идеальном монокристалле содержит дельта-функции $\delta(\vec Q - \vec Q_0)$, то измеренная интенсивность отраженных нейтронов пропорциональна $R(\vec Q_0 - \vec Q)$. Здесь $\vec Q_0 = -2\pi\vec\tau$, где $\vec\tau$ -вектор обратной решетки кристалла-образца, соответствующий измеренному отражению.

Компоненты вектора $\vec Q_0 - \vec Q$ контролируются изменением ориентации монокристалла около положения Брэгга при неподвижном детекторе. Если ϕ и χ - углы отклонения от брэгговского положения в плоскости рассеяния и перпендикулярно к ней, то в системе координат с осью X_1, направленной вдоль $\vec Q$, составляющие вектора $\vec Q_0$ равны $(Q_0, Q_0\phi, Q_0\chi)$. Если теперь $T-T_0$ - отклонение от среднего времени пролета T_0, соответствующего измеренному отражению, то $Q-Q_0/Q_0 = -(T-T_0)/T_0$, так что вектор $\vec X = \vec Q_0 - \vec Q$ имеет следующие составляющие:

$$X_1 = Q_0(T-T_0)/T_0\,; \quad X_2 = Q_0\phi\,; \quad X_3 = Q_0\chi\,. \qquad (11)$$

Измерения интенсивности отраженных нейтронов в зависимости от $T-T_0$, ϕ и χ соответствуют, следовательно, поведению функции разрешения вдоль направлений X_1, X_2 и X_3 соответственно, т.е. вдоль трех взаимно перпендикулярных направлений в $\vec Q$ -пространстве.

3. Эксперимент

С целью проверки изложенного выше метода расчета проводились измерения функции разрешения установки для дифракции по времени пролета с использованием спектрометра КДСОГ-1 на импульсном реакторе ИБР-30. Была выбрана простейшая геометрия, без соллеровских коллиматоров. Нейтронный пучок выводился с поверхности (площадью 30x40 см^2) неохлажденного водяного замедлителя толщиной в 4 см под углом в 12° к нормали. В качестве образца использовался тонкий диск монокристаллического кремния диаметром в 3,5 см с плоскостью (111), параллельной поверхности (монокристалл любезно предоставил нам Б.Халупа). Образец располагался на гониометрической головке на расстоянии L_1 = 30 м от замедлителя. Использовался один счетчик, поставленный вертикально на расстоянии L_2 = 1,2 м от образца.

В расчеты функции разрешения, помимо указанных параметров, определяющих геометрию опыта, входит также временная дисперсия $\langle t_0^2 \rangle$ нейтронной вспышки как функция энергии нейтронов. Остановимся подробнее на процедуре определения этого параметра. Так как форма теплового импульса определяется сверткой формы импульса быстрых нейтронов с функцией ответа замедлителя, то можно написать [7,8] $\langle t_0^2 \rangle = \sigma_r^2 + \sigma_m^2$, где σ_r^2 и σ_m^2 – дисперсии соответствующих функций. Дисперсия функции ответа замедлителя зависит от энергии термализованных нейтронов, величину же σ_r^2 можно считать постоянной. Для представляющих интерес промежуточных энергий нет еще явных теоретических предсказаний относительно зависимости дисперсии σ_m^2 от энергии, однако есть подробные экспериментальные данные [7,8]. Эти данные, полученные на замедлителях, близких по форме к замедлителям реактора ИБР-30, были нами использованы для определения временной дисперсии σ_m^2 для водяного замедлителя толщиной в 5 см (рис. 2 работы [8]). При использовании данных тех же авторов [7] по зависимости параметров импульса от толщины замедлителя полученные значения приводились к толщине в 4 см. Данные работы [7] приведены на рис. 3. Оказывается, их можно параметризовать формулой $\sigma_m = r_0(1-e^{-\lambda/\lambda_0})$, дающей правильные асимптотические зависимости от энергии (разумеется, такой вид интерполяционной формулы отнюдь не единственно возможный). Здесь λ – длина волны нейтронов. Параметры подгонки получились равными r_0 = 64 мкс и λ_0 = 1,6 Å.

Для определения постоянного вклада σ_r^2 в полную дисперсию $\langle t_0^2 \rangle$ измерялась диаграмма дифракции поликристаллического никеля под большим углом Брэгга ($2\theta_B$= 171°). С помощью формул, выведенных в работе [2] , из дисперсий измеренных дифракционных максимумов извлекались значения $\langle t_0^2 \rangle$. На рис. 3 представлены эти значения для тех максимумов, для которых вклад $\langle t_0^2 \rangle$

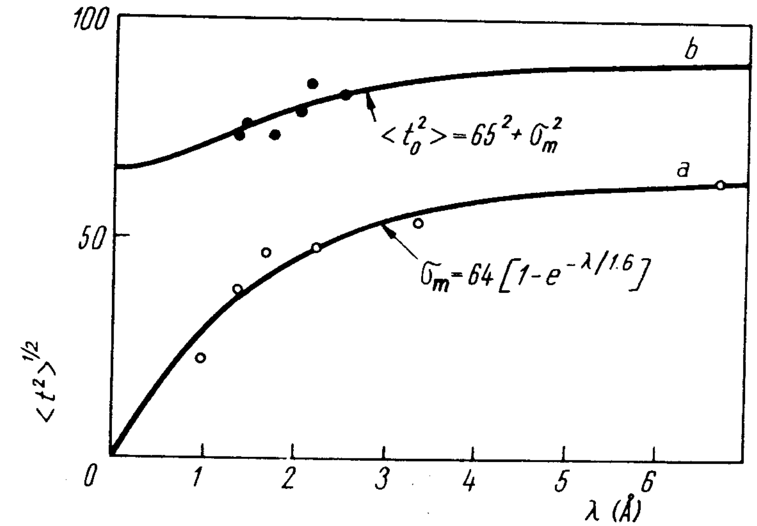

Рис. 3. Временная дисперсия нейтронного импульса в зависимости от длины волны нейтронов. о – данные по работе Ишмаева, Садикова и Чернышева [8] , приведенные к толщине замедлителя в 4 см, ● – экспериментальные значения для реактора ИБР-30, полученные измерением дифракции на поликристалле под большим углом. Время по оси ординат отложено в микросекундах.

в полную ширину оказался выше 95%, т.е. поправки малы. Сплошная кривая "b" на рис. 3 соответствует значению σ_r = 65 мкс и была использована в дальнейших расчетах.

Форма импульса тепловых нейтронов не гауссова, а имеет явно выраженную асимметрию. Поэтому ее описание одной дисперсией неполно и нужно учесть также третий момент по времени $\langle t_0^3 \rangle$. Вопрос о вычислении функции разрешения в лучшем, чем нормальное, приближении (с учетом моментов высшего порядка) рассматривается в работе [9].

4. Результаты

Измерялись спектры по методу времени пролета нейтронов, отраженных от плоскости (Ш) монокристалла кремния в различных порядках при двух брэгговских углах ($2\theta_B = 120^\circ$ и -85°) для ряда значений углов ϕ и χ . Двумерные массивы полученных данных обрабатывались для извлечения моментов порядка вплоть до четвертого. Определялись также кривые равной интенсивности на уровне 0,5 в плоскостях $T-T_0$, ϕ и $T-T_0$, χ.

В расчетах, сделанных для сравнения с экспериментальными данными, не было свободных параметров для подгонки. Исходными данными служили пролетные расстояния, размеры и ориентации замедлителя, образца и детектора, а также временная дисперсия вспышки тепловых нейтронов $\langle t_0^2 \rangle$, определение которой обсуждалось подробно в разделе 3.

Сравнение измеренных исправленных моментов с расчетными (табл. 1) обнаруживает удовлетворительное согласие. Расхождения в значениях моментов $\langle X_1^2 \rangle$, $\langle X_2^2 \rangle$ $\langle X_3^2 \rangle$, как правило, не превышают 10%. Несколько больше расхождения (около 20%) для момента $\langle X_1 X_2 \rangle$, но само значение момента значительно меньше остальных. Величина, дающая представление о глобальном разрешении в $\vec{Q}$ -пространстве, - это корень квадратный из определителя ковариационной матрицы $|\{\langle X_i X_j \rangle\}|^{1/2}$. Эта величина пропорциональна объему эллипсоида разрешения в нормальном приближении. На рис. 4 представлены ее значения в зависимости от Q_0 .

На рис. 5 приведены измеренные и рассчитанные зависимости функции разрешения: от $T-T_0$ при $\phi=0, \chi=0$ и от ϕ при $T=T_0, \chi=0$. Они соответствуют сканированию функции разрешения вдоль X_1 и X_2 в обратном пространстве. Единственная подгонка кривых на рис. 5 состоит в нормировке по нулевому моменту экспериментальных данных (нормировка по площади). Гауссово приближение описывает хорошо зависимость от угла. По времени пролета наблюдается отклонение от гауссовой формы, связанное с асимметрией импульса тепловых нейтронов.

ТАБЛИЦА

Вычисленные и измеренные значения элементов ковариационной матрицы функции разрешения

Q_0 ($Å^{-1}$)	θ_s	$\langle X_1^2 \rangle$ ($Å^{-2}$)		$\langle X_2^2 \rangle$ ($Å^{-2}$)		$\langle X_1 X_2 \rangle$ ($Å^{-2}$)		$\langle X_3^2 \rangle$ ($Å^{-2}$)	
		ВЫЧ.	ИЗМ.	ВЫЧ.	ИЗМ.	ВЫЧ.	ИЗМ.	ВЫЧ.	ИЗМ.
2	$-42,5^\circ$	$9,28.10^{-5}$	$9,28.10^{-5}$	$6,26.10^{-5}$	$6,34.10^{-5}$	$-5,22.10^{-5}$	$-5,72.10^{-5}$	$1,10.10^{-3}$	$1,14.10^{-3}$
6	$-42,5^\circ$	$2,24.10^{-3}$	$2,24.10^{-3}$	$5,63.10^{-4}$	$5,58.10^{-4}$	$-4,70.10^{-4}$	$-3,88.10^{-4}$	$0,99.10^{-3}$	$1,02.10^{-3}$
8	$-42,5^\circ$	$5,87.10^{-3}$	$6,56.10^{-3}$	$1,00.10^{-3}$	$1,04.10^{-3}$	$-8,36.10^{-4}$	$-6,00.10^{-4}$	$1,76.10^{-2}$	$1,81.10^{-2}$
10	$-42,5^\circ$	$1,28.10^{-2}$	$1,23.10^{-2}$	$1,57.10^{-3}$	$1,62.10^{-3}$	$-1,31.10^{-3}$	$-0,99.10^{-3}$	$2,74.10^{-2}$	$2,75.10^{-2}$
6	$60,0^\circ$	$1,36.10^{-3}$	$1,27.10^{-3}$	$7,02.10^{-4}$	$7,07.10^{-4}$	$2,78.10^{-4}$	$3,22.10^{-4}$	$6,01.10^{-3}$	$6,04.10^{-3}$
8	$60,0^\circ$	$3,62.10^{-3}$	$4,00.10^{-3}$	$1,25.10^{-3}$	$1,30.10^{-3}$	$4,94.10^{-4}$	$3,37.10^{-4}$	$1,07.10^{-2}$	$1,11.10^{-2}$
10	$60,0^\circ$	$7,96.10^{-3}$	$9,21.10^{-3}$	$1,95.10^{-3}$	$2,06.10^{-3}$	$7,72.10^{-4}$	$9,94.10^{-4}$	$1,67.10^{-2}$	$1,75.10^{-2}$

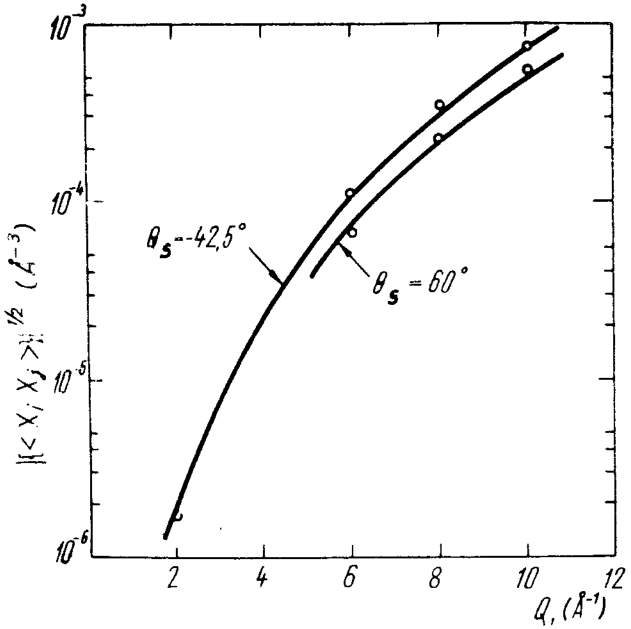

Рис. 4. Зависимость объема эллипсоида разрешения в $\vec{Q}$ -пространстве от среднего вектора рассеяния Q_0, расчет и эксперимент.

Пересечение поверхности, на которой $R(\vec{X}) = 0{,}5\ R(0)$, с плоскостью $X_3 = 0$ в $\vec{Q}$ -пространстве определяет эллипсы разрешения, изображенные на рис. 6. Представлены также соответствующие экспериментальные точки. Следует обратить внимание на различия в масштабах для различных порядков отражения. Небольшие систематические отклонения, которые наблюдаются и здесь, связаны с асимметрией нейтронной вспышки и могут быть описаны только выходом за рамки гауссовского приближения (см. работу /9/).

Совокупность данных, представленных выше, позволяет сделать заключение, что налажен надежный метод расчета функции разрешения, который может быть использован уверенно при анализе данных и планировании экспериментов по дифракции методом времени пролета.

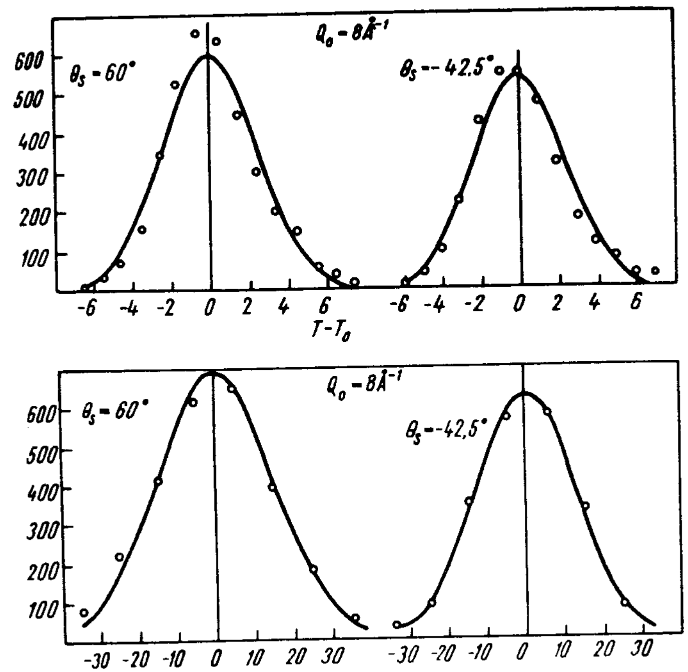

Рис. 5. Сверху: форма брэгговских пиков для отражения (444) от идеального монокристалла кремния в зависимости от канала анализатора, расчет и эксперимент. Ширина канала - 32 мкс. Внизу: то же самое в зависимости от угла отклонения в минутах от положения Брэгга в плоскости рассеяния. На обоих рисунках по оси ординат отложена скорость счета детектора в импульсах в секунду.

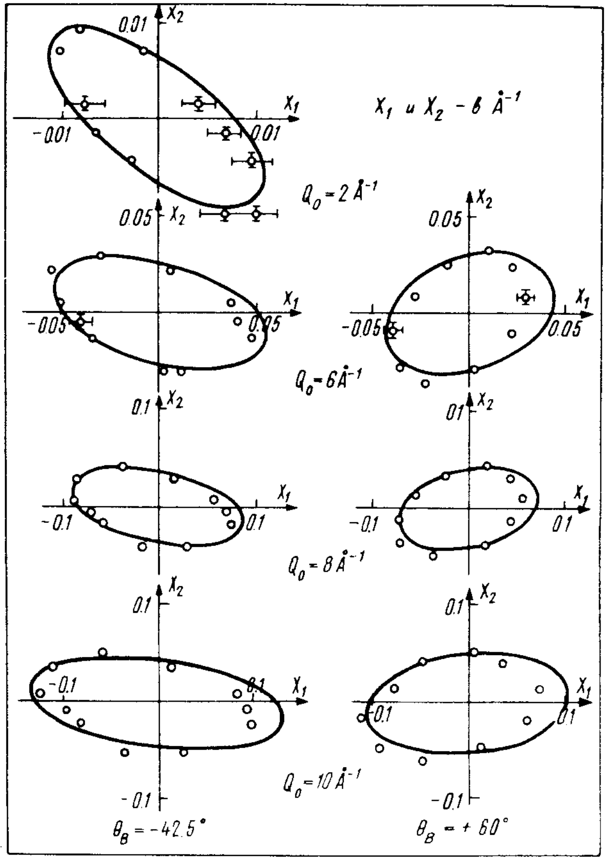

Рис. 6. Эллипсы разрешения в плоскости X_1, X_2. Сплошные кривые - результаты расчета в гауссовом приближении, точки - результаты эксперимента.

Литература

1. M.J.Cooper, R.Nathans.Acta Cryst.,A24,481 (1968).
2. A.D.Stoica.Acta Cryst.A31,189-192(1975).
3. A.D.Stoica.Acta Cryst.A31,193-196(1975).
4. A Holas.Nukleonika.13,753(1968).

5. А.М.Балагуров. Сообщение ОИЯИ, 3-7526, Дубна, 1973.
6. O.W.Dietrich, J.Als-Nielsen.In "Critical Phenomena",p.144,NBS Misc.Publ.273, Washington, 1966.
7. С.Н.Ишмаев, Н.П.Садиков, А.А.Чернышев. Препринт ИАЭ, 2019 (1970).
8. С.Н.Ишмаев, Н.П.Садиков, А.А.Чернышев. Препринт ИАЭ, 2271 (1973).
9. M.Popovici,A.D.Stoica,A.Bajorek.Acta Cryst. A30,1559 (1974).

Рукопись поступила в издательский отдел
21 мая 1975 года.