

ИССЛЕДОВАНИЕ МНОГОКРАТНОГО РАССЕЯНИЯ НЕЙТРОНОВ НА МЕРНЫХ ПОРОШКАХ АЛЮМИНИЯ

Ю. И. Смирнов, П. Ю. Пекшев, А. О. Эйдлин, Н. О. Елютин,
С. К. Матвеев, Д. С. Денисов

Проведены измерения спектров многократного малоуглового рассеяния нейтронов на калиброванных порошках алюминия. Из полученных данных определены размеры гранул порошка, проведено согласие с теорией.

Обычно при проведении малоугловых экспериментов многократное рассеяние рассматривают как негативный фактор и стремятся к тому, чтобы толщина образца L была мала по сравнению с длиной рассеяния нейтронов в материале l , т. е. чтобы выполнялось $L/l \ll 1$. В этом случае удается получить наиболее полную информацию о рассеивающей системе [1]: вычислить размеры и концентрацию неоднородностей в образце, определить их форму, а в некоторых случаях и выяснить детали внутреннего строения рассеивающих частиц. Однако выполнить данное условие возможно далеко не всегда, поэтому в [2, 3] была сделана попытка получения информации о рассеивающих системах, для которых преобладает многократное рассеяние, т. е. выполняется $l/L \ll 1$. При этом для интерпретации экспериментальных результатов авторы использовали диффузионную модель, согласно которой вероятность рассеяния нейтрона на угол θ ($\theta_0 \ll \theta \ll 1$) при прохождении пути $L \gg l$ описывается формулой

$$I(\theta, L) = I(0, L) \exp\{-\theta^2 l / \theta_0 L\}. \quad (1)$$

Здесь θ_0 — характерный угол однократного рассеяния на частице, зависящий от ее размера R . Ширина кривой рассеяния (1), измеренная на половине ее высоты, и корень квадратный из толщины образца оказываются связанными линейным соотношением

$$\omega = 2\theta_0 [(L/l) \ln 2]^{1/2}. \quad (2)$$

В этом случае, когда неизвестен только один из параметров рассеивающей системы, например размер домена [2] или размер гранулы в случае порошкового образца [3], подставив в (2) аналитические выражения для $\theta_0(R)$ и $l(R)$, можно определить размер неоднородности. Таким образом, используя диффузионную модель, можно найти только один из неизвестных параметров рассеивающей системы, что существенно ограничивает класс исследуемых объектов. Кроме того, диффузная модель не вполне адекватно отвечает экспериментальным результатам: линейные экспериментальные зависимости, экстраполированные к малым толщинам образцов, отсекают на оси ординат ненулевой отрезок.

В теоретической работе [4] проведено общее рассмотрение многократного рассеяния и получено строгое аналитическое выражение для угловых распределений многократно рассеянного излучения. Было показано, что

в случае рассеяния на компактных частицах факт ненулевой отсечки обусловлен наличием слагаемого, пропорционального θ^{-5} в сечении однократного рассеяния $\sigma(\theta)$ при больших углах [1]. Согласно [4], ширина кривой рассеяния описывается соотношением

$$\omega(L^{1/2}) = DL^{1/2} + T, \quad (3)$$

где $D = D(L)$, $T = T(L)$ — медленно меняющиеся функции толщины образца. При этом показано, что из экспериментальных зависимостей $\omega(L^{1/2})$ можно определить одновременно два независимых параметра рассеивающей системы, например размер и концентрацию неоднородностей. Итак, использование предложенного математического аппарата может существенно обогатить информацию, извлекаемую из данных по многократному рассеянию, так как теоретические зависимости $\omega(L^{1/2})$ станут адекватны экспериментальным результатам.

Целью настоящей работы являются проверка соответствия результатов данной теории опытным данным по многократному рассеянию нейтронов на модельных образцах — калиброванных алюминиевых порошках, — а также использование ее с целью извлечения количественной информации о рассеивающей системе из экспериментальных зависимостей.

1. Элементы теории и расчеты

В [4] получено следующее выражение для углового распределения интенсивности многократно рассеянного излучения:

$$I(\theta, L) = \frac{S}{2\pi} \int_0^\infty x dx \mathcal{J}_0(x\theta) \exp\left\{-\left(1 - \frac{\sigma_x}{\sigma_0}\right) \frac{L}{l}\right\}, \quad (4)$$

$$\sigma_x = \frac{1}{2} \int_0^\infty \theta d\theta \mathcal{J}_0(x\theta) \sigma(\theta), \quad \sigma_0 = \sigma_x = 0, \quad (5)$$

где S — площадь поперечного сечения пучка. В случае однородных сферических частиц радиусом R выражение (5) можно аппроксимировать как

$$\sigma_x = \sigma_0 + \frac{R^2 \alpha^2}{2} \left\{ \frac{(x\theta_0)^2}{8} \ln \frac{x\theta_0}{4} + \frac{\alpha^2 (x\theta_0)^3}{9\pi} \right\}, \quad (6)$$

здесь $\theta_0 = \lambda/2\pi R$; λ — длина волны нейтронов; $\alpha = 4\pi R(1-n)/\lambda$ — набег фазы, приобретаемой нейтроном после прохождения частицы; n — коэффициент преломления нейтронов. Приближение (6), как показано в [4], справедливо в областях дифракции, где $\alpha \ll 1$, и рефракции ($\alpha \gg 1$), т. е. в широком диапазоне значений α . Так как при измерениях на порошках легче контролировать массу образца, а не его толщину, в данной работе угловые спектры исследовались в зависимости от массы образца M . Тогда (4) переходит в

$$I(\theta, M) = \frac{S}{2\pi} \int_0^\infty x dx \mathcal{J}_0(x\theta) \exp\left\{-\left(1 - \frac{\sigma_x}{\sigma_0}\right) \frac{M}{m}\right\}. \quad (7)$$

Здесь $m = Sl\rho = 4\pi SR^3\rho_0/3\Sigma$, где ρ — насыпная плотность порошка, ρ_0 — плотность алюминия ($\rho_0 \simeq 2.7$ г/см³), Σ — сечение рассеяния одной частицей. Все последующие расчеты производились для условий, реализованных на опыте, в котором $\lambda = 1.75$ Å, а «освещаемая» площадь образца $S = 1.13$ см².

Как отмечалось в [4], при проведении численного интегрирования (7) существенным моментом является определение величины верхнего предела. Подынтегральное выражение, в котором величина σ_x определяется согласно (6), является монотонно убывающей функцией в области значений $0 \leq x \leq x_{\max}$. При $x > x_{\max}$ подынтегральное выражение монотонно растет, однако этот рост фиктивный и связан с приближенным характером

формулы (6). В качестве верхнего предела интегрирования (7) выбиралось значение x_{\max} , определяемое расчетным путем. При этом погрешность вычислений $I(\theta, M)$ составляет величину порядка $e^{-L/l}$ или $e^{-M/m}$. Отсюда, в частности, видно, что точность расчетов, согласно (6)—(7), падает при небольших значениях M/m и в этом случае необходимо введение нетривиальных поправок; поэтому расчеты проводились для образцов с $M \geq 225$ мг.

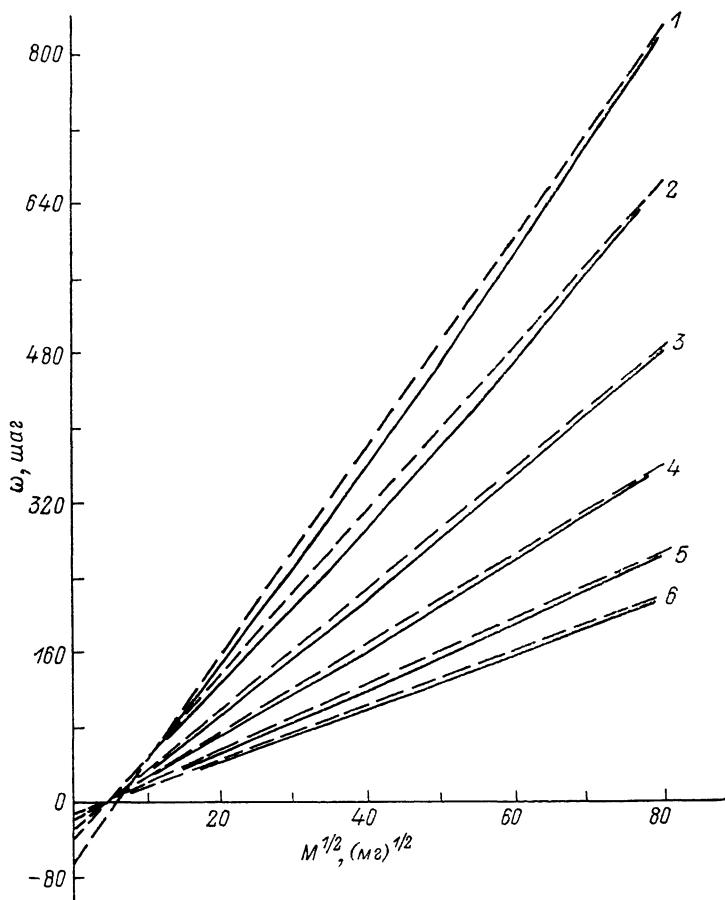


Рис. 1. Расчетная зависимость уширения кривой качания двухкристального спектрометра от массы исследуемого порошка для различных радиусов гранул.

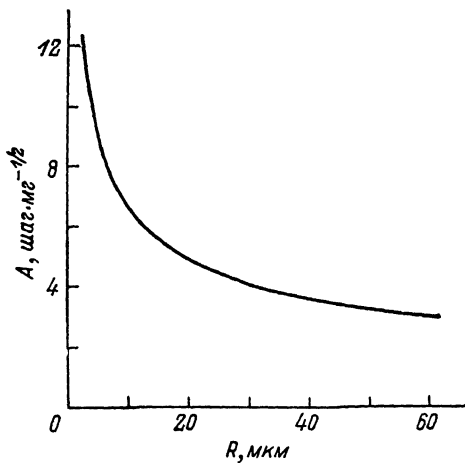
Штрихами обозначена линейная аппроксимация этой кривой. 1 — 3, 2 — 5, 3 — 10, 4 — 20, 5 — 40, 6 — 60 мм.

В настоящей работе измерения спектров малоуглового рассеяния проводились методом двухкристального нейтронного спектрометра [5], с помощью которого регистрируются отклонения нейтронов от первоначального направления только в горизонтальной плоскости. Так как в (7) под величиной θ подразумевается азимутальный угол, то выражение $I(\theta, M)$ необходимо усреднить по вертикальной расходимости рассеянного пучка. Можно показать, что из-за малости θ это распределение усредненной интенсивности описывается соотношением

$$I(\beta, M) = \int_{-\pi/2}^{\pi/2} I(\sqrt{\gamma^2 + \beta^2}, M) d\gamma, \quad (8)$$

где β — угол между волновым вектором падающего нейтрона k_0 и проекцией волнового вектора рассеянного нейтрона k на горизонтальную плоскость.

Распределения (7) и (8) рассчитывались на ЭВМ для различных значений радиусов гранул, далее определялась их ширина. Результаты расчетов показывают, что ω — ширина распределения $\hat{I}(\beta, M)$ — больше, чем соответствующее значение для распределения $I(\theta, M)$ на величину $\sim 5\%$. На рис. 1 изображены расчетные зависимости $\omega(\sqrt{M})$, полученные для различных размеров частиц. Здесь и в дальнейшем значение ω измеряется в единицах среднего шага сканирующего устройства [6], составляющего $\bar{p}=0.12''$. Как видно из этого рисунка, в диапазоне масс образцов (225—6400 мг), для которого производились расчеты, зависимости $\omega(\sqrt{M})$ неплохо аппроксимируются хордами, обозначенными штриховыми линиями. Соответствующие прямые $\omega(\sqrt{M})=A\sqrt{M}+B$, продолженные в область малых масс, отсекают на оси ординат ненулевые отрезки B . С помощью серии кривых $\omega(\sqrt{M})$, полученных для различ-



ности $\omega(\sqrt{M})$ неплохо аппроксимируются хордами, обозначенными штриховыми линиями. Соответствующие прямые $\omega(\sqrt{M})=A\sqrt{M}+B$, продолженные в область малых масс, отсекают на оси ординат ненулевые отрезки B . С помощью серии кривых $\omega(\sqrt{M})$, полученных для различ-

Рис. 2. Расчетная зависимость тангенса угла наклона A линейной аппроксимации функции $\omega(\sqrt{M})$ от радиуса R гранул.

ных значений радиуса, была рассчитана зависимость $A(R)$ (рис. 2). Таким образом, определяя экспериментально значение тангенса угла наклона зависимости $\omega_0(\sqrt{M})$, с помощью $A(R)$ можно вычислить значение радиуса гранул.

2. Экспериментальные результаты

Измерения проводились на нейтронном спектрометре [6], в качестве спектрометрической пары использовались совершенные монокристаллы Ge. Для использованного отражения (111) и $\lambda=1.75 \text{ \AA}$ ширина инструментальной кривой (рис. 4) составляет $\omega_0=24$ шага ($2.9''$). Фильтрация нейтронов, отвечающих высшим порядкам отражения, осуществлялась с помощью монокристаллического кварца. Образцами служили порошки алюминия трех типов, отличающиеся друг от друга размером гранул и полученные методом распыления расплава. Предварительно путем фотографирования под микроскопом и последующего прямого обмера по фотографиям отдельных частиц были определены распределения по размерам, средний размер \bar{d} и дисперсии $(d-\bar{d})^2$ для каждого из типов порошка. Соответствующие гистограммы приведены на рис. 3, а значения средних размеров и дисперсий сведены в таблице.

Для каждого порошка измерялись угловые распределения рассеянных нейтронов в зависимости от массы образца M , при этом контролировалась

Тип алюминиевого порошка	\bar{d} , мкм	$[(d-\bar{d})^2]^{1/2}$, мкм	$m(\bar{d})$, мг	A , шаг · мг	d_0 , мкм
I	9.5	3	31.7	7.33 ± 0.09	16.0—16.8
II	19	5	16.2	6.05 ± 0.09	24—26
III	34	7	9.6	4.82 ± 0.08	40—43

насыпная плотность образца, составившая $\rho = 1.65 \text{ г/см}^3$. Пример такой кривой показан на рис. 4, б.

Экспериментальные спектры подвергались процедуре полиномиального сглаживания по методу наименьших квадратов с выбором оптимальных

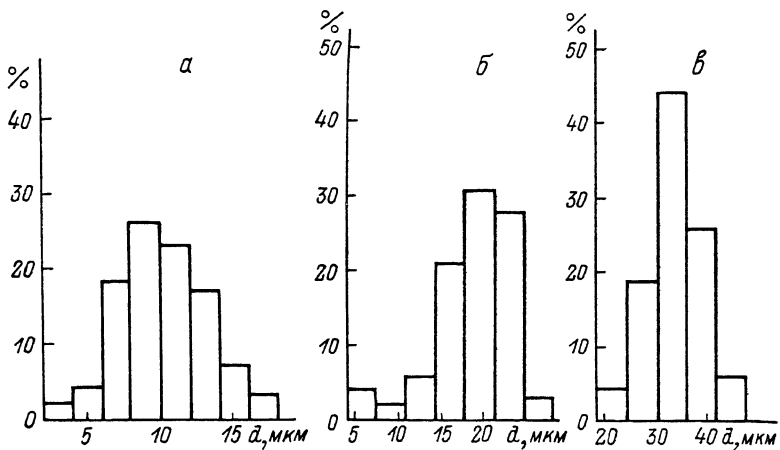


Рис. 3. Гистограммы распределений гранул по размерам d для алюминиевых порошков типа I, II, III (соответственно а, б, в).

d , мкм: а — 9.5, б — 19, в — 34.

параметров сглаживания, согласно [7]. Из полученных угловых распределений определялась их ширина на половине высоты ω . Для корректного вычисления погрешностей ширин $\delta\omega$, был проведен специальный статистический анализ многократных повторных измерений инструментальной кривой. Необходимость применения именно статистического анализа свя-

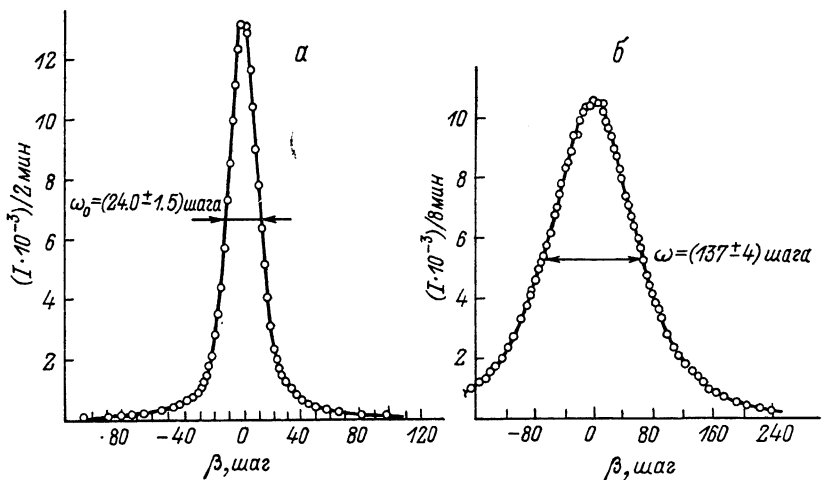


Рис. 4. Кривая качания двухкристального спектрометра в отсутствие образца (инструментальная кривая) (а). Кривая малоуглового рассеяния для порошка типа I массой $M = 779 \text{ мг}$ (б).

зана с тем обстоятельством, что прямые измерения с достаточной точностью столь малого шага ($0.12''$) и его погрешности очень сложны технически, и, насколько известно авторам, не существует достаточно простых и надежных способов определения таких величин. Для обработки результатов повторных измерений инструментальной кривой использовался метод [8], позволяющий осуществить раздельный учет вкладов в разброс интенсив-

ности, связанных как со свойствами потока нейтронов, так и кратковременными нестабильностями регистрирующей аппаратуры и нестабильностью шага угловых перемещений. При этом предполагалось, что значение шага является случайной величиной, распределенной по нормальному закону. Проведенный анализ показал, что для такой модели дисперсия шага составляет величину $\overline{(p-\bar{p})^2} = 0.09\bar{p}^2$. Так как предполагалось, что при пошаговом повороте кристалла-анализатора величина каждого шага не зависит от значения предыдущего, то ошибка ширины спектра, определяемая в шагах, вычислялась по формуле

$$\delta\omega_s = 0.3\sqrt{\omega_s}. \quad (9)$$

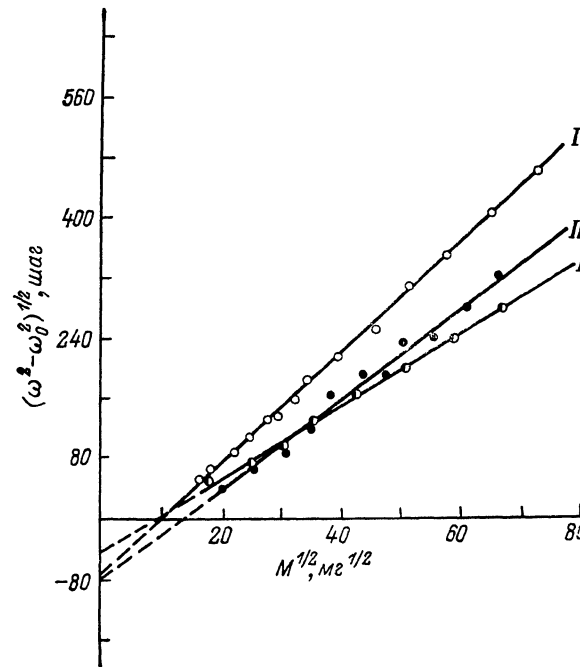


Рис. 5. Экспериментальная зависимость уширения кривой качания от массы порошка для образцов I, II, III.

В связи с тем что последнее предположение, по всей видимости, не вполне отвечает реальности, т. е. величина последующего шага коррелирует со значением предыдущего, выражение (9) является верхней оценкой погрешности ширины спектра. Согласно (9), погрешность ширины инструментальной линии составляет $0.2''$ (1.5 шага), что и отмечено на рис. 4, а.

Из полученных угловых распределений определялась ω_s . С учетом конечной ширины инструментальной линии за «истинную» ширину принималась величина $(\omega_s^2 - \omega_0^2)^{1/2}$. Зависимости ее от \sqrt{M} представлены на рис. 5, где сплошные линии — результат аппроксимации опытных данных по методу наименьших квадратов функцией $\omega = AM^{1/2} + B$. Погрешности найденных тангенсов углов наклона A составляли порядка 2 %, а отсечек B — около 5 %. В пределах экспериментальных ошибок не удалось определить предсказываемое теорией отклонение от линейной зависимости в диапазоне масс 225—6400 мг, хотя кратность рассеяния при этом изменялась от ~ 10 до 400. Экспериментальные значения тангенсов A приведены в таблице, там же находятся экспериментальные значения размеров гранул, вычисленные с помощью зависимости $A(R)$ (рис. 2).

Анализ табличных значений показывает, что результаты малоугловых экспериментов систематически превышают размеры, определенные фотоспособом. Это связано, во-первых, с известным обстоятельством, что в том случае, когда неоднородности не являются монодисперсными, малоугло-

вые измерения дают завышенную оценку размера. Однако из таблицы и рис. 3 видно, что в случае порошка типа I имеется слишком мало гранул (~5 %) с размерами, превышающими 16 мкм, чтобы так сильно завысить результат.

Во-вторых, основной причиной завышения размеров является следующее обстоятельство. Теоретическое обоснование расчета параметров многократного рассеяния, приведенное выше, основано на рассмотрении «разбавленных» систем, когда расстояние между рассеивающими частицами в несколько раз больше размера самих частиц. В том случае, когда это условие не выполняется («плотноупакованные системы»), рассеяние на отдельных частицах уже не будет независимым и необходимо учитывать интерференционные эффекты [1]. При этом эффективный размер, определяемый из (6)–(7), больше, чем размер отдельной частицы.

3. Обсуждение результатов

Проведенные эксперименты по исследованию многократного малоуглового рассеяния нейтронов на модельных образцах показали, что разработанная теория [4] в общем верно передает характер зависимости малоугловых спектров от толщины образца. Это дает основание для использования развитого математического аппарата при обработке результатов по многократному рассеянию на образцах, представляющих практический интерес. Как показал опыт, формулы, полученные в [4], удобны для вычислений на ЭВМ, и расчеты не требуют значительных затрат машинного времени. Однако размеры гранул порошка, определенные с помощью описанных расчетов из данных по многократному рассеянию нейтронов, оказались завышены по сравнению с «истинным». Это обусловлено тем обстоятельством, что теория многократного рассеяния построена для случая «разбавленных» систем, тогда как для порошковых образцов характерна плотная упаковка, что приводит к появлению интерференционных эффектов. Так как довольно часто, например при исследовании конструкционных материалов, рассеивающая система является «плотноупакованной», желательным обобщением развитой теории и на этот случай.

Авторы благодарят Н. Б. Хохлова за помощь в изготовлении микрофотографий, а также Б. П. Топервега и В. Н. Батога за полезные обсуждения.

Список литературы

- [1] Свергун Д. М., Фейгин Л. А. Рентгеновское и нейтронное малоугловое рассеяние. М.: Наука, 1986.
- [2] Шильштейн С. Ш., Соменков В. А., Каланов М., Елютин Н. О. // ФТТ. 1976. Т. 18. № 11. С. 3231–3239.
- [3] Dexter D., Veeman W. // Phys. Rev. 1949. V. 76. N 12. P. 1782–1786.
- [4] Малеев С. В., Топерверг Б. П. // ЖЭТФ. 1980. Т. 78. № 1. С. 315–330.
- [5] Шильштейн С. Ш., Марухин В. И., Каланов М., Соменков В. А. // ПТЭ. 1971. № 3. С. 70–73.
- [6] Абов Ю. Г., Кулиджанов Ф. Г., Елютин Н. О., Низовой С. Н. // ПТЭ. 1984. № 4. С. 52–57.
- [7] Рольбин Ю. А., Свергун Д. И., Щедрин Б. Н. // Кристаллография. 1980. Т. 25. № 2. С. 231–239.
- [8] Марков В. Т., Фетисов Г. В. // Кристаллография. 1986. Т. 31. № 5. С. 851–858.

Московский
инженерно-физический институт

Поступило в Редакцию
14 декабря 1990 г.