

P14-2003-48

В. Ю. Казимиров, И. Натканец*

**ПРОГРАММА РАСЧЕТА ФУНКЦИЙ РАЗРЕШЕНИЯ
СПЕКТРОМЕТРОВ НЕУПРУГОГО РАССЕЯНИЯ
В ОБРАТНОЙ ГЕОМЕТРИИ НЕРА-ПР И КДСОГ-М
РЕАКТОРА ИБР-2**

*Институт ядерной физики им. Г. Неводничаньского, Краков, Польша

ВВЕДЕНИЕ

Эксперимент по неупругому некогерентному рассеянию нейтронов имеет своей целью изучение атомной динамики кристаллов и состоит в измерении интенсивности рассеянных нейтронов, пропорциональной дважды дифференциальному сечению некогерентного рассеяния. Последнее для кубического кристалла в однофононном приближении может быть записано в виде (для ячеек с базисом выражение имеет более сложный вид)[1]:

$$\left(\frac{d^2 \sigma}{d\Omega d\omega} \right)_{incoh}^{\pm} \sim \frac{k_f}{k_i} \frac{|\vec{Q}|^2}{\omega} \operatorname{cth} \left(\frac{\hbar \omega}{2k_B T} \pm 1 \right) \times G(\omega),$$

где

$$G(\omega) = \frac{1}{N} \sum_{n,k,i} \delta(\omega - \omega_n(k)) \exp(-2W_i) \times \frac{\sigma_i}{M_i} |e_{i,n}(k)|^2$$

так называемая обобщенная функция плотности фононных состояний (ОФПФС), знаки \pm соответствуют процессам со сбросом и приобретением нейтроном энергии, k_i и k_f – импульсы падающего и рассеянного нейтронов, Q – переданный импульс, σ_i – некогерентное нейтронное сечение атома i , N – количество атомов в кристалле, M – масса атома, $e_{i,n}(k)$, ω_i – собственные векторы и значения динамической матрицы соответственно, $2W_i$ – фактор Дебая - Валлера, индексы суммирования: n – по ветвям, k – по фононным квазиимпульсам, i – по атомам. Исследование эволюции ОФПФС при изменении внешних условий (температуры, давления) дает ценную информацию о влиянии динамики решетки на те или иные процессы, протекающие в кристалле.

Использование экспериментальных ОФПФС для описания динамики решетки исследуемого соединения предполагает привлечение различных модельных представлений. На этом этапе возникает проблема корректности сравнения экспериментальных и теоретических данных – существование экспериментальных установок различных типов требует учета разрешающей способности конкретного прибора. В противном случае экспериментальные результаты могут существенно отличаться от модельных расчетов. Следовательно, необходимо введение различных поправок, компенсирующих конечную точность эксперимента. Совокупность этих поправок позволяет вычислить функцию разрешения установки, свернув которую с модельными кривыми можно в идеале получить экспериментальный спектр. Таким образом, при наличии функции разрешения в случае, если использованная

динамическая модель отвечает реальной физической картине, мы получим совпадение экспериментальной и теоретической ОФПФС, и в дальнейшем можем использовать эту модель для описания механизмов явлений, имеющих место в исследуемом соединении.

В данной работе будут рассмотрены функции разрешения спектрометров неупругого рассеяния в обратной геометрии КДСОГ-М [2,3] и НЕРА-ПР [4,5] импульсного ректора ИБР-2 ОИЯИ. Метод обратной геометрии успешно используется в ряде спектрометров на различных источниках нейтронов. Суть метода заключается в том, что на образец падают нейтроны с белым спектром от импульсного источника, а регистрируются монохроматические нейтроны после рассеяния. Энергия нейтронов, падающих на образец, анализируется по времени пролета источник - образец. В качестве монохроматоров рассеянных нейтронов используют поликристаллические фильтры и/или монокристаллы. Сочетание бериллиевого фильтра с монокристаллом является оптимальным вариантом, так как позволяет обеспечить хорошее разрешение и избавиться от высших порядков отражения.

ФУНКЦИЯ РАЗРЕШЕНИЯ СПЕКТРОМЕТРА НЕУПРУГОГО РАСSEЯНИЯ В ОБРАТНОЙ ГЕОМЕТРИИ

Рассмотрим коротко принципы вычисления функций разрешения спектрометров неупругого рассеяния. На рис. 1 показана общая схема спектрометра неупругого рассеяния в обратной геометрии. Конечное разрешение установки определяется неопределенностью времени пролета, которая обусловлена следующими основными факторами:

- ◆ шириной нейтронной вспышки;
- ◆ неопределенностью времени вылета нейтронов из замедлителя;
- ◆ шириной функции пропускания системы монохроматизации;
- ◆ конечными размерами замедлителя, образца, монокристаллического монохроматора и детектора;
- ◆ углами коллимации нейтронного пучка.

Для оценки разрешающей способности спектрометра обратной геометрии можно воспользоваться следующей общей формулой [6-8]:

$$\frac{\Delta\varepsilon}{\varepsilon} = \frac{1}{\varepsilon} \sqrt{R_1^2 + R_2^2 + R_3^2 + R_4^2}, \quad (1)$$

где

$$R_1 = \frac{\partial \varepsilon}{\partial E_2} \Delta E_2 = \left(1 + \frac{L_2}{L_1} \left(\frac{E_1}{E_2} \right)^{3/2} \right) \times \Delta E_2 = \left(1 + \frac{L_2}{L_1} \left(\frac{E_1}{E_2} \right)^{3/2} \right) \times 2E_2 \coth \theta \times \Delta \theta,$$

$$R_2 = \frac{\partial \varepsilon}{\partial L_2} \Delta L_2 = \frac{4E_1^{3/2}}{L_1 E_2^{1/2}} \times \Delta L_2,$$

$$R_3 = \frac{\partial \varepsilon}{\partial t} \Delta t = \frac{2E_1^{3/2}}{AL_1} \times \Delta t,$$

$$R_4 = \frac{\partial \varepsilon}{\partial L_1} \Delta L_1 = \frac{2E_1}{L_1} \times \Delta L_1,$$

и введены обозначения: $\varepsilon = E_1 - E_2$, $\Delta \varepsilon$ - переданная энергия и ее неопределенность, E_1 , ΔE_1 , E_2 , ΔE_2 - энергии нейтронов до и после рассеяния и их неопределенности, L_1 , ΔL_1 , L_2 , ΔL_2 - первая и вторая пролетные базы и их неопределенности, $A = 2286,4$ - константа (время в мкс, длины в м, энергии в мэВ).

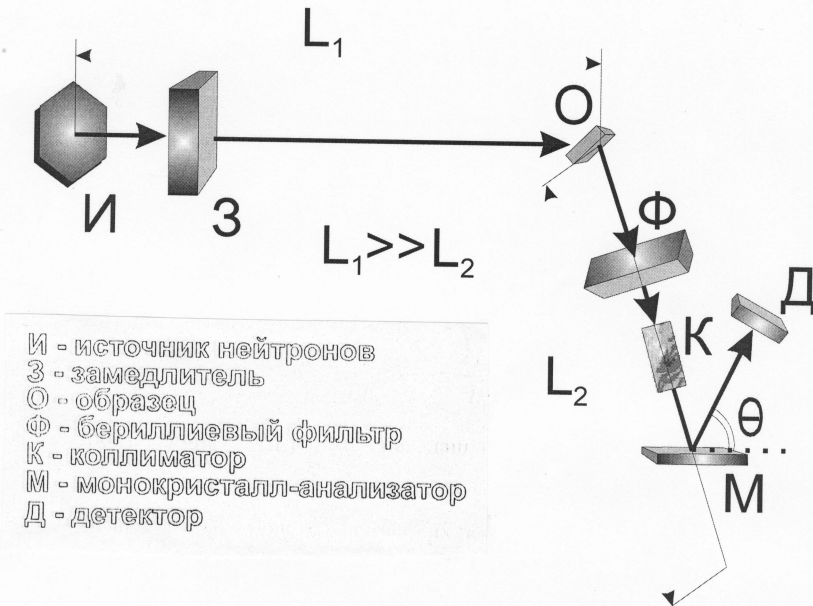


Рис. 1. Принципиальная схема спектрометра в обратной геометрии

Член R_1 соответствует неопределенности времени пролета, связанной с качеством системы монохроматизации. На рис. 2 показаны функции пропускания системы монохроматизации спектрометра НЕРА-ПР для различных типов анализаторов.

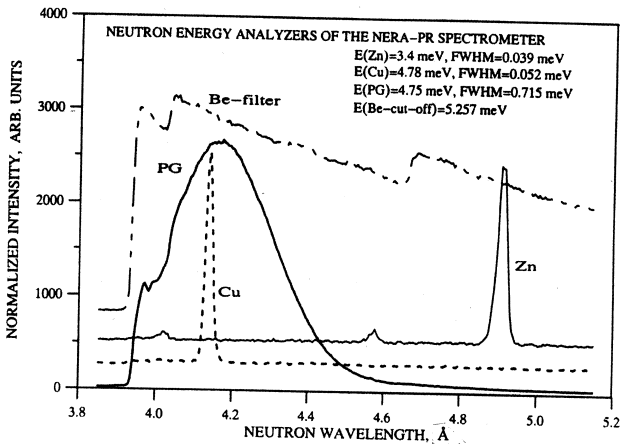


Рис. 2. Функции пропускания системы монохроматизации спектрометра НЕРА-ПР для различных типов анализаторов [5]

Член R_2 отвечает неопределенности второго пролетного пути, связанной с конечной толщиной образца Δs , анализатора Δa и детектора Δd . Определяя эффективную неопределенность как

$$\Delta l = \sqrt{\Delta s^2 + \Delta a^2 + \Delta d^2}, \quad \Delta L_2 = \Delta l / \sin \theta,$$

получаем

$$R_2 = \frac{\partial \varepsilon}{\partial L_2} \Delta L_2 = \frac{4E_1^{3/2}}{L_1 E_2^{1/2}} \times \frac{\Delta l}{\sin \theta}.$$

Третье слагаемое под корнем формулы (1) определяется временной неопределенностью, связанной с ширинами нейтронной вспышки Δt_{th} и канала анализатора Δt_{ch} :

$$\Delta t = \sqrt{\Delta t_{th}^2 + \Delta t_{ch}^2}.$$

Наконец последнее слагаемое дает вклад от неопределенности первого пролетного пути.

Оценивая роль этих вкладов в функцию разрешения и полагая $L_1=100$ м, $L_2=1$ м, $E_2=5$ мэВ, $\theta=45^\circ$, $\Delta\theta=1^\circ$, $\Delta l=0.01$ м, $\Delta t_{th}=250$ мкс, $\Delta t_{ch}=32$ мкс, мы получаем как результат рис. 3.

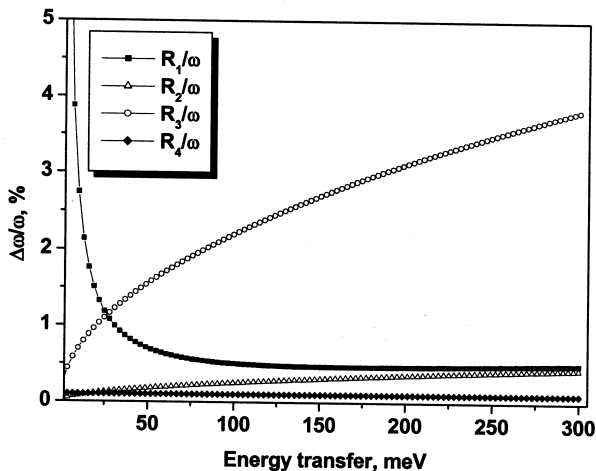


Рис. 3. Вклады в функцию разрешения различных факторов формулы (1)

Из рис. 3 следует, что при малых передачах энергии разрешение определяется, главным образом, качеством системы монохроматизации. При передачах энергии больше 100 мэВ основной вклад в разрешение вносит временная неопределенность, связанная с шириной нейтронной вспышки. Пространственные эффекты от неопределенности первого пролетного пути, для $L_1=100$ м, пренебрежимо малы во всей области переданных энергий.

Подробный анализ вкладов в функцию разрешения спектрометров обратной геометрии можно найти в работах [2], [4] и [9], согласно которым скорость счета рассеянных нейтронов в канале анализатора N может быть записана в виде

$$I(N) \sim \int_0^{\infty} dE_1 \Phi(E_1) \int_{-\infty}^{\infty} dt P(E_1, t) \int_0^{E_1} dE_2 \sqrt{\frac{E_2}{E_1}} \sigma(E_1 - E_2) F(E_2) M(E_2),$$

где $\Phi(E_1)$ - поток падающих нейтронов, $P(E_1, t)$ - нормированное временное распределение нейтронов при выходе из замедлителя, $\sigma(E_1 - E_2)$ - закон неупругого некогерентного рассеяния нейтронов, $F(E_2)$ - функция пропускания фильтра с пороговой энергией E_F , $M(E_2)$ - функция пропускания системы монохроматизации.

Преобразование этого выражения позволяет переписать его следующим образом:

$$I(N) \sim \Phi_T(E_1) \sqrt{\frac{E_2}{E_1}} \int_{-\infty}^{d(E_f + \varepsilon)} dt \sigma\left(\varepsilon - \frac{t}{d}\right) R_T(\varepsilon, t),$$

где $\Phi_T(E_1)$ - падающий на образец поток нейтронов, $R_T(\varepsilon, \Delta T)$ - функция разрешения во временной шкале, d – константа.

Следует отметить, что расчет функции разрешения спектрометров НЕРА-ПР и КДСОГ-М предполагает аппроксимацию всех входящих в нее экспериментально измеренных зависимостей (функция пропускания системы монохроматизации, форма вспышки нейтронов выходящих из замедлителя, распределение потока термических нейтронов) подгоночными аналитическими выражениями, что приводит к существенному сокращению объемов вычислений и, как следствие, увеличению скорости работы программы.

ПРОГРАММА РАСЧЕТА ФУНКЦИЙ РАЗРЕШЕНИЯ СПЕКТРОМЕТРОВ НЕРА-ПР И КДСОГ-М

Описанный в работах [2], [4] и [9] алгоритм реализован в программе *Res.exe*, написанной для операционных сред Windows 9.x-2000 (программа написана на Object Pascal, среда разработки – Delphi 5.0). Общий вид оболочки данной программы показан на рис. 4. Заполняя соответствующие поля, пользователь получает возможность рассчитать функцию разрешения для спектрометров НЕРА-ПР и КДСОГ-М и произвести свертку этой функции с расчетной ОФПФС. Для экспериментального измерения функции разрешения необходимо использование образцов, для которых закон рассеяния близок к дельта-функциональному. Одним из таких образцов является ванадий, рассеяние от которого практически полностью некогерентное. Эксперименты на ванадии подтвердили правильность работы программы для упругой линии ($\varepsilon=0$) спектрометров НЕРА-ПР и КДСОГ-М. В результате работы программы накапливается информация о интенсивности времяпролетного спектра неупругого рассеяния нейтронов от номера канала или длины волны нейтронов, падающих на образец, а также о свертке ОФПФС в зависимости от передачи энергии нейтрона. На рис. 5 представлен результат работы программы для тестового примера δ -функциональной ОФПФС для спектрометра НЕРА-ПР.

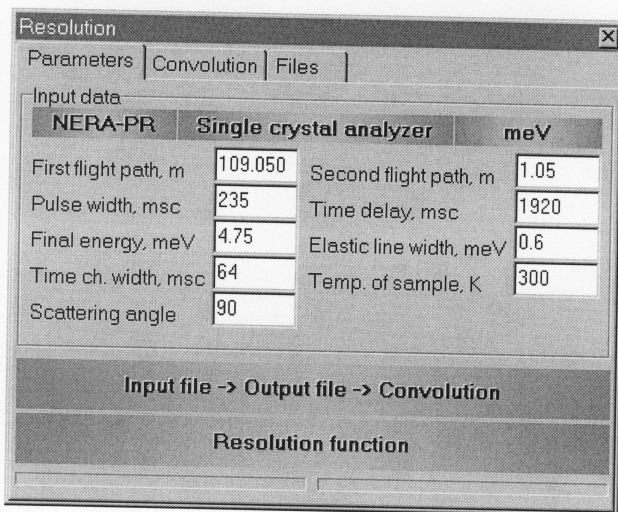


Рис. 4. Оболочка программы для расчета функций разрешения спектрометров
 НЕРА-ПР и КДСОГ-М

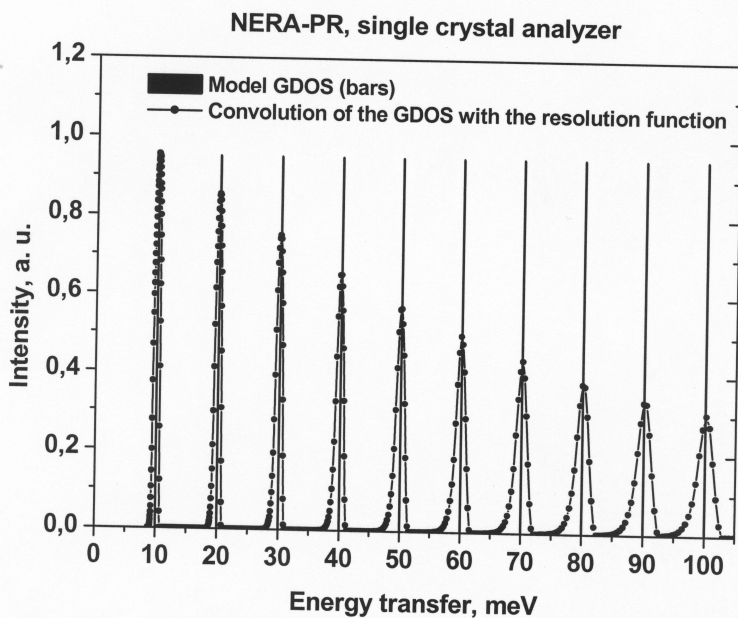


Рис. 5. Тестовый пример работы программы (δ -функциональная модельная ОФПФС)

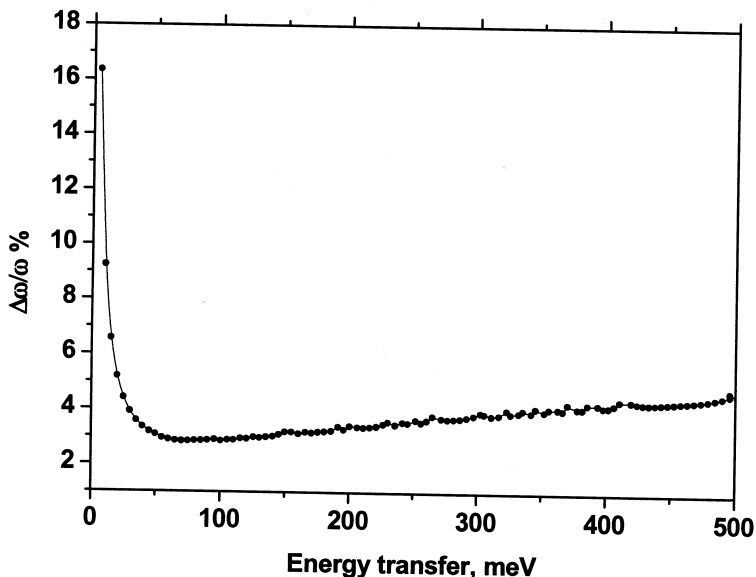


Рис. 6. Пример расчета функции разрешающей способности спектрометра НЕРА-ПП

На рис. 6 показана относительная функция разрешающей способности спектрометра НЕРА-ПП, также рассчитанная с помощью данной программы.

Рис. 7 дает сравнение экспериментальной ОФПФС (спектрометр НЕРА-ПП) с результатами свертки фоновых плотностей, рассчитанных методами квантовой химии [10], с функцией разрешения данного спектрометра. Сравнение экспериментальных и расчетных кривых показывает их хорошее совпадение высокочастотной области, чего нельзя сказать про область низких частот [11]. Это связано с тем, что квантовая химия позволяет с высокой точностью рассчитать частоты внутримолекулярных колебаний, которые лежат в основном в высокочастотной части спектра. Низкочастотные внутренние колебания молекулы смешиваются с «решеточными», которые остаются за рамками квантово-химического расчета, чем и объясняется расхождение между экспериментальными и расчетными кривыми в этой части спектра.

Таким образом, описанная выше программа позволяет с хорошей точностью проводить сравнение экспериментальных и расчетных ОФПФС, а также моделировать функции разрешения спектрометров обратной геометрии НЕРА-ПП и КДСОГ-М реактора ИБР-2.

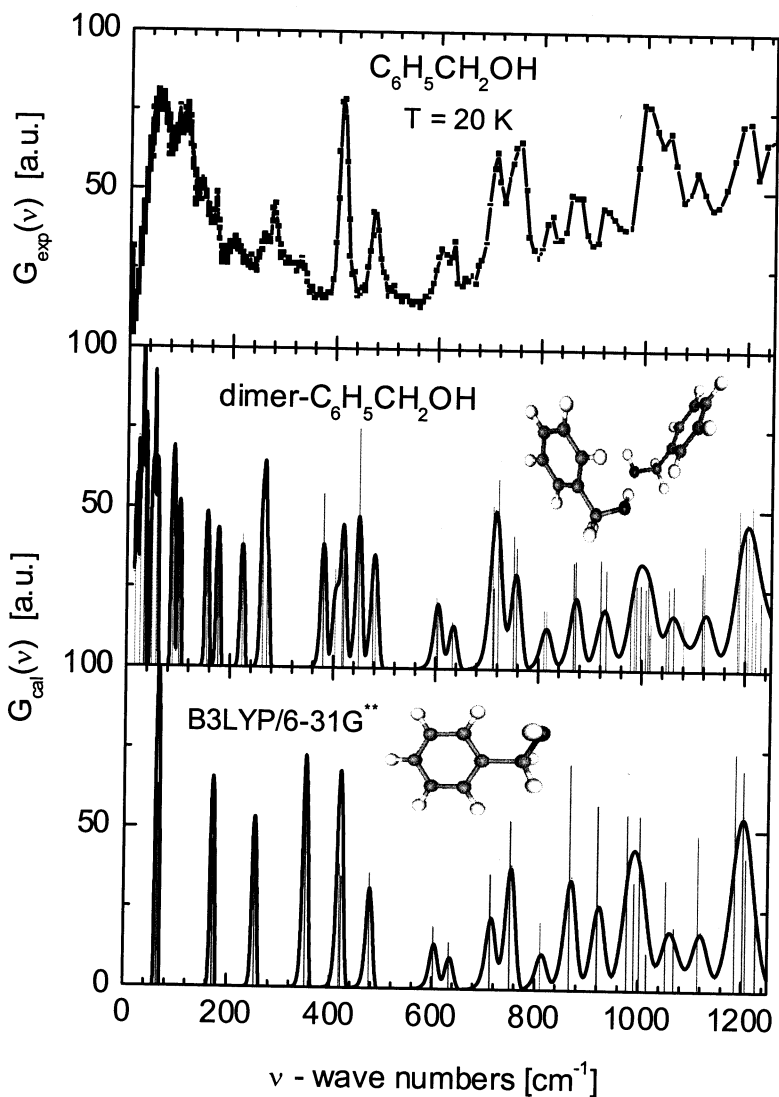


Рис. 7. Пример моделирования вибрационных спектров методами квантовой химии и сравнение результатов свертки расчетных ОФПФС с функцией разрешения спектрометра НЕРА-ПР – $G_{\text{cal}}(\nu)$ и с экспериментальным спектром плотности фононных состояний – $G_{\text{exp}}(\nu)$

БЛАГОДАРНОСТИ

Авторы считают своей приятной обязанностью выразить благодарность Н. Попа за внимательное прочтение рукописи и полезные обсуждения.

ЛИТЕРАТУРА

1. И.И. Гуревич, Л.В. Тарасов. Физика нейтронов низких энергий, «Наука», Москва, 1965.
2. K. Parlinski, A. Sudnik-Hryniewicz, A. Bajorek, J.A. Janik and W. Olejarczyk. Proc. of Panel on Research Applications of Nuclear Pulsed Systems, Dubna 1966, IAEA Vienna 1967, p. 179-185.
3. З. Г. Балука, А.В. Белушкин, С.И. Брагин, Т. Залески, М.З. Ишмухаметов, И. Натканец, В. Олеярчик, Я. Павелчик. Сообщения ОИЯИ, P13-84-242, Дубна, 1984.
4. I. Natkaniec, S.I. Bragin, J. Brankowski, J. Mayer. Proc. ICANS-XII, Abbingdon 1993, RAL Report 94-025, Vol. I, p. 89-96.
5. Neutron experimental facilities for condensed matter investigations at FLNP JINR. User Guide, Ed. V.V. Sikolenko, Dubna 1997, p. 27-31.
6. К. Уиндзор. Рассеяние нейтронов от импульсных источников, Энергоатомиздат, 1985.
7. J. Penfold, J. Tomkinson, The ISIS Time Focused Crystal Analyser Spectrometer TFXA, RAL-86-019, 1986.
8. V.Yu. Kazimirov, A.V. Belushkin. Proc. 13th Meeting of the International Collaboration on Advanced Neutron Sources (ICANS-XIII), 1995, PSI, Switzerland, I-8, p. 155.
9. Э. Мюле, Н. Попа, М. Попеску. Сообщения ОИЯИ, P3-85-279, Дубна, 1985.
10. M.J. Frisch, G.W. Trucks, H.B. Schlegel, G.E. Scuseria, M.A. Robb, J.R. Cheeseman, V.G. Zakrzewski, et al. Gaussian 98, Gaussian Inc., Pittsburgh PA, 1998.
11. I. Natkaniec, K. Holderna-Natkaniec, I. Majerz, ESS European Conference, 16-17 May 2002, Bonn, Abstract Book, p. 68.

Получено 12 марта 2003 г.

Казимиров В. Ю., Натканец И.
Программа расчета функций разрешения спектрометров
неупругого рассеяния в обратной геометрии НЕРА-ПР
и КДСОГ-М реактора ИБР-2

P14-2003-48

Приведено описание программы, позволяющей вычислять функции разрешения спектрометров НЕРА-ПР и КДСОГ-М и производить свертку этих функций с модельными обобщенными плотностями фононных состояний (ОФПФС). Программа обеспечивает корректность сравнения спектров неупругого некогерентного рассеяния нейтронов исследуемых соединений с результатами рассчитанных на основании различных теоретических моделей функции ОФПФС.

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики им. И. М. Франка ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2003

Перевод авторов

Kazimirov V. Yu., Natkaniec I.
Programme for Calculation of the Resolution Function
of NERA-PR and KDSOG-M Inelastic Neutron Scattering
Inverse Geometry Spectrometers

P14-2003-48

Programme for calculations of resolution functions of the NERA-PR and KDSOG-M spectrometers and convolution of these functions with theoretical general phonon density of states is described. The programme provides correct comparison of the inelastic incoherent neutron spectra of compounds under study with theoretical phonon density of states.

The investigation has been performed at the Frank Laboratory of Neutron Physics, JINR.

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2003

Редактор *М. И. Зарубина*
Макет *Н. А. Киселевой*

Подписано в печать 24.03.2003.

Формат 60 × 90/16. Бумага офсетная. Печать офсетная.

Усл. печ. л. 0,62. Уч.-изд. л. 0,67. Тираж 280 экз. Заказ № 53824.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований
141980, г. Дубна, Московская обл., ул. Жолио-Кюри, 6.

E-mail: publish@pds.jinr.ru

www.jinr.ru/publish/