

Межчастичная интерференция нейтронов при многократном малоугловом рассеянии на плотноупакованной полидисперсной системе

Ю. Г. Абов, Ф. С. Джепаров¹⁾, Н. О. Елютин, Д. В. Львов, Ю. И. Смирнов, А. Н. Тюлюсов

Государственный научный центр РФ Институт теоретической и экспериментальной физики, 117218 Москва, Россия

Поступила в редакцию 11 сентября 2003 г.

Проведено экспериментальное и теоретическое исследование многократного малоуглового рассеяния нейтронов при различных концентрациях неупорядоченной полидисперсной системы рассеивающих центров. Экспериментально показано, что при высоких концентрациях (удельный объем рассеивателей $\geq 30\%$) существенную роль играет межчастичная интерференция нейтронных волн, которая сильно влияет на угловое распределение рассеянных нейтронов. Результаты получили качественное обоснование в рамках теории, учитывающей наличие парных корреляций в пространственном расположении рассеивателей.

PACS: 61.12.–q, 61.43.–j

1. Введение. Метод малоуглового рассеяния (МУР) проникающих излучений применяется для исследования объектов, имеющих надатомные размеры [1, 2], таких, как структурные и магнитные неоднородности в твердых телах, коллоидные частицы и взвеси и т.п. Исследование крупномасштабных неоднородностей в последнее время активно ведется с помощью метода ультрамалоуглового рассеяния нейтронов [3–6], основанного на использовании двухкристального спектрометра. Наиболее надежные результаты можно получить при исследовании монодисперсных систем. К сожалению, с подобными системами приходится сталкиваться только при изучении некоторых биологических объектов [7], тогда как твердотельные образцы монодисперсны лишь в исключительных случаях.

В опытах по МУР обычно стремятся использовать однократное рассеяние. Однако в задачах неразрушающего контроля современных материалов приходится использовать толстые образцы, для которых велика кратность рассеяния. В первых попытках описания многократного рассеяния применяли диффузионное приближение [8]. Существенным прогрессом в данной области явилось применение [9, 10] к материаловедческим задачам нейтронной физики известной теории Мольер–Бете [11, 12], развитой первоначально для рассеяния заряженных частиц.

Из анализа результатов работ [13, 14] возник вопрос о необходимости учета в многократном малоугловом рассеянии нейтронов интерференции волн,

рассеянных разными зернами (эффект межчастичной интерференции – МЧИ). В однократном рассеянии фотонов это явление хорошо известно со времен классических работ Цернике, Принса и Дебая [1].

Экспериментально влияние корреляции зерен на многократное МУР нейтронов (ММУРН) еще почти не изучено. Заполнение данного пробела является целью настоящей работы. Мы провели прямое исследование зависимости дифференциального сечения ММУРН на полидисперсных образцах от величины среднего расстояния между рассеивающими центрами. Работа выполнена методом двухкристального спектрометра в условиях, когда кратность рассеяния нейтронов $N_s = l/l_c \lesssim 10$. Здесь l – толщина образца, а l_c – длина свободного пробега. Опыты проводились на порошке алюминия, калиброванного (как и в [13]) по размеру гранул. Для изменения расстояния между зернами Al исходный порошок смешивался в различных пропорциях с порошком из сплава TiZr, обладающего “нулевой” когерентной длиной рассеяния нейтронов.

Предварительные результаты данной работы были ранее опубликованы в [15, 16]. Основным результатом сообщения [15] состоял в том, что с ростом плотности зерен n (числа зерен в единице объема) при неизменном N_s происходит сужение экспериментально измеренного углового распределения $I(\vartheta)$ рассеянных нейтронов. Этот эффект не описывается стандартной теорией [11, 12, 9, 10]. Он получил качественное объяснение в статье [16], где были построены общие контуры теории ММУРН в умеренно плотных средах с коррелированным расположением зерен и проведены

¹⁾e-mail: dzheparov@itep.ru

расчеты для монодисперсных систем. В настоящей работе эти исследования продолжены и, в частности, построена теория ММУРН в полидисперсных средах.

2. Теория. Как и в работе [16], мы используем эйкональное приближение, в котором амплитуда рассеяния неполяризованных нейтронов на неполяризованном образце имеет вид

$$f(\mathbf{q}) = \frac{p_0}{2\pi i} \int d^2\rho [S(\rho) - 1] \exp(-i\mathbf{q}\rho),$$

$$S(\rho) = \exp\left(-i \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dz}{v} U(\mathbf{r})\right), \quad \mathbf{r} = (\rho, z), \quad (1)$$

где $\mathbf{p}_0 = (0, 0, p_0)$ – начальный импульс нейтрона, v – его скорость, ρ – прицельный параметр, \mathbf{q} – импульс рассеяния. При этом $\mathbf{q}\mathbf{p}_0 = 0$ и $q \ll p_0$. Нейтроноптический потенциал среды $U(\mathbf{r})$ принимается внутри зерна равным U_0 , а вне – нулю.

Нормированное распределение рассеянных нейтронов удобно представить в форме [16]

$$D(\mathbf{q}) = \int d^2\xi e^{i\mathbf{q}\xi} D(\xi), \quad D(\xi) = \frac{\Sigma(\xi)}{\Sigma_0}, \quad (2)$$

$$\Sigma(\xi) = p_0^2 \int d^2\rho S(\rho - \xi/2) S^+(\rho + \xi/2) \approx \quad (3)$$

$$\approx p_0^2 \cdot A_s \cdot \langle S(-\xi/2) S^+(\xi/2) \rangle, \quad (4)$$

где $\Sigma_0 = \Sigma(\xi = 0)$, A_s – геометрическое поперечное сечение образца, а усреднение в (4) производится по ансамблю конфигураций зерен. Здесь и ниже мы используем один и тот же символ для обозначения функции $D(\mathbf{q})$ и ее фурье-образа $D(\xi)$, различая их по аргументу. При переходе от (3) к (4) предположена самоусредняемость $D(\mathbf{q})$ и опущено влияние граничных эффектов (в частности, нейтроны, рассеянные на среднем потенциале образца, отождествлены с нерассеянными, с этой же точностью распределение $D(\mathbf{q})$ эквивалентно распределению $|f(\mathbf{q})|^2$).

Угловое распределение, измеренное на двухкристальном спектрометре в типичных условиях, представляется соотношением [3]

$$I(q) = \int_{-\infty}^{\infty} dk D_0(q-k) I_0(k) =$$

$$= \frac{1}{\pi} \int_0^{\infty} d\xi \cos(q\xi) D_0(\xi) I_0(\xi), \quad (5)$$

$$D_0(q_1) = \int_{-\infty}^{\infty} dq_2 D(q_1, q_2).$$

Здесь принято, что $D(\mathbf{q}) = D(-\mathbf{q}) = D(q)$, и введена нормированная инструментальная линия $I_0(k) =$

$= I_0(-k)$ и ее фурье-образ $I_0(\xi)$. Как обычно, мы предполагаем, что $D(\mathbf{q})$ и $I_0(k)$ сосредоточены при малых q и k и поэтому пределы интегралов по q и k считаются бесконечными.

Численный эксперимент делился на два этапа – создание реалистической модели образца, использованного в эксперименте, и расчет углового распределения интенсивности ММУРН для этой модели.

На первом шаге вводилось распределение параметров рассеивающих зерен. Мы ограничились гипотезой сферических частиц. Анализ гистограммы, определенной по микрофотографии, показал, что распределение по радиусам зерен в экспериментальных образцах удовлетворительно аппроксимируется функцией

$$w(r) = \frac{3r^2}{R^3} \exp\left(-\left(\frac{r}{R}\right)^3\right) \quad (6)$$

при $R = 1.42(6)$. Значение плотности зерен n связано с экспериментальным фактором заполнения

$$\eta = \frac{4\pi}{3} \langle r^3 \rangle n = m_s/m_0, \quad (7)$$

величина которого при насыпной плотности порошка А1 составляла $\eta_{A1} = 0.61(1)$. Здесь m_s – масса порошка, m_0 – масса сплошного образца, занимающего тот же объем, а усреднение производится по распределению радиусов (6).

В существенной для эксперимента области дифракции, когда $\nu = U_0 r/v \ll 1$, длина свободного пробега l_c определяется соотношением

$$\frac{1}{l_c} = n \langle \sigma_t \rangle = 2\pi n \langle r^2 \nu^2 \rangle =$$

$$= 2\pi n (U_0/v)^2 \langle r^4 \rangle = \frac{3\eta}{2} \left(\frac{U_0}{v}\right)^2 \frac{\langle r^4 \rangle}{\langle r^3 \rangle}. \quad (8)$$

При моделировании радиусам приписывалось сто значений r_j ($0.44 < r_j < 5.0$), получаемых как средние на интервале $(0.01(j-0.5), 0.01(j+0.5))$ по переменной y , равномерно распределенной на $[0,1]$ и определенной соотношением $w(r)dr = dy$. Такой набор радиусов при расчете по формуле (8) приводит к значению $N_s = l/l_c = 9$ для образца А1, соответствующего рис.1. Объем модельного образца выбирался, исходя из требуемой плотности рассеивателей n и реалистического (при доступной скорости вычислений) числа зерен $N_t \gtrsim 1000$. Центры зерен \mathbf{x}_j выбирались в этом объеме случайным образом равномерно. Для расчета

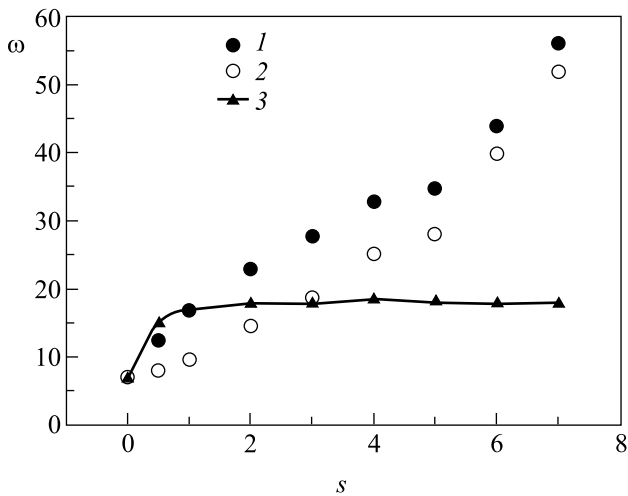


Рис.1. Зависимость ширины ω на полувысоте кривой ММУРН (угл. секунды) от соотношения s масс Al и TiZr при $m_{Al} = 625$ мг: 1 – смесь порошков (опытные данные), 2 – послойное расположение (опытные данные), 3 – расчетная зависимость для смеси

реалистической конфигурации системе приписывался формальный потенциал парного взаимодействия

$$\Phi(\mathbf{x}_1, r_1; \dots; \mathbf{x}_{N_i}, r_{N_i}) = \frac{1}{2} \sum_{ij} \phi_{ij}, \quad (9)$$

$$\phi_{ij} = \vartheta(r_{ij} < r_i + r_j) \frac{r_i + r_j}{r_{ij} + r_i + r_j},$$

где r_j – радиус j -го зерна, $r_{ij} = |\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_j|$ – межцентровое расстояние, а $\vartheta(s)$ – функция Хэвисайда. На границах образца применялось периодическое продолжение. Далее был использован известный итерационный метод (см., например, [17]), в котором каждое зерно последовательно подвергается случайному смещению и полученная конфигурация принимается за новую, если ее потенциальная энергия не больше, чем исходная. Реалистической считалась всякая конфигурация, полученная в этом процессе, если для нее $\Phi(\mathbf{x}_1, r_1; \dots; \mathbf{x}_{N_i}, r_{N_i}) = 0$.

Основные вычисления проведены для области дифракции, при значении борновского параметра $\langle \nu \rangle = 0.3$, и использовалось представление $D(\xi) = (D_m(\xi))^{N_s/N_s^0}$. Здесь $D_m(\xi)$ представляет собой $D(\xi)$ для модельного образца, оно рассчитывалось по формулам (2)-(4), а усреднение в (4) производилось по ρ из (3) в пределах одного образца и по образцам с различной конфигурацией зерен, но одинаковой кратностью рассеяния N_s^0 . В качестве инструментальной линии, в хорошем согласии с экспериментом, использована лоренцева с шириной $\omega_0 = 3.1''$ (см. ниже). По результатам расчетов был построен

график (см. рис.1, линия 1) зависимости ширины спектра ММУРН от разбавления s , связанного с фактором заполнения η соотношением (10).

3. Методика проведения измерений. Эксперименты проводились на универсальном нейтронном дифрактометре, снабженном блоком двойного монохроматора (БДМ) [18], на основе монокристаллов Ge, вырезанных по плоскости (1, 1, 1). Первый из них – мозаичный формирователь нейтронного пучка, второй – совершенный кристалл-монохроматор. Исследуемый образец располагался по ходу луча за БДМ, перед параллельным монохроматору кристаллом-анализатором, также совершенным кристаллом Ge. Нейтроны, отраженные от анализатора, регистрировались ^3He -детектором полного поглощения.

В данном варианте дифрактометр работает как двухкристальный спектрометр с параллельной ориентацией совершенных кристаллов. Подобные спектрометры позволяют проводить измерения при углах рассеяния примерно от 10^{-3} до 10^{-6} рад [19].

Нейтроны высших порядков отражений подавлялись ниже уровня в 1% от основной компоненты специальным монокристаллическим кварцевым фильтром толщиной 100 мм. Вращение кристалл-анализатора осуществлялось с шагом $0.12''$ (угловой секунды). Ширина на половине высоты инструментальной линии составляла $\omega_0 = (3.1 \pm 0.1)''$. Образцами служили порошки Al и TiZr, полученные методом распыления из расплава в среду инертного газа, а также их смеси. Геометрические параметры распределения зерен Al и TiZr определялись по микрофотографиям, как описано в п.2. Характерные размеры зерен порошков TiZr и Al были близки, но фактор заполнения для TiZr составлял $\eta_{TiZr} = 0.405(10)$, а сам порошок TiZr состоял из частично слипшихся гранул.

Порошок твердого раствора TiZr имел состав, соответствующий нулевой амплитуде когерентного рассеяния – $b(\text{TiZr}) = 0$ (в атомных процентах: Ti – 68% и Zr – 32%), и использовался в качестве матрицы-разбавителя для гранул Al.

Порошки засыпались в одинаковые специальные универсальные цилиндрические кассеты диаметром 12 мм. Их входные и выходные окна имели толщину 0.2 мм, и рассеяния нейтронов на пустой кассете замечено не было. Ось образца ориентировалась вдоль нейтронного пучка. Для оценки $b(\text{TiZr})$ был проведен поиск рефракционного контраста [20] на краях образца, изготовленного из TiZr в виде цилиндра диаметром 10 мм, расположенного между кристаллами монохроматора и анализатора и перемещавшегося шагами по 0.1 мм в направлении, перпендикулярном оси

пучка с апертурой 0.1 мм. Отсутствие скачков счета детекторов в моменты пересечения пучка образцом показывает, что $b(\text{TiZr}) = (0 \pm 0.03)b(\text{Ti})$. Однако еще один контрольный эксперимент показал, что при массе TiZr порядка 1000 мг спектр $I(\vartheta)$ для чистого TiZr деформируется по сравнению с инструментальной линией (рис.2, кривая 2). Возможно, это связано

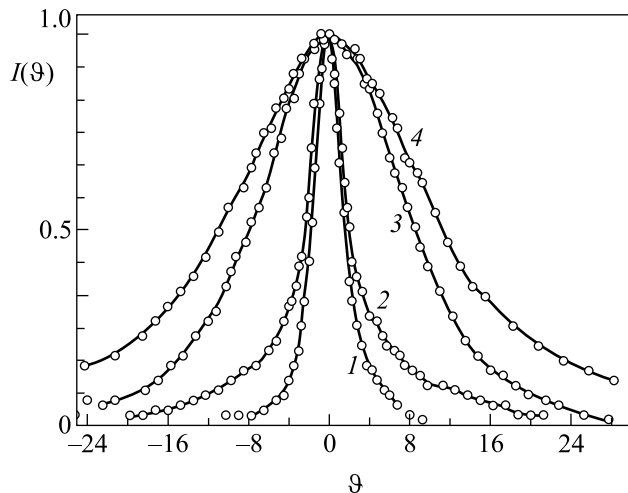


Рис.2. Примеры угловых зависимостей $I(\vartheta)$, получаемых с помощью методики двухкристального спектрометра: 1 – без образца (инструментальная линия); 2 – порошок TiZr при $m_{\text{TiZr}} = 1250$ мг; 3 – порошок Al при $m_{\text{Al}} = 1250$ мг; 4 – смесь порошков Al и TiZr, $m_{\text{Al}} = m_{\text{TiZr}} = 1250$ мг. Линии нормированы на единицу в максимуме

с тем, что поверхность гранул подверглась химическому воздействию, например, окислению, что приводило к дополнительному малоугловому рассеянию. В частности, наши образцы – порошки TiZr – имели черный цвет, тогда как сплав, из которого они были изготовлены, выглядел как серебристый металл с естественной для данного состава плотностью $\rho_{\text{TiZr}}^0 = 5.1 \text{ г/см}^3$. Кроме этого, в спектрах $I(\vartheta)$ при увеличении разбавления s приподнимались крылья линии и сужалась ее вершина, что качественно согласуется с рассеянием на поверхности зерен. Более полное выяснение причины этого дополнительного рассеяния требует отдельного исследования, а в данной работе, для контроля влияния разбавителя, измерения проводились как на смеси порошков Al и TiZr, так и при послыном их расположении, при одинаковых соотношениях масс.

Измерялась зависимость скорости счета (кривая рассеяния) $I(\vartheta)$ нейтронов, отраженных кристаллом-анализатором, от угла его поворота ϑ вокруг оси, перпендикулярной плоскости отражения. Типичные уг-

ловые зависимости представлены на рис.2. Изучалась зависимость ширины линии ω от пространственной концентрации рассеивающих центров.

Образцы – смеси из порошков TiZr и Al готовились путем тщательного перемешивания в ацетоне с последующей сушкой при комнатной температуре в течение суток. Была приготовлена серия образцов с изменяющимся соотношением масс $s = m_{\text{TiZr}}/m_{\text{Al}} = 1, 2, \dots, 7$, и, вместе с образцом из чистого порошка Al ($s = 0$), она позволяла провести измерения в широком диапазоне разбавлений $s = 0 \div 7$ при одной и той же массе порошка Al. Фактор заполнения для разбавленного порошка Al определялся соотношением

$$\eta = \eta_{\text{Al}}/(1 + s\rho_{\text{Al}}/\rho_{\text{TiZr}}) = \eta_{\text{Al}}/(1 + 0.792s), \quad (10)$$

а диапазон изменения объемной доли составлял $\eta = 0.61 \div 0.093$.

4. Результаты и их обсуждение. О возможном влиянии эффекта МЧИ на результаты многократного малоуглового рассеяния нейтронов на порошках Al было сообщено в [13], где наблюдалось систематическое завышение размеров гранул, полученных из данных по ММУРН, по сравнению с реально наблюдаемыми на микрофотографиях. Естественно предположить, что причина этого расхождения состоит в несоответствии теоретической модели, предполагающей акты рассеяния на разных зернах независимыми, реальному объекту – зернам, находящимся в насыпном (без дополнительного уплотнения) состоянии с немалой объемной плотностью $\rho_{\text{Al}} = 1.65(3) \text{ г/см}^3$. Плотность металлического Al равна $\rho_{\text{Al}}^{\text{мет}} = 2.70 \text{ г/см}^3$. Близость этих чисел показывает, что в таком порошке расположение зерен должно быть похоже на их распределение в плотноупакованных системах (подобных, например, жидкостям и их смесям), и рассеяние нейтронов на разных зернах в этом случае уже не независимо. Следовательно, проявление эффекта МЧИ вполне вероятно.

При s -кратном разбавлении порошка Al порошком TiZr фактор заполнения уменьшается согласно (10), а ширина спектра рассеяния растет, как показано на рис.1. В частности, при $s = 1$ относительное увеличение объема смеси составляет ≈ 0.8 , фактор заполнения объема зернами Al уменьшается с $\eta \approx 0.61$ до $\eta \approx 0.34$, а среднее расстояние между зернами Al возрастает только на 22%. Согласно теоретическому расчету, ширина линии ω при этом возрастает почти в три раза и становится близка к значению $\omega(s = \infty)$, что согласуется с ее экспериментальным изменением.

Существенное для двухкристального спектрометра распределение (5) нейтронов по импульсу рассеяния удобно представить в виде

$$D_0(q) = F_s \delta(q) + F_r(q), \quad I(q) = F_s I_0(q) + I_r(q),$$

$$I_r(q) = \int_{-\infty}^{\infty} dk F_r(q-k) I_0(k). \quad (11)$$

От степени разбавления s зависят как вес сингулярной части F_s (доля нерассеянных нейтронов), так и регулярное слагаемое $F_r(q)$. В общем случае (как, например при однократном рассеянии) функция $F_r(q)$ может иметь несколько максимумов. Но если ширина инструментальной линии сравнима с характерным размером этой структуры, то свертка (11) существенно сглаживает ее. При этом ширина функции $I_r(q)$ зависит от s слабо, тогда как $F_s(s) = \exp(-\kappa(s)l/l_c)$, где l_c — длина свободного пробега при отсутствии корреляций, а функция $\kappa(s)$ изменяется более чем в два раза относительно $\kappa(s = \infty) = 1$ [16], определяя, таким образом, сильную (экспоненциальную) зависимость $F_s(s)$ при немалых $N_s = l/l_c$. В результате ширина спектра ω существенно зависит от s в той области параметров, где $F_s/\omega_0 \sim I_r(q = 0)$. Более детальное исследование этого вопроса будет опубликовано отдельно.

5. Выводы и заключение. Проведенное в работе теоретическое и экспериментальное исследования ММУРН при факторах заполнения $\eta \geq 9\%$ и кратностях рассеяния $N \sim 5 - 10$ показало наличие эффектов МЧИ. Получено, что в диапазоне $\eta \sim 30\% - 60\%$ эффект МЧИ оказывает значительное влияние на линию ММУРН, изменяя ее ширину в 2 – 3 раза. Таким образом, применение теории Мольера–Бете в данных условиях дает существенное завышение размеров рассеивателей и, строго говоря, неправомочно.

Теоретические результаты данной работы показывают возможность численного моделирования спектров ММУРН для плотных полидисперсных образцов, что открывает дорогу для широкого применения микроскопических расчетов при решении соответствующих материаловедческих задач.

В заключение Н.О.Е. и Ю.И.С. выражают благодарность С.В.Малееву и Б.П.Топервергу за полез-

ные обсуждения и моральную поддержку, а А.О.Эйдлину, С.К.Матвееву за помощь в проведении экспериментов и обработке результатов.

Работа поддерживалась грантами Минобразования # Т02-07.3-1375, Президента РФ # НШ-1907.2003.2, # МК-2253-2003-02 и Российского фонда фундаментальных исследований # 00-02-17837, # 03-02-17126.

1. Д.И. Свергун, Л.А. Фейгин, *Рентгеновское и нейтронное малоугловое рассеяние*, М.: Наука, 1986.
2. H. Glattli, *Physica* **B297**, 273 (2001).
3. Ю.Г. Абов, Д.С. Денисов, Ф.С. Джепаров и др., *ЖЭТФ* **114**, 2194 (1998).
4. A. P. Radlinski, E. Z. Radlinska, M. Agamalian et al., *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3078 (1999).
5. H. Takeshita, T. Kanaya, K. Nishida, and K. Kaji, *Phys. Rev.* **E61**, 2125 (2000).
6. M. Hainbuchner, M. Baron, F. Lo Celso et al., *Physica* **A304**, 220 (2002).
7. Ю.М. Останевич, И.Н. Сердюк, *УФН* **137**, 85 (1983).
8. D. L. Dexter and W. W. Beeman, *Phys. Rev.* **76**, 1782 (1949).
9. С.В. Малеев, Б.П. Топерверг, *ЖЭТФ* **78**, 315 (1980).
10. J. Schelten and W. Schmatz, *J. Appl. Cryst.* **13**, 385 (1980).
11. G. Moliere, *Z. Naturforsch.* **3a**, 78 (1948).
12. G. Bethe, *Phys. Rev.* **89**, 1256 (1953).
13. Ю.И. Смирнов, А.О. Пекшев, А.О. Эйдлин и др., *ФТТ* **33**, 2273 (1991).
14. Ю.Г. Абов, Ю.И. Смирнов, Д.С. Денисов и др., *ФТТ* **34**, 1408 (1992).
15. Ю.Г. Абов, Ю.И. Смирнов, Д.С. Денисов и др., *Сб. докл. Нац. конф. РСНЭ*, Дубна 1997, т. 2, с. 115.
16. Ф.С. Джепаров, Д.В. Львов, *Письма в ЖЭТФ* **72**, 518 (2000).
17. Р. Балеску, *Равновесная и неравновесная статистическая механика*, М.: Мир, 1978.
18. Ю.Г. Абов, Н.О. Елютин, Д.С. Денисов и др., *ПТЭ* № 6, 67 (1994).
19. Ю.Г. Абов, Н.О. Елютин, А.Н. Тюлюсов, *ЯФ* **65**, 1989 (2002).
20. К.М. Подурец, В.А. Соменков, С.Ш. Шильштейн, *ЖТФ* **59**, 115 (1989).