

# ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ДАННЫХ МАЛОУГЛОВОГО РАССЕЙЯНИЯ НЕЙТРОНОВ НА СПЛАВЕ NiCrAl В РАМКАХ КВАНТОВОЙ МЕХАНИКИ И В КЛАССИЧЕСКОЙ МОДЕЛИ ПОЛИДИСПЕРСНЫХ ШАРОВ

С. И. Поташев, В. П. Заварзина, А. А. Афонин

*Модифицированный потенциал Юкавы используется для того, чтобы подогнать параметры модели ядра под данные малоуглового рассеяния нейтронов на сплаве никель-хром-алюминий для величины произведения переданного импульса  $Q$  и эффективного радиуса ядра  $R$ , удовлетворяющих условию  $QR \leq \hbar$ . Аналитическая модель полидисперсных шаров применяется для расчета интенсивности рассеяния нейтронов и определения наиболее вероятного макроскопического радиуса шара  $R_0$  при  $QR_0 \geq 3\hbar$ .*

**Ключевые слова:** рассеяние нейтронов, борновское приближение, классическое рассеяние на шарах.

1. *Введение.* Для определения структурных параметров материала исследуется малоугловое рассеяние нейтронов с длиной волны  $\lambda = 4.5 \text{ \AA}$ , которая соответствует скорости нейтронов 890 м/с. Угловое распределение интенсивности рассеянных нейтронов регистрируется двумерным позиционно-чувствительным детектором. В результате измеряется зависимость интенсивности рассеянных нейтронов от величины переданного импульса  $Q = mv \sin \theta$ , где  $m$  – масса нейтрона  $v$  – его скорость,  $\theta$  – угол рассеяния.

При малых значениях величин, удовлетворяющих условию  $QR \leq \hbar$ , корректно описать экспериментальные данные с помощью классических представлений (приближения Гинье) не представляется возможным (см. [1]). Поэтому в настоящей работе для вычисления сечения рассеяния тепловых нейтронов на ядрах мы используем борновское приближение и модель ядра с модифицированным потенциалом Юкавы.

При больших значениях величины  $Q$ , удовлетворяющих условию  $QR_0 \geq 3\hbar$ , структура материала может быть описана в рамках модели, в которой предполагается, что образец состоит из нескольких фракций частиц (кристаллитов) сферической формы с наиболее вероятным радиусом  $R_0$ . Также предполагается, что материал образца содержит несколько фракций сферических кристаллитов с различными распределениями по радиусу. Далее, аналитически вычисляется интенсивность  $I$  в зависимости от переданного импульса  $Q$  с несколькими свободными параметрами, которые оптимизируются для наилучшего описания экспериментальных данных.

2. *Квантово-механическое описание рассеяния нейтронов на ядрах.* Амплитуда рассеяния  $f(Q)$  в борновском приближении

$$f(Q) = -\frac{m}{2\pi\hbar^2} \int V(r) \exp\left(-i\frac{\vec{Q}\vec{r}}{\hbar}\right) d^3x = \frac{2m}{\hbar^2} \frac{\hbar}{Q} \int_0^\infty V(r) \sin\left(\frac{Qr}{\hbar}\right) \cdot r dr, \quad (1)$$

где  $Q$  – переданный импульс. Введя переменную переданного импульса  $s = \frac{Q}{\hbar}$ , выраженную в единицах обратной длины, мы получим

$$f(s) = -\frac{m}{2\pi\hbar^2} \int V(r) \exp(-i\vec{s}\vec{r}) d^3x = \frac{2m}{\hbar^2 s} \int_0^\infty V(r) \sin(sr) \cdot r dr. \quad (2)$$

Потенциал каждого из ядер исследуемого материала образца записываем в форме потенциала Юкавы

$$V_k(r) = \frac{g}{r} \exp(-r/R_k), \quad (3)$$

где индекс  $k = 0, 1, 2$  соответствует ядрам Ni, Cr, Al. Здесь  $g$  – эффективный ядерный заряд,  $R_k = \xi A_k^{1/3} 10^{-13} \text{м}$  – эффективный радиус ядра, где  $A_k$  – атомный вес соответствующего ядра,  $\xi$  – поправочный множитель радиусов ядер. Величины  $g$  и  $\xi$  определяются как свободные параметры, наиболее соответствующие экспериментальным данным.

Дифференциальное сечение для каждого из ядер

$$\frac{d\sigma_k}{d\Omega} = |f_k(s)|^2 = \frac{4g^2\xi^4 m^2}{\hbar^4} \frac{P_k R_k^4}{(1 + \xi^2 R_k^2 s^2)^2}. \quad (4)$$

Угловое распределение интенсивности рассеяния, которое мы измеряем в эксперименте

$$\begin{aligned} \frac{dI}{d\Omega} &= I_0 L \left( n_0 \frac{d\sigma_0}{d\Omega} + n_1 \frac{d\sigma_1}{d\Omega} + n_2 \frac{d\sigma_2}{d\Omega} \right) = I_0 L (n_0 |f_0(s)|^2 + n_1 |f_1(s)|^2 + n_2 |f_2(s)|^2) = \\ &= \frac{4I_0 L \rho N_A m^2}{\hbar^4} \cdot g^2 \xi^4 \sum_{k=0}^2 \frac{P_k}{A_k} \frac{R_k^4}{(1 + \xi^2 R_k^2 s^2)^2}. \end{aligned} \quad (5)$$

Здесь  $m$  – масса нейтрона,  $L$  – толщина образца,  $I_0$  – интенсивность падающих нейтронов,  $s$  – приведенный переданный импульс,  $N_A = 6.02 \cdot 10^{23}$  моль $^{-1}$  – число Авогадро,  $\rho$  – плотность материала образца,  $n_k = \rho N_A \frac{P_k}{A_k}$  – концентрация ядер элемента сорта  $k$ ,  $P_k$  – массовая доля элемента сорта  $k$ . В сплаве NiCrAl массовые доли равны:  $P_0 = 0.58$ ,  $P_1 = 0.39$  и  $P_2 = 0.03$  и атомные веса ядер составляют  $A_0 = 0.0587$  кг/моль,  $A_1 = 0.052$  кг/моль и  $A_2 = 0.027$  кг/моль. На рис. 1 приведено описание экспериментальных данных для сплава NiCrAl: сплошная кривая – расчет по формуле (5), штриховая кривая – расчет в приближении Гинье. Наиболее вероятные значения параметров  $g = 2.473 \pm 0.05$ ,  $\xi = 28.3 \pm 0.5$ . Наиболее вероятный радиус сферы в приближении Гинье составляет  $R = 67.2 \pm 2.3 \text{ \AA}$ . Видно, что квантово-механическое описание гораздо лучше соответствует экспериментальным данным малоуглового рассеяния при малых величинах  $s$ . Оно дает конечное значение сечения в пределе при  $s \rightarrow 0$ .

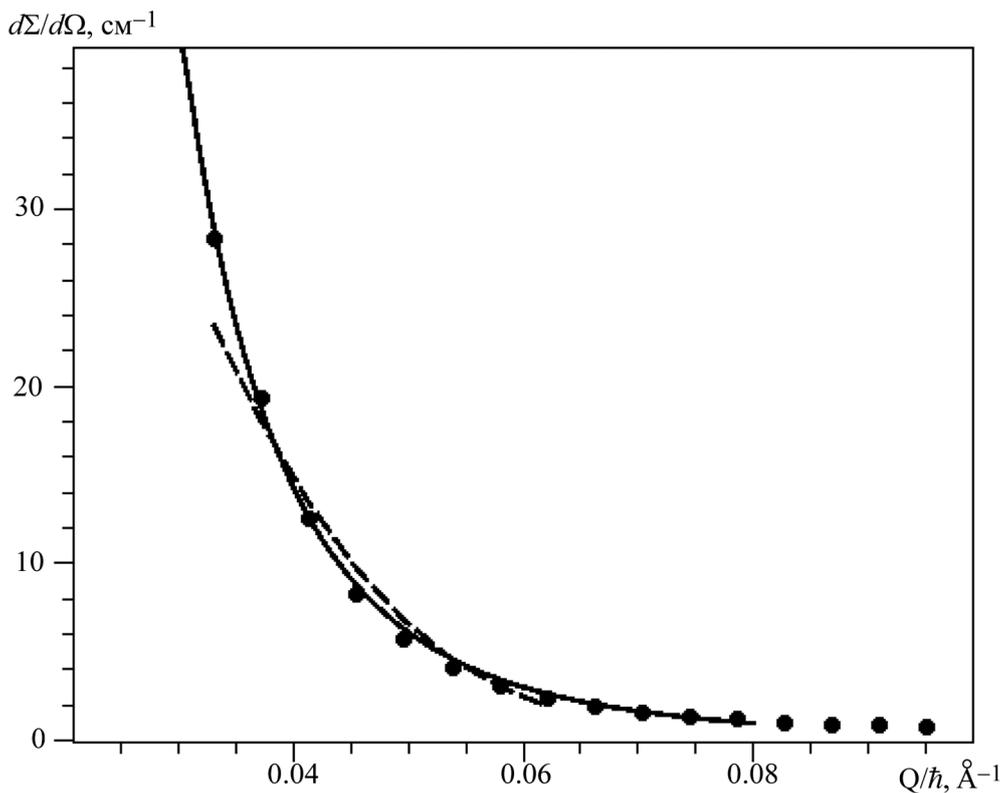


Рис. 1: Экспериментальный спектр малоуглового рассеяния нейтронов с длиной волны  $4.5 \text{ \AA}$  на сплаве NiCrAl и результат аппроксимации начального участка от  $\approx 0.03 \text{ \AA}^{-1}$  до  $\approx 0.1 \text{ \AA}^{-1}$  этого спектра борновским приближением с потенциалом Юкавы (сплошная линия) и в приближении Гинье (пунктирная линия).

Отметим, что при малых величинах  $s$  в предположении строго одинаковых частиц получаем квадратичную зависимость от  $s$ , как и в приближении Гинье, которое не реализуется в случае наличия распределения по радиусам макроскопических частиц.

Разлагая (5) в ряд при малых  $s$ , получим квантово-механический аналог формулы Гинье:

$$\begin{aligned} \frac{dI}{d\Omega} &= \frac{4I_0 L \rho N_A m^2}{\hbar^4} g^2 \xi^4 \sum_{k=0}^2 \frac{P_k}{A_k} \frac{R_k^4}{[1 + 2(s\xi R_k)^2 + (s\xi R_k)^4]} \approx \\ &\approx \frac{4I_0 L \rho N_A m^2}{\hbar^4} g^2 \xi^4 \left( \sum_{k=0}^2 \frac{P_k R_k^4}{A_k} \right) \left( 1 - 2s^2 \frac{\sum_{k=0}^2 P_k R_k^6}{\sum_{k=0}^2 P_k R_k^4} \right). \end{aligned} \quad (6)$$

И при больших величинах  $s$  получаем зависимость  $\sim 1/s^4$  как и в законе Порода, который справедлив в предположении строго одинаковых частиц и также не реализуется для наличия распределения макроскопических частиц:

$$\frac{dI}{d\Omega} = \frac{4I_0 L \rho N_A m^2}{\hbar^4} g^2 \xi^4 \sum_{k=0}^2 \frac{P_k}{A_k} \frac{R_k^4}{[1 + 2(s\xi R_k)^2 + (s\xi R_k)^4]} \approx \frac{4I_0 L \rho N_A m^2}{\hbar^4} \frac{g^2}{s^4} \left( \sum_{k=0}^2 \frac{P_k}{A_k} \right). \quad (7)$$

3. *Макроскопическое описание в модели шаров.* Угловое распределение интенсивности рассеяния в этой модели

$$I = \frac{d\Sigma}{d\Omega} = A \int_0^\infty f(R) \Phi^2(sR) \left( \frac{4\pi R^3}{3} \right)^2 dR, \quad A = n(\rho_{\text{ч}} - \rho_{\text{м}})^2, \quad (8)$$

где  $\Sigma$  – макроскопическое сечение материала образца,  $\Omega$  – телесный угол,  $n$  – концентрация молекул,  $\rho_{\text{ч}}$  – плотность частиц,  $\rho_{\text{м}}$  – плотность материала матрицы,  $f(R)$  – функция распределения по радиусам частиц,  $\Phi$  – формфактор,  $s$  – переданный импульс,  $R$  – радиус частицы.

Применяя формулы, приведенные в работе [1] для шара и заменив  $t = sR$ , получаем распределение интенсивности по переданному импульсу в модели шаров:

$$I(s) = \frac{16\pi^2}{s^6} \int_0^\infty f(R) [\sin(sR) - sR \cos(sR)]^2 dR = \frac{16\pi^2}{s^6} \int_0^\infty f(t) (\sin t - t \cos t)^2 dt. \quad (9)$$

3.1. *Интенсивность рассеяния для распределения Шульца–Цимма.* В качестве распределения по размерам шаров выбирается нормированная на единицу плотность распределения вида:

$$df(R) = \frac{1}{\Gamma(k+1)\sigma^{k+1}} R^k e^{-\frac{R}{\sigma}} dR, \quad (10)$$

где использован табличный интеграл 860.07 из книги [2]. Тогда распределение интенсивности при рассеянии на шарах для распределения Шульца–Цимма имеет вид:

$$I(s) = \frac{1}{\Gamma(k+1)\sigma^{k+1}} \frac{(4\pi)^2}{s^6} \int_0^\infty R^k e^{-\frac{R}{\sigma}} [\sin(sR) - sR \cos(sR)]^2 dR. \quad (11)$$

Вводим безразмерные величины:  $a = 1/(s\sigma)$  и  $t = sR$  и получаем

$$I(s) = \frac{16\pi^2 a^{k+1}}{k!s^6} \int_0^\infty t^k e^{-at} (\sin t - t \cos t)^2 dt. \quad (12)$$

После длинных, но несложных преобразований, получим решение интеграла (12) [3]

$$\begin{aligned} \int_0^\infty t^k e^{-at} (\sin t - t \cos t)^2 dt = & \frac{k!}{2a^{k+1}} - \frac{\Gamma(k+1) \cos[(k+1)\theta]}{2(a^2+4)^{\frac{k+1}{2}}} - \\ & - \frac{\Gamma(k+2) \sin[(k+2)\theta]}{2(a^2+4) \frac{k+2}{2}} + \frac{(k+2)!}{2a^{k+3}} + \frac{\Gamma(k+3) \cos[(k+3)\theta]}{2(a^2+4) \frac{k+3}{2}}. \end{aligned} \quad (13)$$

При условии  $k \in \mathbb{Z}, k \geq 1$  получим  $\Gamma(k+1) = k!$ ,  $\Gamma(k+2) = (k+1)!$  и, обозначив  $r = \sqrt{a^2+4}$ ,  $\Theta_1 = (k+1)\theta$ ,  $\Theta_2 = (k+2)\theta$ ,  $\Theta_3 = (k+3)\theta$ , получаем распределение интенсивности при рассеянии на шарах для распределения Шульца–Цимма:

$$I(s) = \frac{8\pi^2}{s^6} \left\{ 1 + \frac{k^2 + 3k + 2}{a^2} - \left(\frac{a}{r}\right)^{k+1} \left[ \cos \Theta_1 + (k+1) \left( \frac{\sin \Theta_2}{r} - \frac{(k+2) \cos \Theta_3}{r^2} \right) \right] \right\}. \quad (14)$$

*3.2. Интенсивность рассеяния для гауссовского распределения радиусов шаров.* В качестве распределения по размерам шаров выбирается нормированная на единицу плотность распределения вида:

$$df(R) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} e^{-\frac{(R-R_0)^2}{2\sigma^2}} dR, \quad \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \int_0^\infty e^{-\frac{(R-R_0)^2}{2\sigma^2}} dR = 1. \quad (15)$$

Интенсивность для гауссовского распределения вычисляется по формуле

$$I(s) = \frac{(4\pi)^2}{s^6} \int_0^\infty \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} e^{-\frac{(R-R_0)^2}{2\sigma^2}} [\sin(sR) - sR \cos(sR)]^2 dR. \quad (16)$$

Вычисления удобно проводить в безразмерных единицах заменой  $t = sR$  и  $t_0 = sR_0$ .

$$I(s) = \frac{(4\pi)^2}{s^7} \frac{\sqrt{s}}{\sqrt{2\pi s\sigma}} \int_0^\infty e^{-\frac{(t-t_0)^2}{2s^2\sigma^2}} (\sin t - t \cos t)^2 dt = \frac{16\pi^2}{\sqrt{2\pi s^7}} \frac{I_0}{\sigma}, \quad (17)$$

где  $s$  – переданный импульс,  $R$  и  $R_0$  – текущий и наиболее вероятный радиус шара,  $\sigma$  – дисперсия распределения шаров по радиусам.

Здесь

$$\begin{aligned} I_0 = & \frac{s\sigma}{2} \sqrt{\frac{\pi}{2}} \left( 1 + t_0^2 - 2\sqrt{\frac{2}{\pi}} s\sigma t_0 + s^2\sigma^2 \right) + s^2\sigma^2 [t_0 \cos 2t_0 - (1 + s^2\sigma^2) \sin 2t_0] - \\ & - \frac{s\sigma}{2} \sqrt{\frac{\pi}{2}} e^{-2s^2\sigma^2} \{ [1 - t_0^2 + s^2\sigma^2(3 + 4s^2\sigma^2)] \cos 2t_0 + (1 + 2s^2\sigma^2) 2t_0 \sin 2t_0 \} + \\ & + \frac{s\sigma}{\sqrt{2}} F(s\sigma\sqrt{2}) \{ [1 - t_0^2 + s^2\sigma^2(3 + 4s^2\sigma^2)] \sin 2t_0 - (1 + 2s^2\sigma^2) 2t_0 \cos 2t_0 \}, \quad (18) \end{aligned}$$

где функция  $F(y)$  выражается через интеграл или ряд

$$F(y) = \frac{1}{2} \int_0^\infty e^{-\frac{t^2}{4}} \sin(yt) dt = \sum_{k=0}^{\infty} \frac{(-1)^k 2^k}{(2k+1)!!} y^{2k+1}. \quad (19)$$

*3.3. Интенсивность рассеяния для распределения Рэлея.* Распределение интенсивности по величине переданного импульса при рассеянии на системе шаров с распределением Рэлея по радиусам имеет вид:

$$I(s) = \frac{16\pi^2}{s^6} \int_0^\infty \frac{R}{\sigma^2} e^{-\frac{R^2}{2\sigma^2}} [\sin(sR) - sR \cos(sR)]^2 dR,$$

где

$$\int_0^\infty \frac{R}{\sigma^2} e^{-\frac{R^2}{2\sigma^2}} dR = 1. \quad (20)$$

Решая интеграл, получим интенсивность рассеяния для распределения Рэлея:

$$I(s) = \frac{16\pi^2}{s^6} I_0 = \frac{16\pi^2}{s^6} \left\{ \frac{3}{4} + 2s^2\sigma^2 - s\sigma \left[ \frac{5}{\sqrt{2}} + s\sigma (3 + 4s^2\sigma^2) \right] F(s\sigma\sqrt{2}) \right\}. \quad (21)$$

4. *Анализ результатов.* Как было показано выше, при малых переданных импульсах для описания экспериментальных данных малоуглового рассеяния нейтронов необходимо использовать квантово-механический подход. В диапазоне переданных импульсов  $s = \frac{Q}{\hbar}$  от  $\approx 0.06 \text{ \AA}^{-1}$  до  $\approx 0.13 \text{ \AA}^{-1}$  было проведено моделирование экспериментального спектра малоуглового рассеяния нейтронов с длиной волны  $4.5 \text{ \AA}$  на сплаве NiCrAl в классическом представлении рассеяния на шарах с различными распределениями для разных фракций. Результаты представлены на рис. 2.

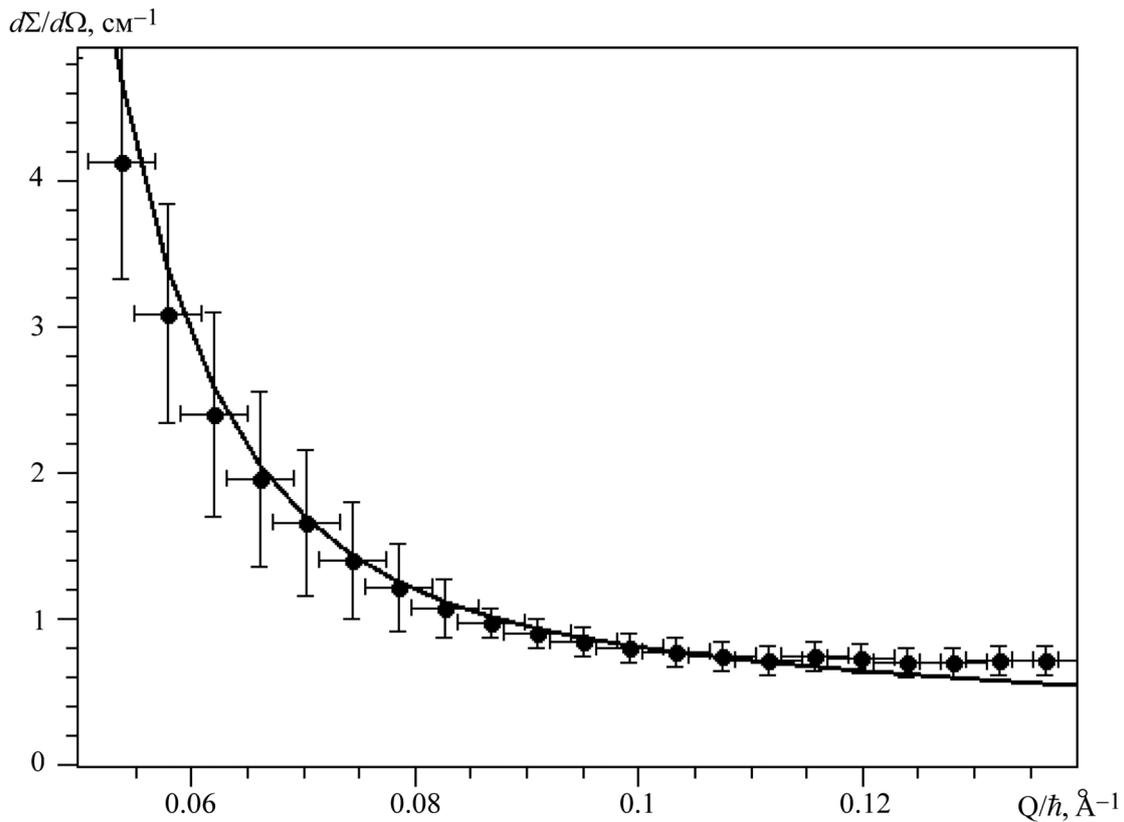


Рис. 2: Моделирование экспериментального спектра малоуглового рассеяния нейтронов с длиной волны  $4.5 \text{ \AA}$  на сплаве NiCrAl и результат аппроксимации второго участка от  $\approx 0.06 \text{ \AA}^{-1}$  до  $\approx 0.13 \text{ \AA}^{-1}$  этого спектра суперпозицией пяти фракций шаров с различными распределениями (см. текст).

В результате анализа было обнаружено, что для исследуемого экспериментально спектра основной вклад в рассеяние вносит фракция частиц, описываемая распределением Шульца–Цимма (11) с наиболее вероятным радиусом частиц  $46 \text{ \AA}$ . Вторая фракция описывается тремя распределениями Гаусса (16) с наиболее вероятными раз-

мерами 10, 11 и 9 Å. Третья, малая фракция состоит из частиц с распределением по закону Рэлей (21) с наиболее вероятным радиусом 5 Å. Результаты расчетов приведены в табл. 1.

Т а б л и ц а 1

*Результаты аппроксимации экспериментальных данных набором распределений по радиусам макроскопических частиц*

| Распр. фракции | Вклад, см <sup>-1</sup> | Радиус макс., Å | Диспер., Å | Степень | Ослабл.   |
|----------------|-------------------------|-----------------|------------|---------|-----------|
| Шульц–Цимм     | 12.2963018              | 46.35           |            | 2       | 0.0431426 |
| Рэлей          | 0.0006190               | 5               | 0.4100617  |         |           |
| Гаусс          | 0.0429991               | 10.1397037      | 0.4        |         |           |
| Гаусс          | 0.0417457               | 11.1991441      | 0.41       |         |           |
| Гаусс          | 0.0426561               | 9.2245972       | 0.42       |         |           |

5. *Выводы.* 1. Показано, что квантово-механический подход в модели ядра с потенциалом Юкавы для расчета интенсивности рассеяния нейтронов при малом переданном импульсе лучше описывает спектр малоуглового рассеяния, чем классическая модель Гинье.

2. В модели шаров вычислена интенсивность рассеяния в зависимости от переданного импульса для суперпозиции различных распределений по размерам шаров: Гаусса, Рэлей и Шульца–Цимма.

3. Анализ малоуглового рассеяния нейтронов на сплаве NiCrAl позволил определить правильный характерный размер частиц образца 46 Å, который существенно отличается от величины 67 Å, полученного с помощью классического приближения Гинье.

Авторы выражают искреннюю благодарность Инне Владимировне Сурковой за полезные советы.

#### Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] Д. И. Свергун, Л. А. Фейгин, *Рентгеновское и нейтронное малоугловое рассеяние* (М., Наука, 1986).
- [2] Г. Б. Двайт, *Таблицы интегралов и другие математические формулы*. Пер. с англ. 2-е изд., испр. (М., Наука, 1966).
- [3] А. А. Афонин, А. В. Царев, В. С. Литвин, С. И. Поташев, Препринт ИЯИ РАН 1327/2012 (ИЯИ, Москва, 2012).

Поступила в редакцию 30 января 2017 г.