

УДК 53.07

СПЕКТРОМЕТР НЕЙТРОНОВ В СКОЛЬЗЯЩЕЙ ГЕОМЕТРИИ С РЕГИСТРАЦИЕЙ НЕЙТРОНОВ И ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ

© 2019 г. В. Д. Жакетов¹, А. В. Петренко¹, С. Н. Вдовичев², В. В. Травкин²,
А. Чик³, Ю. Н. Копач¹, Ю. М. Гледенов¹, Э. Сансарбаяр¹,
Н. А. Гундорин¹, Ю. В. Никитенко^{1, *}, В. Л. Аксенов^{1, 4}

¹Объединенный институт ядерных исследований, 141980 Дубна, Московская область, Россия

²Институт физики микроструктур, 603087 Нижний Новгород, Россия

³Институт ядерных исследований Венгерской академии наук, Н-4001 Дебрецен, Венгрия

⁴Национальный исследовательский центр “Курчатowski институт”, 123098 Москва, Россия

*E-mail: nikiten@nfj.jinr.ru

Поступила в редакцию 16.11.2018 г.

После доработки 18.12.2018 г.

Принята к публикации 18.12.2018 г.

На спектрометре нейтронов РЕМУР, расположенном на канале № 8 реактора ИБР-2, установлена ионизационная камера. В камеру помещена слоистая структура, содержащая слой исследуемого изотопа толщиной несколько нанометров. Пучок нейтронов входит в камеру и падает на структуру. Отраженный и прошедший структуру пучки нейтронов регистрирует детектор, расположенный вне камеры. Часть падающих на структуру нейтронов захватывается ядрами исследуемого изотопа. В результате генерируется вторичное излучение в виде заряженных частиц, которые регистрирует ионизационная камера. Зависимости интенсивностей нейтронов и заряженных частиц от переданного волнового вектора нейтронов используются для определения пространственных зависимостей потенциала взаимодействия нейтронов со всей структурой и со слоем исследуемого изотопа. Описан нейтронный спектрометр в скользящей геометрии, с помощью которого при исследовании слоистых структур регистрируют нейтроны и заряженные частицы. Приведены результаты тестирования спектрометра с использованием структур, содержащих изотоп ⁶Li.

Ключевые слова: нейтронная рефлектометрия, слоистые наноструктуры.

DOI: 10.1134/S0207352819060155

ВВЕДЕНИЕ

Рефлектометрия нейтронов — метод измерения с нанометровым разрешением пространственной зависимости (профиля) потенциала взаимодействия нейтронов со слоистой структурой [1]. Потенциал взаимодействия, определяющий прохождение (отражение, пропускание и поглощение) нейтронов через слоистую структуру, представляет собой сумму потенциалов взаимодействия нейтронов с изотопами элементов структуры. Для получения пространственного распределения плотности отдельного изотопа необходимо знать потенциал взаимодействия нейтронов с изотопом. Это актуально, например, при изучении явлений, обусловленных взаимодействием двух контактирующих между собой слоев [2, 3]. Задачу нахождения пространственного распределения плотности изотопов решает изотопно-идентифицирующая рефлектометрия нейтронов [4]. Ее сущность заключается, во-первых, в том, что кроме нейтронов регистрируется вто-

ричное излучение (заряженные частицы, гамма-кванты, а также нейтроны, испытавшие переворот спина), возникающее после захвата нейтронов ядрами изотопа. Во-вторых, в структуре формируются нейтронные стоячие волны [5, 6]. Неоднородная плотность нейтронных стоячих волн, различная для разных длин волн нейтронов, позволяет из длинноволновых зависимостей интенсивности первичного (нейтроны) и вторичного излучения определять пространственный профиль изотопа. О регистрации вторичного излучения в режиме генерации усиленных стоячих нейтронных волн в слоистой структуре впервые сообщалось в [7]. Использовали структуры с поглощающим нейтроны слоем гадолиния толщиной несколько сотен ангстрем. При такой большой толщине поглощающего нейтроны слоя режим усиления отсутствует, что исключает возможность определения пространственного положения слоя. Ранее [8–10] были проведены исследования со структурой Gd/Fe, в которой изна-

чальная толщина слоя из атомов естественного гадолиния была небольшой и составляла 5 нм. Было показано, что режим стоячих волн реализуется. Было обнаружено, что значительная часть гадолиния присутствует в виде слоя оксида Gd_2O_3 толщиной 17 нм, а слой оставшегося гадолиния толщиной 3.5 нм и слой железа толщиной порядка 10 нм образуют двухслойную магнитно-неколлинearную структуру, в которой угол между векторами \mathbf{B} и \mathbf{H} изменяется в пределах 50° .

В [11, 12] была исследована структура ${}^6LiF(20 \text{ нм})/Ti(150 \text{ нм})/Cu(100 \text{ нм})/стекло$. В структуре генерировался режим усиленных стоячих нейтронных волн. В результате измерения отражения нейтронов от структуры было получено пространственное распределение потенциала их взаимодействия со структурой. В [13] исследовали магнитную структуру $Ti(30 \text{ нм})/Co(6 \text{ нм})/Ti(200 \text{ нм})/Cu(100 \text{ нм})/стекло$. В структуре генерировался режим стоячих нейтронных волн. Вторичным излучением в данном случае были отраженные нейтроны, испытавшие переворот спина. Такие нейтроны появлялись вследствие того, что магнитное поле было ориентировано под ненулевым углом к плоскости слоя. В результате было получено пространственное распределение магнитных атомов кобальта.

В настоящей работе описан созданный на спектрометре поляризованных нейтронов РЕМУР реактора ИБР-2 канал регистрации заряженных частиц. Приведены результаты тестовых измерений, демонстрирующие возможности метода.

БАЗОВЫЕ СООТНОШЕНИЯ

Рассмотрим слоистую в направлении оси Z и однородную в плоскости XY структуру. Она характеризуется потенциалом взаимодействия нейтронов с веществом $U(z) = V(z) - iW(z)$. Распространение нейтронов в слоистой структуре описывается уравнением Шредингера, решением которого являются нейтронные волновые функции в направлении падения нейтронов на структуру $\psi_d(z)$ и обратном направлении $\psi_b(z)$. Экспериментально измеряемые коэффициенты отражения $R = J_R/J_0$ и пропускания $T = J_T/J_0$ нейтронов, где J_0 , J_R и J_T – интенсивности падающих, отраженных и прошедших структуру нейтронов соответственно, можно найти через волновые функции, описывающие распространение нейтронов в структуре толщиной L :

$$\begin{aligned} R &= (k_{zf}(0)/k_z) |\psi_b(0)/\psi_d(0)|^2, \\ T &= (k_{zf}(L)/k_z) |\psi_d(L)/\psi_d(0)|^2, \end{aligned} \quad (1)$$

где $\psi_b(0)$ и $\psi_d(L)$ определяются суммарным потенциалом взаимодействия $U(z) = \sum U_{i,j}(z)$, $U_{i,j}(z)$ – парциальный потенциал взаимодействия нейтронов

с изотопом i -типа, в результате которого испускается излучение j -типа.

Интенсивность вторичного излучения $J_{i,j}(k_z)$ зависит от плотности нейтронов в структуре $n(k_z, z) = |\psi(k_z, z)|^2 = |\psi_d(k_z, z) + \psi_b(k_z, z)|^2$:

$$\begin{aligned} J_{i,j}(k_z) &= v_{0z} A_j M_{i,j}, \\ M_{i,j} &= (v/v_{0z}) \sigma_{i,j}(v) \int \eta(k_z, z) N_i(z) dz = \\ &= (2/(v_{0z} \hbar)) \int \eta(k_z, z) W_{i,j}(k, z) dz, \end{aligned} \quad (2)$$

где $A_j = (\mu_j \Delta \Omega_d / 4\pi) n_0 S$, $M_{i,j}$ – парциальный коэффициент поглощения нейтронов, $W_{i,j}(z) = (\hbar^2 k / 2m) N_i(z) \sigma(\lambda)$, $\eta(k_z, z) = |\psi(k_z, z)|^2 / |\psi_0|^2$, $v_z = v \sin \theta$, $k_z = k \sin \theta$, v – скорость нейтрона, k – волновой вектор нейтрона, λ – длина волны нейтрона, θ – угол скольжения нейтрона по структуре, $N_i(z)$ – плотность ядер i -го изотопа, μ_j – эффективность регистрации вторичного излучения j -типа, $\Delta \Omega_d$ – телесный угол регистрации вторичного излучения детектором, n_0 – плотность нейтронов на входе в структуру, $S = L_x L_y$ – площадь поверхности структуры в плоскости XY , $\sigma_{ij}(\lambda)$ – сечение взаимодействия нейтронов с ядрами i -го изотопа.

Волновые функции рассчитываются через амплитуды отражения r_d , r_b и пропускания t_d нейтронов:

$$\psi_b(k_z, z) = r_d \psi_d(k_z, z), \quad \psi_d(k_z, z) = (1 - r_b r_d)^{-1} t_d \psi_0, \quad (3)$$

где t_d – амплитуда пропускания нейтронов структурой (из вакуума в вакуум), расположенной до координаты Z , $r_d(r_b)$ – амплитуда отражения от структуры (из вакуума в вакуум), расположенной после (до) координаты Z . Амплитуды отражения и пропускания в случае многослойных структур рассчитывают по рекуррентным соотношениям для амплитуд отдельных слоев [14]. Например, в случае двух слоев, обозначенных индексами “1” и “2”, имеем для амплитуд отражения и пропускания:

$$r_{12} = r_1 + t_1^2 r_2 / (1 - r_1 r_2), \quad t_{12} = t_1 t_2 / (1 - r_1 r_2),$$

где $r_j = r_{jd} + t_{jd} t_{jb} \exp(2ik_z d_j) / (1 - r_{jb}^2 \exp(-2ik_z d_j))$, $t_j = t_{jd} t_{jb} \exp(ik_z d_j) / (1 - r_{jb}^2 \exp(-2ik_z d_j))$, $r_{jd} = (k_z - k_{0z}) / (k_z + k_{0z})$, $r_{jb} = -r_{jd}$, $t_{jd} = 2k_z / (k_z + k_{0z})$, $t_b = 2k_{0z} / (k_z + k_{0z})$, $k_z = (k_{0z}^2 - k_{j,c}^2)^{1/2}$, $k_{j,c}$ – критический волновой вектор нейтронов j -го слоя, k_{0z} – z -компонента волнового вектора нейтронов в вакууме.

Коэффициенты отражения, пропускания и поглощения нейтронов удовлетворяют условию баланса потоков нейтронов:

$$R + T + \sum_{i,j} M_{i,j} = 1. \quad (4)$$

Таким образом, из (1) и (2) можно получить искомое распределение изотопа $N_i(z)$ с точностью, которая зависит от плотности нейтронов $n(k_z, z)$. Пространственное разрешение Δz определяется величиной k_z . Чувствительность к изменению положения слоя изотопа δz зависит от времени измерения и интенсивности первичного и вторичного излучений. Рассмотрим режимы стоячих и усиленных стоячих нейтронных волн. Плотность нейтронов в режиме стоячих нейтронных волн описывается периодической зависимостью от волнового вектора k_z и координаты z :

$$n_{st}(z, k_z) = |\psi(k_z, z)|^2 = (1 - |r_r|)^2 + 4|r_r| \cos^2(k_z z + \varphi_r/2), \quad (5)$$

где r_r и φ_r – амплитуда и фаза отражения нейтронов в структуре. При выводе (5) использовано приближение $k_{Im} < k_{Re}$ ($k_z = k_{Re} + ik_{Im}$) и $|\psi_0|^2 = 1$. Из (5) следует, что максимум плотности нейтронов реализуется при условии:

$$k_z z + \varphi_r/2 = \pi n, \quad n = 0, 1, \dots \quad (6)$$

Из (6) следует, что, с одной стороны, при определенном значении k_z вес (вклад) координат z , удовлетворяющих условию (6), в интенсивность вторичного излучения будет максимальным. С другой стороны, значение k_z , при котором интенсивность максимальна, будет указывать на координату поглощающего нейтроны слоя атомов, ядра которого испускают вторичное излучение.

Для периода стоячей волны из (6) следует, что $T_z = \pi/k_z$. В случае отражателя из меди минимальное значение периода $T_{z, \min} = \pi/k_{Cu} = 34.5$ нм ($k_{Cu} = 0.091$ нм⁻¹). Из него получаем оценку пространственного разрешения $\Delta z \approx T_{z, \min}/10 \approx 3.5$ нм. Разрешение можно увеличить, используя в качестве отражателя нейтронов или монопериодическую структуру, или полипериодическую структуру, так называемое нейтронное суперзеркало. Сейчас для суперзеркала с коэффициентом отражения нейтронов 0.4 получено критическое значение волнового вектора $k_{Sm} = 0.87$ нм⁻¹ ($m = 8$) [15], что соответствует $\Delta z \approx 0.4$ нм.

Плотность усиленных стоячих волн запишем через плотность стоячих волн ($k_{Im} < k_{Re}$ и $k_{Im} < 1/L$):

$$n_{est} = |t_a|^2 n_{st}(z, k_z) / [(1 - |r_a r_r|)^2 + 4|r_a r_r| \sin^2(k_z L + (\varphi_a + \varphi_r)/2)], \quad (7)$$

где индекс “ r ” обозначает отражающий слой, а индекс “ a ” – усиливающий (поверхностный) слой. Из (7) следует, что пространственная зависимость в режиме усиления стоячих волн такая же, как в режиме стоячих волн. Однако плотность

n_{est} может быть больше $n_{st}(k_z)$ при резонансных значениях волнового вектора $k_{z, \text{res}}$:

$$k_{z, \text{res}} L + (\varphi_a + \varphi_r)/2 = \pi n. \quad (8)$$

Условие (8) совпадает с условием брэгговской дифракции на решетке атомов с межплоскостным расстоянием L . При достаточно большом значении L число резонансов большое. В результате будет использован практически тот же рабочий интервал волнового вектора, что и в режиме стоячих волн. Вторичный сигнал и изменение первичного сигнала при резонансах будут большими, что обеспечит увеличение точности определения $N_i(z)$. Однако надо иметь в виду, что в режиме усиления стоячих волн повышаются требования к стабильности параметров структуры, особенно величины L . Важно также отметить, что “чистого” режима стоячих волн не существует, из-за того что все слои, включая поглощающий нейтроны слой, в действительности частично отражают нейтроны. Из-за отражения от границ раздела нейтроны многократно проходят поглощающий слой. В итоге, вероятность поглощения нейтронов в режиме стоячих волн может также возрастать при определенных значениях волнового вектора.

ТЕХНИКА ИЗМЕРЕНИЙ

На канале № 8 реактора ИБР-2 расположен спектрометр поляризованных нейтронов РЕМУР. Он используется для рефлектометрических исследований слоистых структур и деполяризационных исследований объемных магнитных материалов. На спектрометре создан канал регистрации заряженных частиц. Основным элементом канала является ионизационная камера, размещенная в гониометре узла образца (рис. 1). На рис. 2 показана схема камеры. Нейтронный пучок входит в камеру через входное окно и попадает на исследуемую структуру, установленную на катоде камеры. Отраженный и преломленный пучки нейтронов выходят из камеры через выходное окно и регистрируются позиционно-чувствительным детектором He-3, расположенным на расстоянии 5 м от камеры. Интенсивность рассеяния нейтронов при прохождении окон камеры не превышает 0.5%. Для установки угла скольжения пучка нейтронов к плоскости исследуемой структуры ионизационную камеру ориентируют, поворачивая вокруг вертикальной оси в диапазоне 1.5–10 мрад с точностью 0.1 мрад.

Катод и анод ионизационной камеры толщиной 0.5 мм выполнены из алюминия. На катоде закреплена рамка с пазами, куда вставляются сменные образцы. Сетка сделана из проволоки золоченого вольфрама толщиной 100 мкм, намотанной с шагом 2 мм на рамку из нержавеющей стали. Конструкция помещена в цилиндриче-

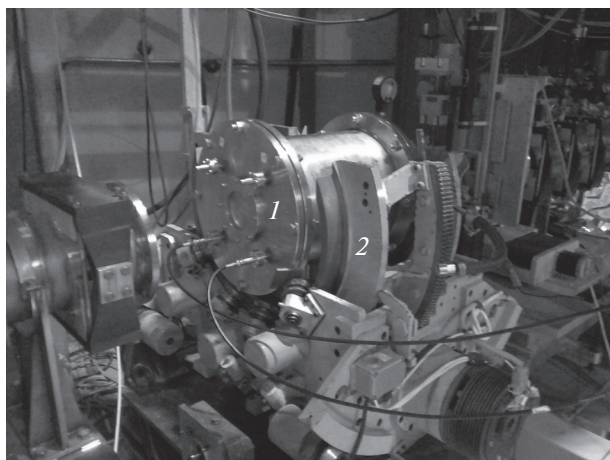


Рис. 1. Ионизационная камера 1, установленная в гониометре 2 спектрометра РЕМУР, расположенного на канале № 8 реактора ИБР-2.

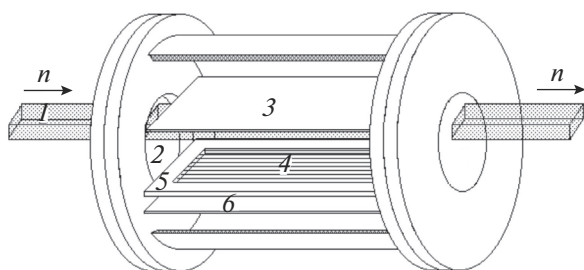


Рис. 2. Схема ионизационной камеры: 1 – пучок нейтронов; 2 – входное и выходное окна; 3 – катод; 4 – сетка; 5 – рамка сетки; 6 – коллектор (анод).

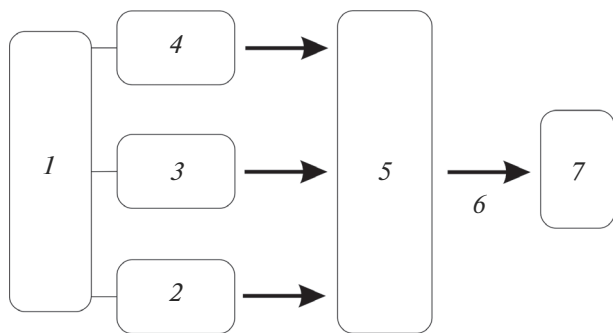


Рис. 3. Блок-схема аппаратуры для регистрации сигнала от ионизационной камеры и детектора гамма излучения: 1 – крейт NIM с источником питания; 2 – ионизационная камера с предусилителями; 3 – полупроводниковый гамма-детектор высокого разрешения; 4 – сцинтилляторы антикомптоновской защиты гамма-детектора; 5 – 12-канальный оцифровщик сигнала; 6 – трехканальная линия связи с персональным компьютером (ПК); 7 – ПК.

ский корпус из нержавеющей стали длиной 300 мм и диаметром 270 мм, снабженный высоковольтными и сигнальными вводами и вентиляем для откачки и наполнения камеры газом, а также контрольным манометром. На торцах корпуса имеются тонкие алюминиевые окна толщиной 100 мкм и диаметром 80 мм для пропускания пучка нейтронов через камеру. Расстояния между катодом и сеткой и между сеткой и коллектором составляли 50 и 20 мм соответственно. Чувствительный объем ионизационной камеры в плоскости образца составляет 210×110 мм и позволяет использовать образцы размером 170×80 мм. В работе использовали образцы размером 71×71 мм, содержащие слой изотопа ${}^6\text{Li}$. В качестве рабочего газа применяли смесь $\text{Ag} + 3\% \text{CO}_2$ при давлении 1.5 бар. При этом давлении траектории пробега тритонов с энергией 2.73 МэВ из реакции ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ находятся в чувствительном объеме ионизационной камеры. Непосредственно на ионизационной камере расположены зарядочувствительные предусилители ORTEC 142A, на которые сигналы регистрации заряженной частицы подаются с катода и анода камеры. Высоковольтный блок ORTEC 660 и быстрые усилители ORTEC 474 размещены в крейте NIM, находящемся от ионизационной камеры на расстоянии 5 м.

В настоящее время на спектрометре разрабатывается второй канал регистрации вторичного излучения, а именно канал регистрации гамма-квантов. В этой связи каналы регистрации заряженных частиц и гамма-квантов имеют частично общее оборудование сбора измерительной информации. На рис. 3 приведена блок-схема аппаратуры каналов регистрации заряженных частиц и гамма-квантов. В этой схеме управление измерениями и накопление информации об интенсивностях в зависимости от времени, начиная от момента возникновения импульса мощности реактора, выполняет персональный компьютер, который находится на расстоянии 20 м от узла образца.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ ДАННЫЕ

Структуры для тестирования были изготовлены методом магнетронного распыления в ИФМ РАН (Нижний Новгород) [6]. Были изготовлены четыре структуры: $\text{V}(10 \text{ нм})/\text{CoFe}(5 \text{ нм})/{}^6\text{LiF}(5 \text{ нм})/\text{V}(5 \text{ нм})/\text{стекло}$, $\text{V}(10 \text{ нм})/\text{CoFe}(5 \text{ нм})/{}^6\text{LiF}(5 \text{ нм})/\text{V}(15 \text{ нм})/\text{стекло}$, $\text{Cu}(10 \text{ нм})\text{V}(65 \text{ нм})/\text{CoFe}(5 \text{ нм})/{}^6\text{LiF}(5 \text{ нм})/\text{V}(5 \text{ нм})/\text{стекло}$ (структуры № 1, № 2 и № 3 соответственно) и $\text{Cu}(10 \text{ нм})\text{V}(55 \text{ нм})/\text{CoFe}(5 \text{ нм})/{}^6\text{LiF}(5 \text{ нм})/\text{V}(15 \text{ нм})/\text{стекло}$ (№ 4). В своем составе структуры содержали слои ${}^6\text{LiF}(5 \text{ нм})$ и $\text{FeCo}(5 \text{ нм})$, которые были расположены рядом друг с другом, но на разном расстоянии (5 и 15 нм) от подложки из стекла, служащей

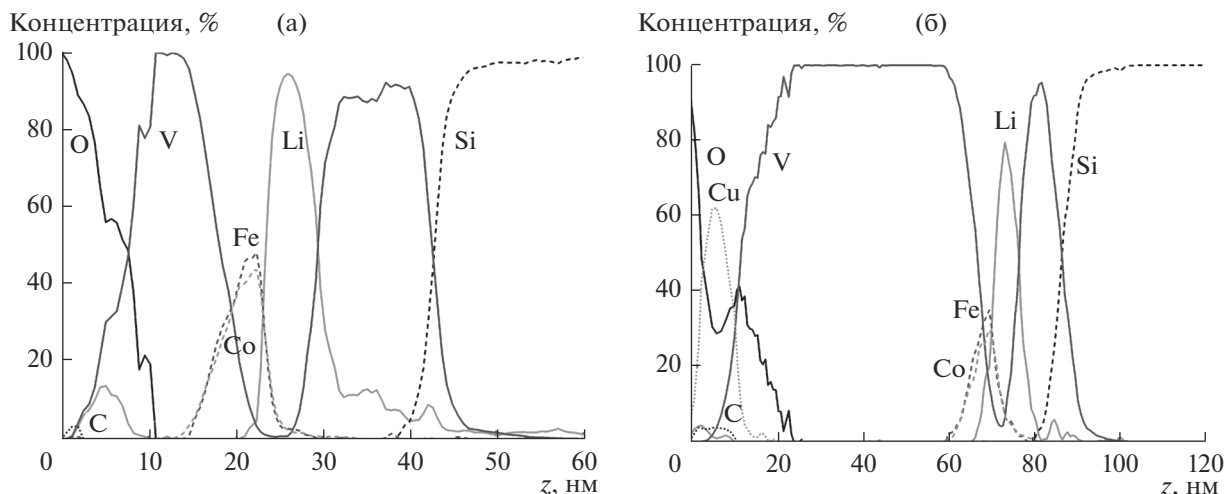


Рис. 4. Пространственное распределение концентрации элементов в структурах № 2 (а) и № 4 (б).

отражателем нейтронов. Захват нейтронов ядрами ${}^6\text{Li}$ приводит к распаду возбужденных ядер с образованием заряженных альфа-частиц и тритонов. На рис. 4 приведены пространственные профили распределения элементов в структурах № 2 и № 4, полученные методом нейтральной масс-спектрометрии. Видно, что протяженность границ раздела слоев порядка 5 нм в глубину структуры (ось Z).

Интенсивности нейтронов и заряженных частиц регистрировали в зависимости от времени пролета нейтронами расстояния от замедлителя в реакторе до детектора t_n и ионизационной камеры t_c соответственно. Расстояние от замедлителя до детектора составляло $L_n = 34$ м, а до ионизационной камеры $L_c = 29$ м. Экспериментальные зависимости интенсивностей нейтронов $J_n(t_n)$ и заряженных частиц $J_c(t_c)$ были преобразованы в зависимости от длины волны нейтронов λ . Было использовано соотношение:

$$\lambda = \beta t_n / L_n = \beta t_c / L_c, \quad (9)$$

где $t_n = N_n \Delta t_n$, $t_c = N_c \Delta t_c$, N_n , N_c – номера каналов детектора нейтронов и ионизационной камеры, $\Delta t_n = 128$ мкс, $\Delta t_c = 100$ мкс – ширины каналов временных кодировщиков детектора нейтронов и ионизационной камеры соответственно, $\beta = h/m$, h – постоянная Планка, m – масса нейтрона.

Как следует из (9), ширины каналов не одинаковы и относятся как $\Delta \lambda_n / \Delta \lambda_c = 1.092$. В этой связи $J_c(\lambda)$ была нормирована на ширину нейтронного канала $\Delta \lambda_n$. Картина распределения интенсивности нейтронов на плоскости $N_z N_l$ представлена на рис. 5. Координата z пучка нейтронов на детекторе определяет угловое положение относительно плоскости образца ($\theta = 0$ мрад, $N_z = 193$), прошедшего $\theta_T = (155 - 193)\Delta z / L_{sd}$ (I) и отраженного $\theta_R =$

$= (231 - 193)\Delta z / L_{sd}$ (2) пучков, где $L_{sd} = 5$ м – расстояние от образца до детектора нейтронов.

На рис. 6 представлена картина распределения интенсивности заряженных частиц на плоскости амплитуда (сигнал с катода)–амплитуда(сигнал с анода). Пятно 1 соответствует тритонам ${}^3\text{H}$, пятно 2 – альфа-частицам ${}^4\text{He}$, возникающим из реакции $n + {}^6\text{Li} = {}^4\text{He} + {}^3\text{H}$. На рис. 7 представлен амплитудный спектр регистрируемых альфа-частиц (1) и тритонов (2). Интегральные по ампли-

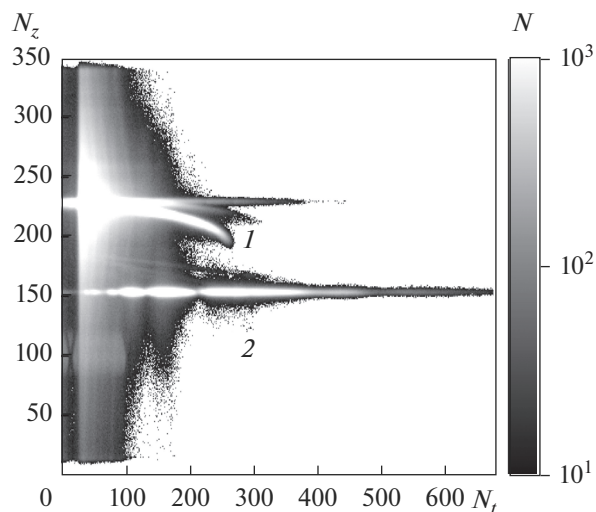


Рис. 5. Картина распределения интенсивности нейтронов на детекторе в плоскости $N_z N_l$; 1 – преломленный пучок; 2 – отраженный пучок. Номер канала N_z определяет координату в горизонтальной плоскости перпендикулярно пучку: $z = N_z \Delta z$, где $\Delta z = 0.67$ мм. Номер канала N_l определяет время пролета нейтронов от замедлителя до детектора: $t_n = N_l \Delta t_n$, где $\Delta t_n = 128$ мкс.

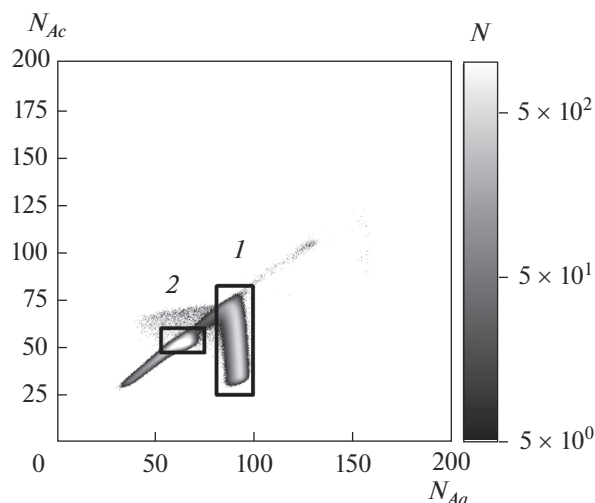


Рис. 6. Карта распределения интенсивности счета трионов (1) и альфа-частиц (2) в ионизационной камере для структуры № 4 в зависимости от амплитуд сигналов (номера канала) с анода (N_{Aa}) и катода (N_{Ac}).

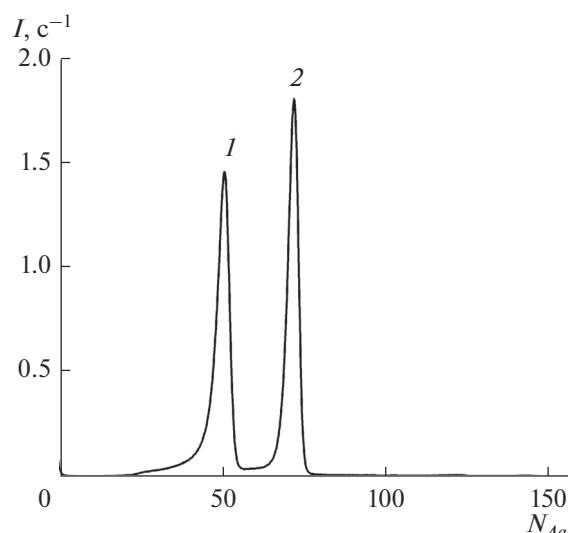


Рис. 7. Интегральная по амплитуде сигнала с катода зависимость интенсивности счета альфа-частиц (1) и трионов (2) в ионизационной камере в зависимости от амплитуды сигнала с анода.

туде сигнала с анода эффективности регистрации альфа-частиц и трионов относятся как 1 : 0.99.

На рис. 8 представлены длинноволновые зависимости интенсивности счета нейтронов и фонового счета детектора. В максимуме спектра при $\lambda = 1.1 \text{ \AA}$ интенсивность счета нейтронов в канале длительностью 128 мкс ($\Delta\lambda = 0.015 \text{ \AA}$) составляет 40 c^{-1} , а отношение интенсивностей счета нейтронов к фоновому счету $\gamma = 4 \times 10^4$. При $\lambda = 2.5 \text{ \AA}$ фон подавляется прерывателем, интенсивность счета нейтронов падает в 5 раз, в то время как γ возрастает до 3×10^5 .

Фоновый счет ионизационной камеры в окне прерывателя нейтронов ($\lambda = 1-2 \text{ \AA}$) при перекрытом кадмиевой пластиной пучке нейтронов обусловлен быстрыми нейтронами (с энергией несколько МэВ) и составляет 10^{-4} c^{-1} (фоновый счет детектора нейтронов 10^{-3} c^{-1}). При закрытом прерывателе нейтронов ($\lambda > 2.5 \text{ \AA}$) оба фоновых счета понижаются до уровня $4 \times 10^{-5} \text{ c}^{-1}$.

На рис. 9 представлены спектры нейтронов и заряженных частиц в режимах стоячих волн (структура № 2) и усиленных стоячих волн (структура № 4). Из зависимости 2 (рис. 9а) следует, что при $\lambda = 3.25 \text{ \AA}$ интенсивность выхода частиц по сравнению с однократным прохождением нейтронами слоя LiF возрастает в 8 раз. Нейтронная плотность увеличивается более чем в 4 раза. Четырехкратное увеличение соответствует режиму стоячих волн (следует из (5) при условии (6)). Таким образом, в действительности частично реализуется режим резонансного усиления нейтронной плотности. Провал при $\lambda = 2 \text{ \AA}$ на зависимости 1 связан с соответствующим мак-

симумом пропускания нейтронов через структуру. Провалы при 6.5 и 8.2 \AA на обеих зависимостях объясняются рассеянием нейтронов на окнах прерывателя. Коэффициент усиления нейтронной плотности для структуры № 4 (рис. 9б, кривая 2) равен 15 и 11 при длинах волн 3 и 4.8 \AA соответственно. По сравнению со структурой № 2 эти коэффициенты существенно превышают величину 4, что указывает на реализацию в структу-

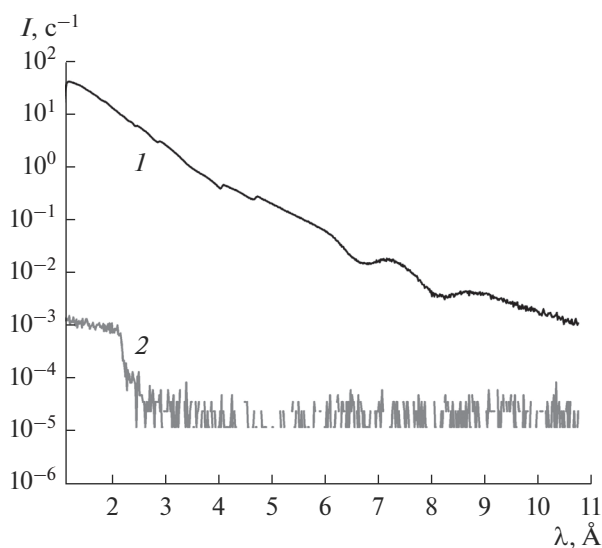


Рис. 8. Длинноволновая зависимость (спектр) интенсивности счета нейтронов, проходящих ионизационную камеру мимо исследуемой структуры, (1) и фонового счета при перекрытии пучка нейтронов кадмиевой пластиной толщиной 0.5 мм (2).

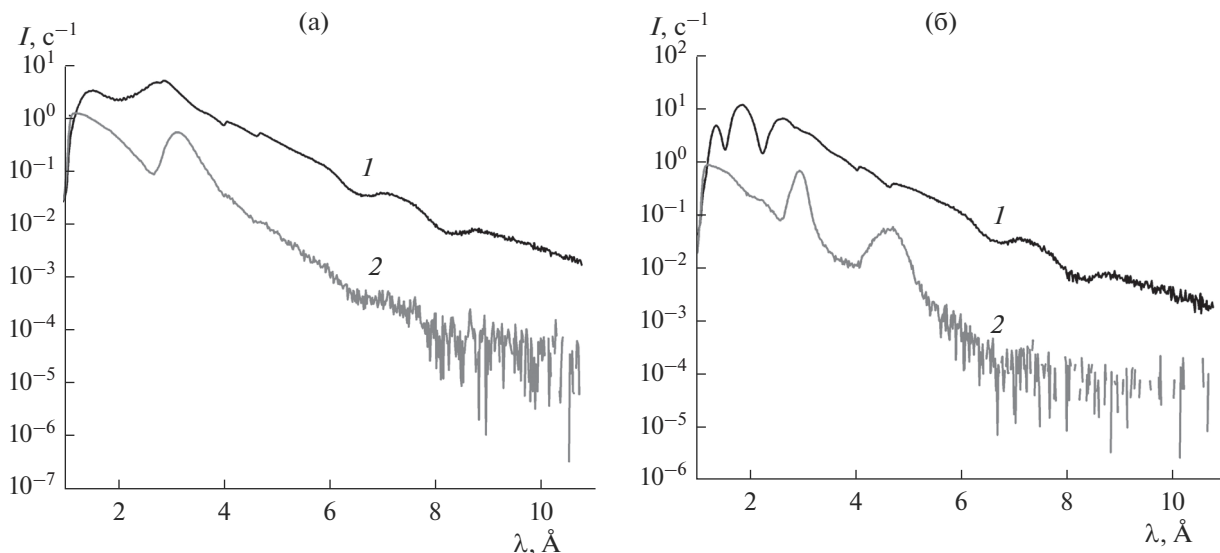


Рис. 9. Зависимости интенсивности отраженных нейтронов (I) и заряженных частиц (2) от длины волны для структуры: а – № 2 при угле скольжения нейтронов 3 мрад (интенсивность заряженных частиц в пике при $\lambda = 3.25 \text{ \AA}$ в канале длительностью 128 мкс равна $J_c = 0.52 \text{ с}^{-1}$, интегральная по длине волны интенсивность счета 20 с^{-1}); б – № 4 при угле скольжения нейтронов 2.9 мрад.

ре № 4 режима усиленных стоячих нейтронных волн. Из рис. 9 следует, что измерения в обоих каналах возможны в широком диапазоне длин волн 1–10 \AA .

На рис. 10 для структуры № 4 приведены нормированные на интенсивность падающих нейтронов I_0 интенсивности отраженных нейтронов $I_{nn} = I_R/I_0 \equiv R$ (где I_R и R – интенсивность отраженных нейтронов и коэффициент отражения нейтронов соответственно) и заряженных частиц $I_{nc} = I_c/I_0 \equiv M_c$ (2) (где I_c – интенсивность и M_c – коэффициент образования заряженных частиц соответственно). При $\lambda = 4.7 \text{ \AA}$ нейтроны отражаются полностью, и справедливо соотношение $R + M_n = 1$, где M_n – коэффициент поглощения нейтронов. При полном отражении нейтронов для M_c и M_n должно реализовываться соотношение $M_c \leq M_n = (1 - R)$. В этом неравенстве, во-первых, полагают, что эффективность регистрации заряженных частиц меньше 50%, из-за того что регистрируются заряженные частицы, вылетающие только в направлении от катода к камере. Во-вторых, M_n определяется не только захватом нейтронов ядрами ${}^6\text{Li}$, но и рассеянием нейтронов на шероховатостях границ раздела. В эксперименте действительно наблюдается $M_c = 0.63M_n < M_n$. С уменьшением порога регистрации заряженных частиц M_c возрастает и достигает значения $0.67M_n$. Эффективность регистрации заряженных частиц не является стопроцентной. Возможно, это связано с используемыми критериями отбора полезных сигналов.

Рассмотрим теперь структурную информацию, извлекаемую из нейтронного канала и канала заряженных частиц. На рис. 11а приведена экспериментальная зависимость $I_n(\beta)$, где $\beta = \lambda/\theta$ для структур № 1 и № 2. Максимумы зависимостей наблюдаются при $\beta_1 = 1.085$ и $\beta_2 = 1.149 \text{ \AA/мрад}$, которым соответствуют $\lambda_1 = 3.25$ и $\lambda_2 = 3.45 \text{ \AA}$. Полученное неравенство $\lambda_2 > \lambda_1$ согласуется с нера-

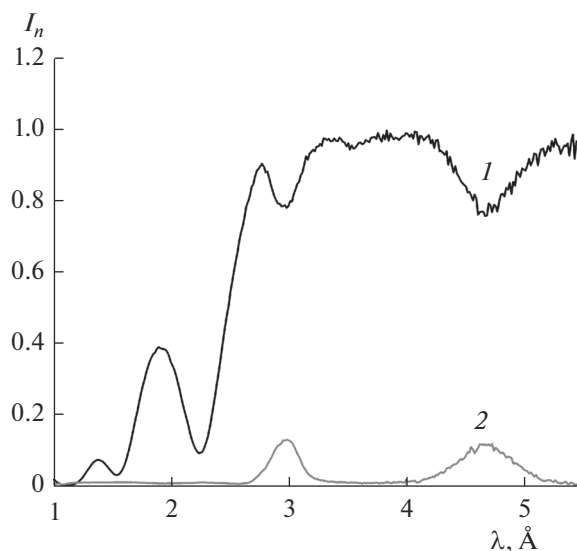


Рис. 10. Нормированная интенсивность отраженных нейтронов (I) и интенсивность заряженных частиц (2) в зависимости от длины волны нейтронов при $\theta = 2.85$ мрад для структуры № 4.

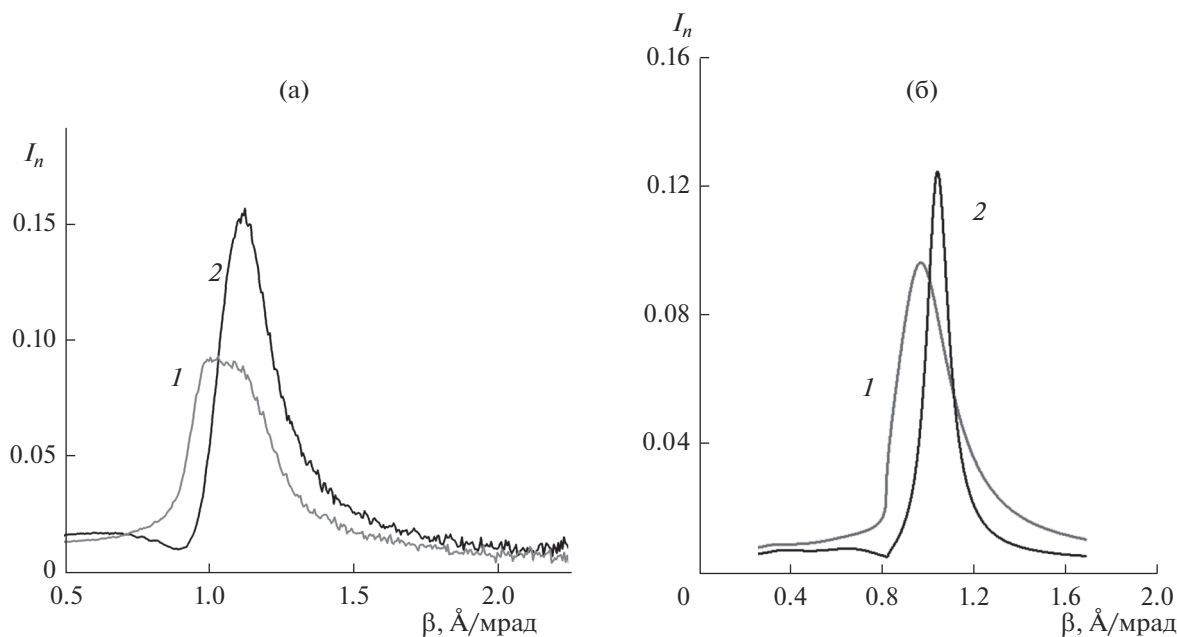


Рис. 11. Экспериментальная (а) и расчетная (б) нормированные интенсивности заряженных частиц для структур № 1 (1) и № 2 (2).

венством $L_2 > L_1$ для расстояний от слоя ${}^6\text{Li}$ до подложки, что подтверждает метод нахождения положения слоя изотопа относительно отражателя из стекла в режиме стоячих нейтронных волн. Расчетные зависимости (рис. 11б) получены с использованием профиля потенциала взаимодействия, который определяется толщинами слоев, ядерным потенциалом и вектором намагниченности J в слоях.

Для образца № 1 пространственная часть профиля представляется формулой $A(5 \text{ нм})/B(5 \text{ нм})/C(10 \text{ нм})/D1(5 \text{ нм})/D2(5 \text{ нм})/E1(1 \text{ нм})/E2(5 \text{ нм})/E3(1 \text{ нм})/F1(9 \text{ нм})/F2(4 \text{ нм})/G$. Толщина всей структуры оказалась равной 50 нм, что на 25% больше значения, полученного методом нейтральной масс-спектрометрии. Потенциальная часть профиля (комплексный потенциал взаимодействия $U = V - iW$) представлена значениями $V_A = 0.5$, $V_B = 0.3$, $V_C = -0.044$, $V_{D1} = 0.3$, $V_{D2} = 0.45$, $U_{E1} = 0.3 - 0.01i$, $U_{E2} = 0.6 - 0.02i$, $U_{E3} = 0.3 - 0.01i$, $V_{F1} (-0.044)$, $V_{F2} (0.45)$, $V(G) = 0.6$. Потенциал взаимодействия нормирован на реальную часть потенциала взаимодействия нейтронов с поверхностью меди, равную 172 нЭВ.

Для образца № 2 пространственная часть профиля есть $A(5 \text{ нм})/B(5 \text{ нм})/C(10 \text{ нм})/D1(5 \text{ нм})/D2(5 \text{ нм})/E1(1 \text{ нм})/E2(6 \text{ нм})/E3(1 \text{ нм})/F1(14.5 \text{ нм})/F2(4 \text{ нм})/G$. Толщина всей структуры составляет 56.5 нм, что на 25% превосходит данные нейтральной масс-спектрометрии. Потенциальная часть профиля: $V_A = 0.9$, $V_B = 0.7$, $V_C = -0.044$, $V_{D1} = 0.3$, $V_{D2} = 0.45$, $U_{E1} = 0.3 - 0.01i$, $U_{E2} = 0.6 -$

$-0.02i$, $U_{E3} = 0.3 - 0.01i$, $V_{F1} (-0.044)$, $V_{F2} (0.45)$, $V_G = 0.6$. Рассчитанная разность положений слоя ${}^6\text{Li}$ относительно подложки для структур № 2 и № 1 составляет 5.5 нм, что меньше номинального значения 10 нм. Таким образом, из рис. 11 следует, что достигнуто пространственное разрешение не хуже 5.5 нм.

На рис. 12 представлены экспериментальные и расчетные зависимости $I_n(\beta)$ для структур № 3 (кривая 1) и № 4 (кривая 2). Для этих структур реализуется режим усиленных стоячих нейтронных волн, при котором положение слоя с ядрами лития определяется интенсивностью заряженных частиц при резонансных значениях волнового вектора. В случае структуры № 3, для которой расстояние от слоя лития до отражателя нейтронов меньше, первый пик больше по величине, а второй меньше, чем в случае структуры № 4.

Для образца № 3 пространственная часть профиля представляется формулой $A1(2 \text{ нм})/A2(10 \text{ нм})/A3(2 \text{ нм})/B(42 \text{ нм})/C1(5 \text{ нм})/C2(5 \text{ нм})/D1(1 \text{ нм})/D2(4.5 \text{ нм})/D3(1 \text{ нм})/E1(12 \text{ нм})/E2(6 \text{ нм})/E3(6 \text{ нм})/F$. Общая толщина структуры составляет 96 нм, что на 7% превышает толщины по данным нейтральной масс-спектрометрии. Потенциальная часть профиля: $V_{A1} = 0.2$, $V_{A2} = 1.0$, $V_{A3} = 0.2$, $V_B = -0.044$, $V_{C1} = 0.3$, $V_{C2} = 0.45$, $U_{D1} = 0.3 - 0.01i$, $U_{D2} = 0.6 - 0.02i$, $U_{D3} = 0.3 - 0.01i$, $V_{E1} (-0.044)$, $V_{E2} (0.35)$, $V_{E3} (0.45)$, $V_F = 0.6$.

Для образца № 4 пространственная часть профиля представлена формулой $A1(2 \text{ нм})/A2(10 \text{ нм})/A3(2 \text{ нм})/B(36 \text{ нм})/C1(5 \text{ нм})/C2(5 \text{ нм})/D1(1 \text{ нм})/$

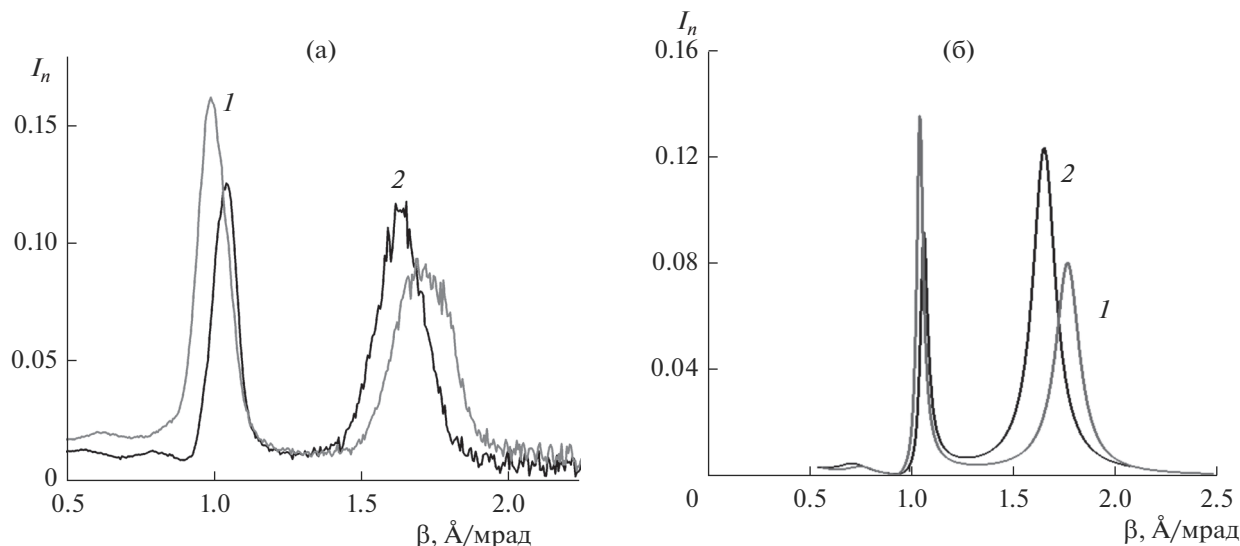


Рис. 12. Нормированные интенсивности для структур № 3 (1) и № 4 (2): а – заряженных частиц (экспериментальная); б – тритонов (расчетная).

$D2(4 \text{ нм})/D3(1 \text{ нм})/E1(16 \text{ нм})/E2(6 \text{ нм})/E3(6 \text{ нм})/F$.
Общая толщина структуры составляет 94 нм, что на 5% превосходит данные нейтральной масс-спектрометрии. Потенциальная часть профиля: $V_{A1} = 0.2$, $V_{A2} = 1.0$, $V_{A3} = 0.2$, $V_B = -0.044$, $V_{C1} = 0.3$, $V_{C2} = 0.45$, $U_{D1} = 0.3 - 0.01i$, $U_{D2} = 0.6 - 0.02i$, $U_{D3} = 0.3 - 0.01i$, $V_{E1} (-0.044)$, $V_{E2} (0.35)$, $V_{E3} (0.45)$, $V_F = 0.6$. Разность положений слоя ${}^6\text{Li}$ относительно подложки для структур № 3 и № 4 равна 4 нм, что близко к соответствующему значению для структур № 1 и № 2. Таким образом, из рис. 12 следует, что достигнуто пространственное разрешение не хуже 4.0 нм.

Толщины всех структур оказались больше номинальных значений. В то же время номинальные толщины совпали с данными нейтральной масс-спектрометрии, что кажется нереалистичным. Нейтронные данные представляются более достоверными. Этот вывод следует из того, что плотность материала в структуре меньше плотности того же материала в кристаллическом состоянии. Так, например, ранее при исследованиях медно-титановых структур было получено, что плотность меди в слое толщиной 100 нм по сравнению с кристаллическим состоянием уменьшается на 10%, а плотность титана еще больше – на 50%. В результате за счет меньшей реальной плотности структура “разбухает”, т.е. ее толщина увеличивается. В то же время разность в положении слоя ${}^6\text{Li}$ относительно подложки для структур № 1, № 2 и № 3, № 4 оказалась вдвое меньше номинального значения. Неясно, с чем это связано. Возможно, это является следствием реализации более сложного режима нейтронного волнового поля.

ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТЬ И РАЗРЕШЕНИЕ МЕТОДА

Оценим время измерения t , необходимое для определения изменения пространственного положения dz исследуемого слоя исходя из того, что изменение интенсивности dI равно статистической ошибке счета:

$$t \partial I / \partial z \delta z = (tI)^{1/2}. \quad (10)$$

Как следует из экспериментальных данных, изменению расстояния от подложки $dz = 5.5 \text{ нм}$ до слоя ${}^6\text{LiF}$ толщиной 5 нм соответствует изменение $d\beta = 0.085$, что отвечает (при регистрации по переднему фронту) изменению интенсивности тритонов на 38%. Интенсивность счета тритонов при $z = 15 \text{ нм}$ и $\theta = 3 \text{ мрад}$ в одном временном канале 128 мкс ($\delta\lambda/\lambda = 0.006$) составляет $I = 1.04 \text{ с}^{-1}$. Для производной по координате имеем $\partial I / \partial z = 0.072 \text{ с}^{-1} \cdot \text{нм}^{-1}$. За 1 ч измерений получаем $\delta z = (I/t)^{1/2} / \partial I / \partial z = 0.24 \text{ нм}$.

Оценим теперь регистрируемое изменение δz за 1 ч измерений, используя изменение интегрального (полного) счета тритонов. При $\delta z = 5.5 \text{ нм}$ изменение интегрального счета $dI = 3.3 \text{ с}^{-1}$. Средняя интенсивность счета $I = 10 \text{ с}^{-1}$. В итоге получаем: за 1 ч $\delta z = 0.09 \text{ нм}$. Видно, что интегральные данные позволяют достигнуть в 2.5 раза большей чувствительности по сравнению со счетом в одном временном канале.

Рассмотрим вопрос о минимальном сечении захвата нейтронов в слое толщиной 5 нм, при котором бы точность определения пространственного положения составляла 1 нм за время измерения $t = 10 \text{ ч}$. Используя интегральный счет

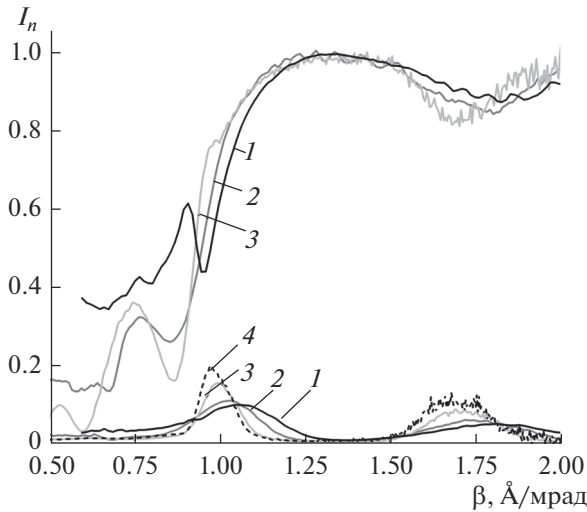


Рис. 13. Нормированная интенсивность отраженных нейтронов (верхняя серия кривых) и тритонов (нижняя серия кривых) для структуры № 3 в зависимости от β при $\theta = 1.15$ (1), 1.6 (2), 3.23 (3) и 4.96 мрад (4).

тритонов и зависимость $\sigma \propto 1/(tdz^2)$, получим, что $\sigma_{\min} \approx 1$ барн.

Рассмотрим теперь предельно достижимые значения параметров. При уменьшении угла скольжения в 3 раза падающий на образец такого же размера поток нейтронов вырастет в 5 раз, что позволит достичь $\sigma_{\min} = 0.2$ барн. Использование холодного источника нейтронов, максимум интенсивности которого приходится на 2–3 Å, позволит еще увеличить интенсивность нейтронов за счет увеличения угла скольжения пучка по поверхности образца. Это снизит минимальное сечение до $\sigma_{\min} = 0.07$ барн. При этом значения σ_{\min} доступными для исследований будут примерно три десятка изотопов [4].

Проведенные тестовые измерения показали, что с данными структурами (отражатель нейтронов из стекла) на рефлектометре нейтронов с разрешением по волновому вектору 3% реализуется пространственное разрешение порядка 5 нм. Использование структур, в которых отражатель нейтронов выполнен из суперзеркала [15], позволит увеличить пространственное разрешение метода в 12.4 раза и довести его до атомного масштаба 0.4 нм.

НЕОДНОРОДНОСТЬ ГРАНИЦ РАЗДЕЛА СЛОЕВ

Рассмотрим теперь научный результат, полученный в ходе тестирования канала в режиме усиления стоячих волн, который свидетельствует о неоднородной структуре границ раздела. На рис. 13 приведены данные, полученные для различных углов скольжения нейтронов. Видно, что с ро-

стом угла скольжения зависимости смещаются в сторону меньших значений β . Это указывает на то, что существует зависимость от компоненты волнового вектора k_x , лежащей в плоскости структуры, которая обусловлена ее неоднородностями и корреляционной длиной вдоль оси X . Рассмотрим этот вопрос подробно.

С ростом длины волны нейтронов и фиксированного значения $\beta = \lambda/\theta$ компонента в вакууме $k_z = 2\pi/\beta$ фиксирована, а компонента волнового вектора в плоскости $k_x = 2\pi \cos\theta/\lambda = k_z \text{ctg}\theta$ уменьшается из-за роста θ . Уменьшению k_x соответствует увеличение числа столкновений нейтрона с границами раздела в структуре, а значит, увеличение вероятности рассеяния нейтронов на неоднородностях границ раздела. Рассмотрим теперь, как рассеяние изменяет z -компоненту волнового вектора в структуре $k_{x,m}$. В случае упругого рассеяния изменение волнового вектора Δk_z в направлении, перпендикулярном границам раздела слоев в структуре, связано с изменением волнового вектора Δk_{\perp} в плоскости, перпендикулярной оси Z , соотношением:

$$k_{z,m}^2 + k_{\perp}^2 = k_{z,m,s}^2 + (k_{\perp} + \Delta k_{\perp})^2, \quad (11)$$

где $k_{z,m,s}$ – компонента волнового вектора в среде после рассеяния нейтрона. Преобразуем (11) к виду:

$$\delta = k_{z,m,s}^2 - k_{z,m}^2 = -(2k_{\perp}\Delta k_{\perp} + \Delta k_{\perp}^2). \quad (12)$$

В случае рассеяния и передачи момента вдоль оси Y может выполняться условие $\Delta k_{\perp}^2 > |2k_{\perp}\Delta k_{\perp}|$, $\delta < 0$, что соответствует уменьшению z -компоненты волнового вектора в результате рассеяния. В случае рассеяния вдоль оси X волновой вектор длиннее переданного ($k_{\perp} = k_x > \Delta k_x$). Тогда $\delta = \delta_1 < 0$ при $\Delta k_x > 0$ и $\delta = \delta_2 > 0$ при $\Delta k_x < 0$, $|\delta_1| > \delta_2$. Для среднего значения z -компоненты волнового вектора нейтронов в результате равновероятных процессов рассеяния с $\Delta k_x > 0$ и $\Delta k_x < 0$ имеем:

$$(k_{z,m,s1}^2 + k_{z,m,s2}^2)/2 = (k_{z,m}^2 + (\delta_1 + \delta_2)/2) < k_{z,m}^2. \quad (13)$$

В результате при рассеянии z -компонента волнового вектора нейтронов уменьшается в обоих случаях. В то же время резонансное значение z -компоненты волнового вектора в структуре фиксировано и определяется соотношением (8). Чтобы выполнить (8), нужно увеличить волновой вектор нейтронов, падающих на структуру (волновой вектор нейтронов в вакууме). Следует отметить, что в данном случае рассеяние не приводит, как это обычно бывает, к выбыванию нейтронов из когерентного ансамбля отраженных частиц. Рассеяние в данном случае только немного изменяет значения компоненты волнового вектора, оставляя абсолютную величину волнового вектора неизменной. Таким образом, в этом слу-

чае рассеяние приводит к изменению фазы нейронной волны, следовательно, к изменению резонансного значения z -компоненты волнового вектора падающих на структуру нейтронов.

Оценим размер (корреляционную длину) неоднородностей вдоль оси X . Из рис. 13 следует, что $\delta k_z/k_z = 0.1$. Используя значения $k_z = 0.06$ и $k_x = 13 \text{ нм}^{-1}$, получим $\delta k_x = 3 \times 10^{-5} \text{ нм}^{-1}$. В итоге для корреляционной длины вдоль оси X получим $L_x = \pi/\delta k_x \approx 10^2 \text{ мкм}$.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

На спектрометре РЕМУР создан канал регистрации заряженных частиц. Показано, что при измерениях в течение нескольких часов чувствительность и пространственное разрешение находятся в нанометровом диапазоне. Полученные характеристики канала регистрации заряженных частиц позволяют проводить эффективные исследования пространственного распределения изотопов в слоистых наноструктурах.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Никитенко Ю.В., Сыромятников В.Г. Рефлектометрия поляризованных нейтронов. М.: Физматлит, 2013. 218 с.
2. Жакетов В.Д., Никитенко Ю.В., Раду Ф. и др. // ЖЭТФ. 2017. Т. 151. Вып. 1. С. 132.
3. Жакетов В.Д., Никитенко Ю.В., Петренко А.В. и др. // ЖЭТФ. 2017. Т. 152. Вып. 2. С. 1.
4. Никитенко Ю.В., Петренко А.В., Гундорин А.Н. и др. // Кристаллография. 2015. Т. 60. № 4. С. 518.
5. Aksenov V.L., Nikitenko Yu.V. // Physica B. 2001. V. 297. P. 101.
6. Никитенко Ю.В. // Физика элементарных частиц и атомного ядра. 2009. Т. 40. С. 1082.
7. Zhang H., Gallagher P.D., Satija S.K. et al. // Phys. Rev. Lett. 1994. V. 72. P. 3044.
8. Aksenov V.L., Gundorin N.A., Nikitenko Yu.V. et al. // Rep. JINR. 1998. P3-98-374. 8 p.
9. Аксенов В.Л., Гундорин Н.А., Никитенко Ю.В. и др. // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2000. № 6. С. 7.
10. Aksenov V.L., Cser L., Gundorin N.A. et al. // Physica B. 2000. V. 276–278. P. 809.
11. Aksenov V.L., Nikitenko Yu.V., Radu F. et al. // Rep. JINR. 1998. E3-98-383. 6 p.
12. Aksenov V.L., Nikitenko Yu.V., Radu F. et al. // Physica B. 2000. V. 276–278. P. 946.
13. Aksenov V.L., Nikitenko Yu.V. // Physica B. 1999. V. 267–268. P. 313.
14. Игнатович В.К. Нейтронная оптика. М.: Физматлит, 2006. 335 с.
15. SwissNeutronics AG, Klingnau, Switzerland, tech@swiss-neutronics.ch.

Grazing Incidence Neutron Spectrometer Detecting Neutrons and Charged Particles

V. D. Zhaketov, A. V. Petrenko, S. N. Vdovichev, V. V. Travkin, A. Csik, Yu. N. Kopatch, Yu. M. Gledenov, E. Sansarbayar, N. A. Gundorin, Yu. V. Nikitenko, V. L. Aksenov

At the spectrometer REMUR, situated on the eight channel of the IBR-2, the ionization chamber is placed. A layered structure with nanometer layer of isotope under study is mounted in the ionization chamber. Incident neutron beam enters the chamber, reflects from structure and is registered by the detector placed outside the chamber. Some fraction of neutrons is captured by isotope nuclei. As a result, secondary radiation as charge particles is generated, which is registered by the ionization chamber. The dependences of the intensities of neutrons and charged particles on neutron wave vector are used to determine the spatial dependences of interaction potential of neutrons with the entire structure and with the layer of the isotope under study. A neutron spectrometer in grazing geometry, used to register neutrons and charged particles in the study of layered structures, is described. Results of testing of the spectrometer using structures containing ^6Li isotope are reported.

Keywords: neutron reflectometry, layered nanostructures.